



Wachstumsoptimierung und Charakterisierung von MOVPE-basierten GaN Pufferstrukturen auf Si(111) Substraten

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. Stephanie Fritze
geb. am 14.10.1983 in Magdeburg

1. Gutachter: apl. Prof. Dr. Armin Dadgar
2. Gutachter: Prof. Dr. Andreas Waag

eingereicht am: 18.02.2014
verteidigt am: 08.07.2014

Müde macht uns die Arbeit, die wir liegenlassen, nicht die, die wir tun.
(Marie von Ebner Eschennbach)

Kurzfassung

Das Thema dieser Arbeit ist es ein umfassendes physikalisches Verständnis über die systematische Wachstumsoptimierung und analytische Charakterisierung von GaN basierten Pufferstrukturen auf Si(111) Substraten zu gewinnen, welche mithilfe der metallorganischen Gasphasenepitaxie hergestellt werden.

Durch die umfassende physikalische Analyse zur Realisierung dieser hochentwickelten defekt- und spannungsminimierten Pufferstrukturen wird die Basis für die Herstellung effizienter industrieller LED Strukturen mit maximaler Lichtausbeute geschaffen, die zeitnah einen Teil der teureren LEDs auf Saphir Substraten ablösen sollen.

Da die Kristallqualität des Puffers empfindlich von jedem einzelnen Wachstumsschritt abhängt und kleinste Parameterabweichungen von den optimalen Wachstumsbedingungen die Struktur irreversibel beeinträchtigen können, werden zunächst die Mechanismen bei der Vielparameter-Variation verschiedener Keimschichtkonzepte vorgestellt und untersucht. Darunter führen LT-AlN Keimschichten zu hohen GaN Qualitäten mit 692 und 1010 arcsec (Tilt und Twist) und einer Oberflächenspannung von 0.71 GPa führen. Eine Gegenüberstellung von HT- und LT Keimschichten stellte heraus, dass die optimale Wachstumstemperatur im mittleren Bereich von 800°C liegt. Darüber hinaus reduziert ein 2.5 minütiges Ausheizen der Keimschicht und eine dickere auf die Keimschicht abgeschiedene HT-AlN Schicht (>200 nm) die Zahl der Versetzung signifikant.

In der weiteren detaillierten Analyse zur GaN Schichtstapelverbesserung führt das Einfügen dünner AlN-haltiger Zwischenschichten oberhalb der Keimschicht zu einer Spannungskompensation und gleichzeitigen Defektreduktion. Sowohl auf kleinen 2“ Si-Substraten als auch auf großflächigen, industrietauglichen Si-Substraten werden erstmals die Mechanismen der Optimierungsansätze für AlGaN Zwischenschichten detailliert beleuchtet. Dabei führt die Verwendung von 3 doppelgradienten AlGaN Zwischenschichten, bestehend aus einem oberen und unteren Gradienten und einer 65-70% Aluminium haltigen AlGaN Kernschicht, zu einer optimalen Spannungskompensation in der obersten GaN Schicht, bei einer rissfreien und ausgezeichneten Qualität, wobei eine Defektdichte von $6.8 \cdot 10^8 \text{ cm}^{-3}$ erreichbar ist.

Zuletzt wird die n-Leitfähigkeit durch eine kontrollierte Dotierung mit Si vorgestellt und die damit verbunden qualitätsmindernden Effekte, wie Spannungen und die obere Dotiergrenze von $1 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ herausgestellt. Als eine geeignete Alternative zum Silizium wird daher die Germaniumdotierung für die Realisierung von n-GaN vorgestellt. Damit ist eine um den Faktor 10 höhere Dotierung ($2.6 \cdot 10^{20} \text{ cm}^{-3}$) möglich ohne zusätzliche tensile Spannung aufzubauen und die Oberfläche aufzurauen. Erstmals wird nachgewiesen, dass die Ge-dotierten Proben die Si-Dotierung sowohl in der strukturellen Qualität als auch in den elektrischen Eigenschaften übertreffen.

Aufbauend auf diesen erfolgreichen Ergebnissen wurde eine GaN auf Si Prototyp-LED hergestellt, welche eine externe Quanteneffizienz von 56% besitzt. Für eine kostengünstige Herstellung von LEDs auf großflächigen Substraten sind mit der dieser Arbeit vorgestellten spannungs- und defektoptimierten LED-Pufferstruktur und der alternativen Dotierung mit Germanium die Voraussetzungen für die Umsetzung in einem industrietauglichen Fertigungsprozess geschaffen.

Abstract

This thesis is devoted to obtain a deep physical comprehension about the systematic growth optimization and analytical characterization of GaN based buffer structures grown on Si(111) substrates by metal organic vapor phase epitaxy.

With an extensive physical analysis for advanced low-defect and low-strain buffer structure realization the way for the next milestone in general lighting: high-yield and low-cost manufacturing of high-brightness LEDs on large silicon wafers is created, so that a part of cost-intensive LEDs on sapphire substrates can be substituted contemporary.

It is well known that the final crystal quality of the buffer structure critically depends on every single sequence of the complex multi-step growth procedure. Even smallest deviations from the optimum growth path potentially can harm the usability of the buffer structure irreversibly. Hence, this work started with presenting and analyzing the mechanisms of multi-parameter variation for several nucleation layer concepts including low-temperature (LT) AlN nucleation layers and high-temperature (HT) AlN nucleation layers. It turned out that LT-AlN nucleation layers result in the very best GaN crystal quality (tilt: 692 arcsec, twist: 1010 arcsec) and a stress of only 0.71 GPa at the buffer surface.

Applying a combined statistical analysis of both HT and LT nucleation layers an intermediate temperature range between 680°C and 800°C seems to be the optimal range where high quality nucleation layers can be grown. In addition a subsequently applied 2.5 min tempering procedure of the nucleation layer followed by overgrowth with a thick HT AlN layer (>200nm) further reduces the number of dislocations significantly.

In the further detailed analysis regarding the improvement of GaN buffer quality the insertion of thin AlGaN interlayers into the GaN stack lead to further strain compensation and defect reduction. Initially the mechanisms of optimization approaches of several types of AlGaN interlayers have been studied systematically both on small 2" Si substrates and on large, mass-production compatible 100mm wafers. A ideal strain compensation in the uppermost GaN layer has been achieved with 3 double-graded LT AlGaN interlayers consisting a 65-70% AlGaN core layer sandwiched by compositionally graded top and bottom layers. By means of these sophisticated interlayer sub-structure crack-free GaN layers have been grown with very good crystal quality and a final achievable defect density of only $6.8 \cdot 10^8 \text{ cm}^{-3}$.

Finally, the n-conductivity of GaN by controlled doping with Si has been studied regarding the quality reducing effects like strain enhancement and surface roughness has been analyzed. Furthermore an upper doping limitation of $1 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ has been determined.

As a superior alternative to Silicon Germanium doping has been identified allowing for a 10-fold higher doping level ($2.6 \cdot 10^{20} \text{ cm}^{-3}$) without introducing additional strain or surface roughening. Moreover it is first proven that Germanium doped n-GaN is of advantage also regarding its crystal quality and electronic performance compared to Si-doping.

Based on these successful results a first GaN on Si prototype LED with an external quantum efficiency of 56% has been produced. In summary the achievements of this work are paving the way for near-future cost-efficient industrial integration of GaN based high-brightness LEDs

Danksagung

Ich möchte mich an dieser Stelle bei all meinen Kollegen, Vorgesetzten, Freunden und Unterstützern bedanken, die mit unendlicher Geduld und viel Glauben an mich möglich gemacht haben, dass diese Arbeit entstand und auch fertig wurde.

Mein tiefster Dank geht im Besonderen an Herrn Prof. Dr. Alois Krost, der mir die Aufgabe und die Verantwortung dieser Arbeit mit vollem Vertrauen in die Hände gegeben hat. Ohne die vielen Gespräche, Diskussionen und manchmal auch harten Kritiken wären viele Denksätze und Ideen erst gar nicht entstanden. An die Arbeit in der Arbeitsgruppe für Halbleiterepitaxie denke ich sehr gern zurück. Prof. Krost hat dort eine fabelhafte Arbeitsgruppe geschaffen, mit der jeder Arbeitstag etwas Besonderes wurde. Danke an Euch alle!

Mein herzlichster Dank geht dabei auch an Prof. Dr. Armin Dadgar für die Betreuung in Sachen Epitaxie und dass er mir seine MOCVD Anlage anvertraut hat. Dankbar bin ich Herrn Dr. Jürgen Bläsing für die unzähligen Hilfen und Empfehlungen, die unerschöpfliche Geduld und die familiäre Atmosphäre, die er in seinem k-Raum, dem Röntgenlabor, geschaffen hat. Herrn Dr. Hartmut Witte danke ich für die Unterstützung bei den elektrischen und den AFM Messungen, die extrem hilfreich für meine Arbeit waren, sowie Frau Annette Diez für die Hilfe bei der Probenpräparation, dem Tüfteln an der MOCVD-Anlage und vielen anderen Experimenten.

Ich danke Herrn Prof. Dr. Andreas Waag für die investierte Zeit, diese Arbeit zu begutachten.

Für die Unterstützung bei den PL-Messungen möchte ich mich bei Herrn Christoph Berger bedanken, sowie bei Herrn Matthias Wieneke für seine Bereitschaft bei den Röntgenmessungen. Beiden und auch Jonas Hennig und Roghaiyeh Ravash danke ich darüber hinaus für die motivierende, freundlich-kollegiale und zeitweise auch musikalische Arbeitsatmosphäre, die den Arbeitsalltag des Öfteren unvergesslich machten.

Auch Dr. André Strittmatter, Dr. Antje Reiher und Dr. Fabian Reiher danke ich für die hilfreichen Ratschläge.

Des Weiteren danke ich der Arbeitsgruppe für Festkörperphysik von Prof. Dr. Jürgen Christen für die arbeitsgruppenübergreifenden Messungen. Im Besonderen Herrn Dr. Thomas Hempel für die zahlreichen FEREM Messungen und Frau Olga August für die entsprechende Präparation. Frau Anja Dempewolf bin ich für die hilfreichen KL-Messungen und die gute und intensive Zusammenarbeit in dem gemeinsamen BMBF Projekt GaNonSi dankbar.

Herrn Dr. Peter Veit und seinen Mitarbeiterinnen Silke Petzold und Petra Kremz möchte ich für die Präparation und Anfertigung der TEM-Aufnahmen danken.

Weiterer Dank geht an die Firmen Osram Opto Semiconductors GmbH und AZZURRO Semiconductors AG, die im Rahmen des gemeinsamen Forschungsprojekts GaNonSi zahlreiche Probenstrukturen zur Charakterisierung zur Verfügung stellten.

Dem IKZ Berlin, insbesondere Herrn Toni Markurt, bin ich für die hilfreichen TEM Bilder verbunden, die ebenfalls im Rahmen des GaNonSi Projektes angefertigt wurden.

Bei der Firma LayTec AG bedanke ich mich für die hervorragende Unterstützung, insbesondere in den letzten Zügen dieser Arbeit. Unendlicher Dank gilt dabei Dr. Thomas Zettler, der mich gerade in den letzten Schlifften der Arbeit sehr unterstützte.

Nicht zu vergessen sind Herr Björn Diez, Jürgen Weißenborn und sein Werkstattteam, die mir stets hilfsbereit und aufopfernd zur Seite standen, insbesondere in Bezug auf das außerordentlich anspruchsvolle Projekt Lithografielabor, welches ich ohne ihre Hilfe niemals hätte aufbauen können.

Mein außerordentlicher Dank geht an Prof. Dr. Michael Heuken für die vielen motivierenden Worte und die aufbauende und unbezahlbare Unterstützung.

Weiterhin möchte ich mich bei all den Kollegen, die nicht explizit mit genannt werden, aber die meine täglichen Unigänge begleitet haben und einfach zu meinen 5 Jahren in der Arbeitsgruppe dazugehörten, bedanken.

Mein aufrichtigster Dank geht auch an meine engsten Freunde, Mathias Müller und Anita Glockmann. Ihr Glaube in mich und was sie mir in der Schreibzeit an Lasten abgenommen haben, ist nicht in Worte zu fassen. Ich danke euch von ganzem Herzen!

Zutiefst möchte und muss ich meinen Eltern, Angelika und Hans-Joachim Fritze, danken. Ihre Unterstützung, Liebe und ihr Stolz sind unendlich. Diese Arbeit ist genauso ihre, wie meine!

Inhaltsverzeichnis

1. Einleitung und Zielformulierung	1
2. Grundlagen und angewandte Charakterisierungsmethoden	5
2.1. Eigenschaften der Gruppe-III-Nitride	5
2.2. Metallorganische Gasphasenepitaxie	17
2.3. Röntgendiffraktometrie	19
2.4. Optische in-situ Messungen.....	31
2.5. Mikroskopische Verfahren	33
2.6. Spektroskopische Verfahren - Photo- und Kathodolumineszenz	35
3. Optimierung des Heteroübergangs Si(111) - GaN	37
3.1. Ausgangssituation zur Nukleation von Gruppe-III-Nitriden auf Si (111).....	37
3.2. Optimierungsvorgehen für die gesamte Basisstruktur.....	39
3.3. Ternäre Keimschichten.....	55
4. Defekt- und Spannungsreduktion durch Zwischenschichten im GaN	67
4.1. Ausgangssituation zu GaN Pufferstrukturen auf Si(111)	67
4.2. Grundlegendes zu Zwischenschichten in GaN Strukturen	69
4.3. Funktionsweise von Gradienten in ternären Zwischenschichten	77
4.4. Homogenitätsuntersuchungen	103
5. Hoch n-dotierte GaN-Schichten	111
5.1. Ausgangssituation zur n-Dotierung von GaN	111
5.2. Untersuchungen zur Siliziumdotierung	115
5.3. Prozessentwicklung für die Germaniumdotierung	127
6. Zusammenfassung und Ausblick	139
7. Literaturverzeichnis	143
8. Anhang	159
8.1. Lebenslauf	159
8.2. Publikationsliste.....	160
Eidesstattliche Erklärung	161

1. Einleitung und Zielformulierung

Seit Anfang der 90er Jahre bildet GaN und dessen Mischverbindungen das wohl vielversprechendste Materialsystem in der Halbleitertechnologie. Die wichtigsten neueren optoelektronischen und leistungselektronischen Bauelemente basieren auf dieser Materialklasse, weshalb die Aufmerksamkeit der Forschung auf die Gruppe-III-Nitride bis heute anhaltend ist.

GaN besitzt eine direkte Bandlücke von 3.4 eV [Chi96]. Durch die Beimengung von In oder Al kann die Bandlücke in einem breiten Bereich von 0.7 eV (InN) bis 6.2 eV (AlN) präzise variiert werden. Entsprechend kann die Emissionswellenlänge von Lichtemittern, wie Leuchtdioden (LEDs) und Laserdioden (LDs), das gesamte sichtbare Spektrum bis hin zum tiefen Ultraviolett abdecken [Car05, Yam79]. Zudem liegen im hexagonalen GaN Kristallgitter interne und spannungsinduzierte Polarisationsfelder vor, welche die Herstellung von hocheffizienten Feldeffekttransistoren mit hochleitfähigen Ladungsträgerkanälen erlauben (HEMT). Des Weiteren bietet die große Bandlücke des GaN eine hohe Durchbruchspannung und eine starke Temperaturresistenz für Hochspannungs- und Hochleistungsbauelemente [Yol12]. Zusätzlich ist GaN chemisch extrem inert und daher selbst mit Biosensoren, beispielsweise für Prothesen oder Implantate kompatibel [Rei07].

Insbesondere GaN basierte LEDs werden in wenigen Jahren die Allgemein- und Fahrzeugbeleuchtung vollständig dominieren, da sie im Vergleich zu klassischen Glühlampen bei gleicher Lichtleistung 83% Energieeinsparung ermöglichen. Zudem haben sie eine wesentlich längere Lebensdauer von mehr als 25000 Betriebsstunden [Wik14].

Seit der Jahrtausendwende sind GaN LEDs kommerziell verfügbar, die auf Saphir und SiC Substraten basieren. Jedoch ist Saphir preiswert nur in kleinen Substratdurchmessern bis zu 100 mm erhältlich. Die dadurch begrenzte Chipausbeute pro Wachstumsprozess führt zu hohen LED Preisen. Auch der Einsatz der noch teureren SiC Substrate bringt diesbezüglich keine Vorteile.

Eine hervorragende Substratalternative bietet jedoch Silizium, welches nicht nur ein kostengünstiges, sondern auch ein in der Halbleiterindustrie wohletabliertes Material ist. Si-Substrate sind zudem noch in großen Substratdurchmessern bis zu 450 mm erhältlich, besitzen eine gute Durchstimmbarkeit der elektrischen Leitfähigkeit und sind durch ihre hohe thermische Leitfähigkeit auch für die Leistungselektronik geeignet.

Die GaN-auf-Si Technologie ist daher seit mehr als 10 Jahren Gegenstand intensiver internationaler Forschung und machte gerade in den letzten 4 Jahren enorme Fortschritte. Dazu haben die Ergebnisse dieser Arbeit einen Beitrag geleistet. Zwar betrug der Anteil an GaN auf Si LEDs im Jahr 2013 erst 1%, während 95% des GaN-LED Marktes von LEDs auf Saphir dominiert wurden, jedoch wird Prognosen zufolge bis zum Jahr 2020 der Marktanteil der GaN auf Si LEDs bis zu 40% ansteigen, wobei im Wesentlichen LEDs auf Saphir im unteren Leistungsbereich abgelöst werden sollen [Cas13].

Dieser Technologiewechsel hin zu einer preislich und qualitativ wettbewerbsfähigen GaN LED auf Si kann jedoch nur dann erfolgen, wenn die nachfolgenden grundsätzlichen Hindernisse geklärt werden: Der große Unterschied der thermischen Ausdehnungskoeffizienten zwischen Si und GaN führt zu großen tensilen Verspannungen in der GaN Struktur, so dass die Schichten schon bei 1 µm Dicke reißen [Dad00]. Zusätzlich wird infolge der hohen Gitter-

fehlanpassung zwischen Substrat und Epitaxieschicht eine hohe Zahl an Versetzungen generiert, welche die Leistungsfähigkeit des finalen Bauelements schwächen.

Deshalb muss vor der eigentlichen lumineszierenden aktiven Region eine komplexe Pufferstruktur gewachsen werden, welche mit einer für die nachfolgenden aktiven Schichten optimalen Qualität (geringe Defektdichte und minimale Verspannung) abschließt. Entsprechend besitzt eine GaN LED Struktur eine Gesamtdicke von etwa 5-6 μm . Davon entfällt nur etwa 1% auf die aktiven lumineszierenden Schichten (50-100 nm), die verbleibenden 99% gehören zum LED-Unterbau (Puffer) und der oberen Kontaktierungsschicht.

Die Qualität dieses Puffers hängt empfindlich von jedem einzelnen Wachstumsschritt ab. Selbst kleinste Parameterabweichungen von den optimalen Wachstumsbedingungen führen zu unbrauchbaren Strukturen.

Daher ist es essentiell die LED Struktur sukzessive zu optimieren, woraus sich die Aufgabenstellung der hiermit vorgelegten Arbeit ableitete: Erarbeitung der GaN basierten Pufferstrukturen für LED Anwendungen auf Si-Substraten basierend auf einem umfassenden physikalischen Verständnis der Mechanismen ihrer epitaktischen Herstellung. Dabei sollte auf der Basis der neu zu entwickelnden Modellvorstellungen durch systematische Epitaxieprozess- und Strukturvariation die LED optimiert werden. Im Zuge dessen war es notwendig die zugrunde liegenden physikalischen Prozesse detailliert zu analysieren.

Zunächst werden in **Kapitel 2** die kristallographischen Grundlagen des III-Nitrid Materialsystems als auch der genutzten Herstellungs- und Charakterisierungsmethoden dargestellt und hinsichtlich der Verwendung für GaN auf Si diskutiert.

In **Kapitel 3** werden erstmals verschiedene Keimschichtkonzepte für das Wachstum auf Si-Substraten vorgestellt und umfassend untersucht. Aus den detaillierten Betrachtungen der die Koaleszenz beeinflussenden Mechanismen konnte diejenige Keimschicht identifiziert werden, die für das weitere Überwachsen die beste Materialqualität erzielt, und die für die Strukturanalyse aller nachfolgenden Teilschichten verwendet wird.

Kapitel 4 widmet sich der Spannungskompensation und Defektreduktion dünner AlN-haltiger Zwischenschichten, die oberhalb der Keimschicht in den GaN-Schichtstapel eingefügt werden. Zunächst werden Optimierungsansätze für diese Zwischenschichten auf 2[“] Si-Substraten beleuchtet, danach wird die Zwischenschichtoptimierung auf großflächige, industrietaugliche Si-Substrate erweitert und erstmals die Funktionsweise der angewandten gradierten ternären AlGaIn-Zwischenschichten in einem dazu entwickelten physikalischen Modell beschrieben.

Eine spannungs- und defektoptimierte GaN Volumenschicht muss zuletzt durch eine kontrollierte Dotierung zu einer leitfähigen optoelektronischen Bauelementstruktur vervollständigt werden. Dies wird in **Kapitel 5** dargestellt, indem zunächst die n-Dotierung mit Si mit einer tiefgreifenden physikalischen Analyse vorgestellt und die damit verbunden qualitätsmindernden Nachteile, wie zusätzliche Spannungen, herausgestellt werden. Darüber hinaus wird erstmals erfolgreich eine geeignete Alternative zum Silizium Dotanten, das Germanium, für die GaN n-Leitung vorgestellt. Dabei war es das Ziel, durch eine intensive physikalische Untersuchung des Dotiermechanismus bei moderaten und hohen Ge-Dotierungen vergleichbare elektrisch aktive Dotierkonzentrationen und Beweglichkeiten zu erreichen, ohne dass eine Spannungs- und Defektzunahme in der GaN Struktur auftritt.

Durch das in dieser Arbeit gewonnene tiefgreifende physikalische Verständnis zur Realisierung einer hochentwickelten GaN-Pufferstruktur auf großflächigen Si-Substraten wird die Basis für die Herstellung effizienter industrieller LED Strukturen mit maximaler Lichtausbeu-

te geschaffen. Die eingangs als Ziel definierte kostengünstige Substrat-Alternative zum Saphir wurde damit klar und wirtschaftlich relevant aufgezeigt. Die hier entwickelten und in den nachfolgenden Kapiteln beschriebenen Struktur- und Epitaxieprozess-Optimierungen bilden dabei die physikalische-technische Grundlage und die Motivation für die zukunftsnahe Markttablierung von GaN auf Si LEDs.

2. Grundlagen und angewandte Charakterisierungsmethoden

In diesem Kapitel werden die fundamentalen Eigenschaften der nitridischen Halbleiterverbindungen sowie deren Herstellungsprozess, die metallorganische Gasphasenepitaxie, umrissen. Darüber hinaus werden die angewandten Analysemethoden mit den zugehörigen Messapparaturen vorgestellt, welche für die Untersuchung der hergestellten Strukturen zum Einsatz kommen. Dabei handelt es sich teilweise um intern durchgeführte Untersuchungen mit Schwerpunkt auf der röntgenografischen Analyse, und teils externen Betrachtungen, wie die Transmissionselektronenmikroskopie, welche eine hervorragende bildgebende Ergänzung zu den Röntgenmessungen darstellt.

2.1. Eigenschaften der Gruppe-III-Nitride

2.1.1. Kristallstruktur und lokale Polarisationsfelder

Die Gruppe-III-Nitride sind Verbindungshalbleiter, die sich aus einem oder mehreren Elementen der 3. Hauptgruppe (B, Al, Ga, In) und Stickstoff (N) aus der 5. Hauptgruppe zusammensetzen. GaN, AlN, InN und ihre ternären und quaternären Mischphasen (Al,Ga,In)N kristallisieren unter Standardwachstumsbedingungen in der thermodynamisch stabilen Wurtzitstruktur, siehe Abb. 2.1. Ein Phasenübergang zur instabilen Steinsalzstruktur findet nur unter hohen Drücken ≥ 50 GPa statt. Die kubische Zinkblende-Struktur ist metastabil und kann unter Verwendung von Heterosubstraten mit kubischer Kristallstruktur, z.B. Si oder GaAs erreicht werden [Gil99]. Das seltene Bornitrid (BN) kristallisiert üblicherweise, abweichend von den anderen Gruppe-III-Elementen, stabil in der Zinkblendestruktur. Für die opto- und leistungselektronischen Bauelementanwendungen sind ausschließlich die nitridischen Verbindung mit Al, In und Ga von Interesse.

Die Wurtzitstruktur besitzt eine hexagonale Einheitszelle mit zwei Gitterkonstanten a und c , deren Verhältnis im idealen Gitter $u=c/a=\sqrt{8/3}=1.633$ beträgt. a beschreibt den kleinsten Abstand zweier gleicher Atome, die in der hexagonalen Grundfläche, der Basalebene, liegen, c ist der Abstand zweier übereinanderliegender gleicher Atome senkrecht zur Grundfläche. Die Mantelfläche des Kristalls setzt sich aus den 6 Prismenflächen zusammen. Der dimensionslose Parameter u beschreibt die N-Ga-Bindungslänge entlang der hexagonalen c -Achse, durch welchen eine Abweichung vom idealen Wurtzitgitter mit identischen Bindungslängen deutlich wird. Das Gitter besteht aus zwei hexagonal dichtest gepackten (hcp) Gallium- und Stickstoffuntergittern, die entlang der c -Achse um $3/8$ gegeneinander verschoben sind [Pan98].

Die Symmetrie der Wurtzitstruktur ist durch die Raumgruppe $P6_3mc$ festgelegt. Die hexagonale Einheitszelle des Wurtzitgitters besteht aus drei primitiven Elementarzellen, durch die die vier Basisvektoren definiert werden, siehe Abb. 2.1 (b).

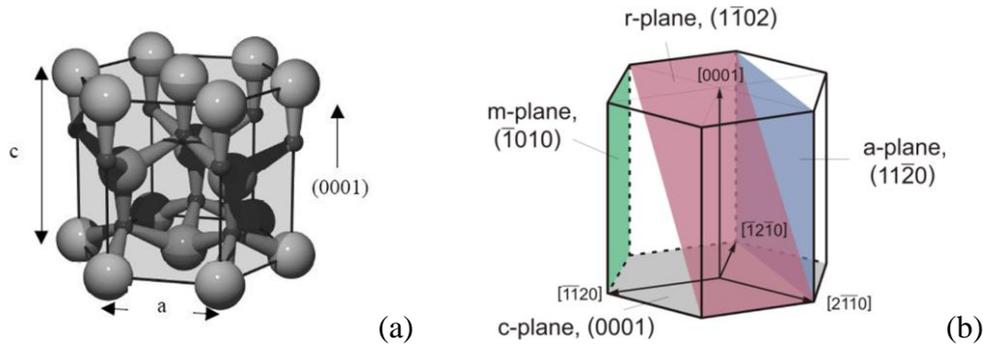


Abb. 2.1: Wurtzitstruktur der Gruppe-III-Nitride (a). Entsprechend der Atomradien, stellen die großen Kugeln den Stickstoff und die kleinen Kugeln die Elemente der 3. Hauptgruppe (Al, Ga, In) dar. [Kuh02]. In der Einheitszelle (b) sind die allgemein verwendeten Gitterflächen mit der entsprechenden Nomenklatur farblich gekennzeichnet [Rei12].

Die Basalebene wird durch die Basisvektoren a_1 , a_2 und a_3 aufgespannt, senkrecht dazu steht der a_4 Vektor, welcher gleichbedeutend mit der c -Achse ist. Durch die vier Basisvektoren ist folglich eine Millersche Vierer-Indizierung $[h\ k\ i\ l]$ für die kristallographische Orientierung notwendig, bei der die folgende Abhängigkeit gilt: $i = -(h + k)$. Für häufig betrachtete Netzebenen wird die kristallographische Indizierung durch Buchstaben (r, m, a etc.) vereinfacht, die für alle äquivalenten Flächen gelten, siehe auch Abb. 2.1 (b).

Die Gitterkonstanten der drei gängigen binären Nitridverbindungen sind in Tabelle 2.1 aufgeführt. Weil in der Röntgendiffraktometrie vorzugsweise mit reziproken Gitterparametern gearbeitet wird, sind die Gitterkonstanten zusätzlich in die dazugehörigen reziproken Gitterwerte umgerechnet. Dies erleichtert in den experimentellen Ergebnissen die Zuordnung der Röntgenreflexe.

Tabelle 2.1: Gitterkonstanten a und c der binären Gruppe-III-Nitride und deren reziproken Gitterwerte, die im Speziellen in der Röntgendiffraktometrie zur Anwendung kommen [Vur03].

Verbindung	AlN		GaN		InN	
	d (Å)	q (1/nm)	d (Å)	q_z (1/nm)	d (Å)	q_z (1/nm)
Gitterkonstante c	4.982	2.0072	5.185	1.9286	5.703	1.7535
Gitterkonstante a	3.112	3.2134	3.189	3.1358	3.545	2.821
c/a Verhältnis	1.6009		1.6259		1.6087	

Ein Merkmal der nitridischen Wurtzitstruktur sind die spontanen Polarisationsfelder entlang der c -Achse. Aufgrund der höheren Elektronegativität des Stickstoffs innerhalb der kovalenten Ga-N Bindung wird die negative Ladung stärker am Stickstoffatom lokalisiert, wodurch sich ein Dipolfeld ausbildet, welches innerhalb der Basalebene aufgrund der Symmetrie kompensiert wird. Entlang der c -Achse bleibt allerdings ein elektrisches Dipolfeld bestehen, die sogenannte spontane Polarisation \vec{P}_{sp} , deren Feldrichtung von der Oberflächenterminierung des Untergitters abhängt. GaN Schichten, die mittels der metallorganischen Gasphasenepitaxie (MOCVD) auf Saphir- oder Siliziumsubstraten unter Verwendung einer Nukleationsschicht abgeschieden werden, sind im Allgemeinen Ga-polar und besitzen eine positive Feldrichtung $P_{\bar{c}} = \text{GaN}[0001]$. Im realen Gitter kommen noch mechanische Verformungen durch Verspannungen hinzu, die das Gitter zusätzlich dehnen oder stauchen. Somit wird das intrinsische Dipolfeld um einen weiteren Beitrag, der piezoelektrischen Polarisation \vec{P}_{pz} , verstärkt

bzw. geschwächt. In einer Struktur bestehend aus mehreren verspannten Schichten verschiedener Nitridvariationen akkumulieren sich die Polarisationsfelder zu einem internen elektrischen Kristallfeld [Amb99]. Bei c-orientiertem Wachstum ist die Verstärkung der Polarisationsfelder aufgrund der Feldausrichtung parallel zur c-Achse am größten. In der Leistungselektronik wird der Polarisierungseffekt für die Ausbildung eines hoch leitfähigen Elektronenkanals (2DEG) ausgenutzt [Kuh09, Asb97]. In der Optoelektronik allerdings führen die Felder zu einer Verringerung der Leuchteffizienz, da die Quantentröge der aktiven Zone verformt werden und dadurch der Überlapp der Wellenfunktionen von Elektronen und Löchern delokalisiert und die Wahrscheinlichkeit einer strahlenden Rekombination verringert wird. Dieses Phänomen ist als Quantum Confined Stark Effect (QCSE) bekannt [Mil84, Tak97, Fen07]. c-planare GaN LEDs auf Saphir besitzen aktuell eine EQE von 78% [Nak10], wobei der QCSE die Effizienz nicht maßgeblich beeinträchtigt. Vergleichsweise dazu liegen die Bestwerte von c-GaN basierten LEDs auf Silizium bei 65% EQE [Ber13]. Die Verminderung der piezoelektrischen Kristallfelder kann durch semi- oder unpolares GaN Wachstum erreicht werden, wodurch die Leuchteffizienz angehoben wird. Dieses Konzept wird bereits von der Firma Seoul Semiconductor kommerziell umgesetzt, wobei externe Quanteneffizienzen (EQE) bereits bei 63% liegt [Seo12].

2.1.2. Kristalldefekte

Während der epitaktischen Herstellung von Gruppe-III-Nitriden bauen sich verschiedene Kristalldefekte ein, die die Materialqualität herabsetzen und schließlich zu einer verringerten Leistungsfähigkeit des resultierenden Bauelements führen. Die häufigsten Defekte bei c-orientierten Nitriden sind Linienversetzungen, Punktdefekte [Wal04, Sun02] und Korngrenzen. Inversionsgrenzen tauchen nur selten auf und sind im Wesentlichen kontrollierbar [Rom96, Liu08].

Bei semipolarem GaN nehmen zusätzlich noch Stapelfehler ein beachtlicheres Gewicht ein, während sie im c-orientierten GaN vernachlässigbar selten auftauchen [Rav12]. Stapelfehler sind Flächendefekte, die aufgrund einer Änderung der Stapelfolge durch eine Phasenänderung, z.B. vom kubischen zum hexagonalen Gitter, entstehen können [Hir68, Ruv98, Lil95].

Exotische und selten auftauchende Defekte, wie Nanoröhren, Mikrozwillinge und Pyramiden-defekte und werden hier nicht weiterbetrachtet [Edg94, Gil98, Che97, Lil95, Lil96, Lil97].

Der Grund für das defektreiche Wachstum des GaN ist die hohe Gitterfehlpassung zwischen GaN bzw. der Nukleationsschicht (meist AlN) und dem Heterosubstrat. Zu Si(111) beträgt die Gitterfehlpassung von GaN 17%. Mit einer AlN Nukleation darunter steigt die Gitterfehlpassung zwischen der ersten Nitridschicht und dem Siliziumsubstrat auf 19%, was zu einer erhöhten Anzahl von Anpassungsversetzungen führt. Die Anpassungsversetzungen befinden sich ausschließlich an der Grenzfläche zweier, verschiedener, aufeinanderliegender Gitter und sind das Resultat eines spannungsarmen Aufeinanderwachsens. Sie besitzen im Wesentlichen einen vernachlässigbaren Einfluss auf das Bauteilverhalten [Rut01]. Vertikal laufende Linienversetzungen dagegen, die vielmehr unter dem englischen Begriff „threading dislocations“ (durchstoßende Versetzungen) bekannt sind, haben dagegen einen enormen Einfluss auf die Bauteileigenschaften und besitzen einen nur geringen Einfluss auf die Spannungsrelaxation im Kristall. Es wird vermutet, dass die Entstehung der „threading dislocations“ von den Anpassungsversetzungen abhängt. Je mehr Anpassungsversetzungen vorhan-

den sind, desto mehr threading dislocations werden daraus auch gebildet. Deswegen ist das möglichst gitterangepasste Wachstum von essentieller Bedeutung für eine insgesamt defektarme Materialherstellung. Des Weiteren spielen die vertikal laufenden Versetzungen eine wesentliche Rolle bei der Ladungsträgerrekombination. Zum einen können Ladungsträger durch diese Defekte eingefangen werden (trapping) und nichtstrahlend rekombinieren, wobei 65-85% der elektrischen Leistung in Wärme verloren geht [Efr05]. Zum anderen erzeugen GaN-basierte Leuchtdioden mit hoher Liniendefektdichte im Bereich 10^8 - 10^{10} cm^{-2} zusätzlich Licht bei längerer Wellenlänge, die als gelbe Lumineszenz oder auch Defektlumineszenz bekannt ist. Entsprechend emittiert die Diode schwächer bei der Zielwellenlänge, da geladene Defektkerne mit den ankommenden Ladungsträgern strahlend rekombinieren [Pon96] oder als geladene Streuzentren wirken, die die Ladungsträgermobilität beeinträchtigen [Wei98]. Weiterhin wirken Liniendefekte als leitfähiger Kanal für unerwünschte Leckströme und auch als Diffusionspfad für den Akzeptor Mg, was zusätzlich effizienzmindernde Einflüsse sind [Mat01].

Sowohl die Anpassungsversetzungen, als auch die durchstoßenden Versetzungen sind linienförmige Defekte, die durch den Verlauf der Versetzungslinie \vec{l} und der Richtung des Burgers-Vektors \vec{b} relativ zur Versetzungslinie definiert sind. Es werden drei Typen von Linienversetzungen unterschieden: reine Stufenversetzungen, oder auch a-Typ Versetzungen genannt, deren Burgers-Vektor $\vec{b} = \frac{1}{3} \langle 11\bar{2}0 \rangle$ entspricht, reine Schraubenversetzungen (c-Typ Versetzungen, mit $\vec{b} = \langle 0001 \rangle$ und gemischte Versetzungen (a+c-Typ Versetzungen, $\vec{b} = \frac{1}{3} \langle 11\bar{2}3 \rangle$). Abb. 2.2 veranschaulicht den Verlauf der entsprechenden Versetzungslinie und den dazugehörigen Burgers-Vektor [Sie98].

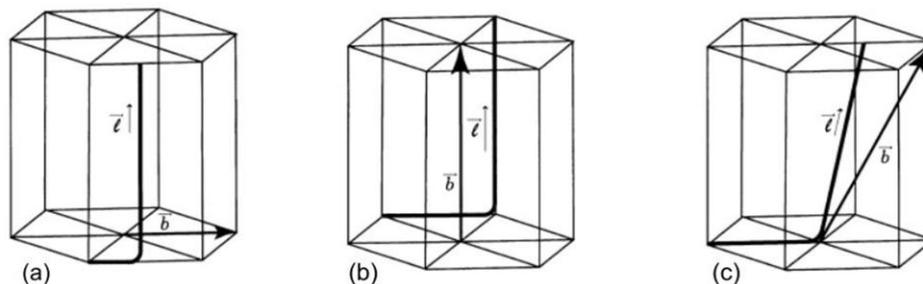


Abb. 2.2: GaN Einheitszelle mit einer (a) reinen a-Typ Versetzung (Stufenversetzung), (b) reinen c-Typ Versetzung (Schraubenversetzung) und (c) gemischter Versetzung, die als einzige Versetzung nicht entlang der $[0001]$ -Richtung verläuft, sondern schräg (abgeknickt) durch die Einheitszelle verläuft [Mat01].

Während bei den Stufenversetzungen die Versetzungslinie senkrecht auf dem Burgers-Vektor steht (Abb. 2.2 (a)), verlaufen diese bei den Schraubenversetzungen parallel (Abb. 2.2 (b)). Bei den gemischten Versetzungen variiert der Winkel zwischen Versetzungslinie und Burgers-Vektor zwischen 0° und 90° (Abb. 2.2 (c)). Die gemischten Versetzungen sind die einzigen Versetzungen mit einer abknickenden Linienrichtung relativ zur Basalebene.

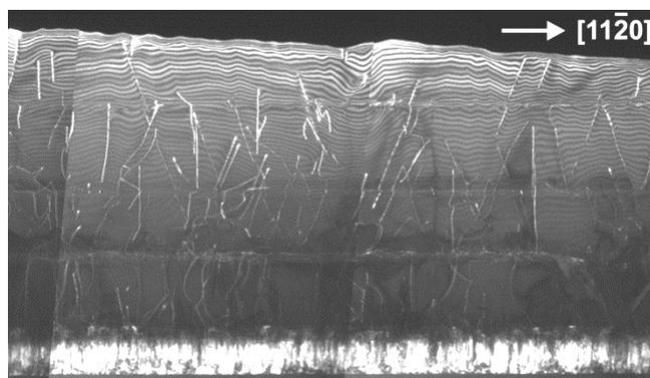
Die gemischten Versetzungen können zudem mit anderen Versetzungen reagieren. Zwei aufeinander treffende Versetzungen können beispielsweise die Richtung ihrer resultierenden Versetzungslinie ändern, wodurch sich das Verhältnis zwischen Stufen- und Schraubenanteil verschiebt. Ist der Burgervektorbetrag zweier entgegengerichteter Versetzungen gleich, löschen

sich diese Versetzungen sogar aus (annihilieren). Das Abknicken wird durch ändernde bzw. zunehmende Spannungen im Kristall begünstigt. Zusätzlich besitzen Versetzungen ein eigenes Spannungsfeld, welches das Zusammenlaufen und Auslöschen zusätzlich fördert. Aus diesem Grund wird die Kristallqualität mit wachsender GaN Schichtdicke besser.

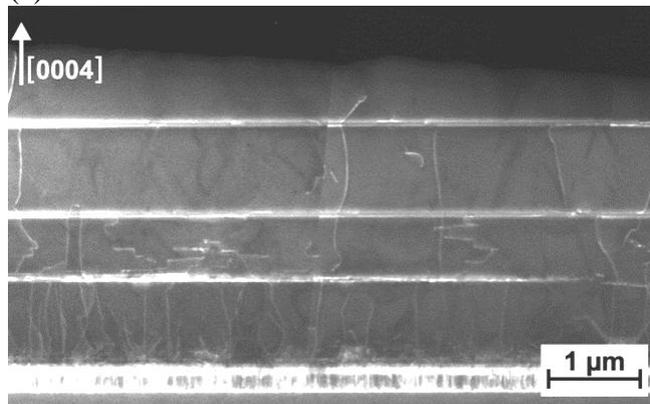
Neben dem Abknicken können Versetzungen auch entlang der $\{0001\}$ -Basalebene gleiten. Die im GaN aktiven Gleitebenen sind die $\{11\bar{2}0\}$ - und die $\{10\bar{1}0\}$ -Ebenen für die Stufen- und Schraubenversetzungen und die $\{1\bar{1}01\}$ -Ebenen für die gemischten Versetzungen [Hir68].

Eine Defektreduktion wird durch die Wechselwirkung von abknickenden Versetzungen durch Klettern und Gleiten entlang der Gleitebenen insbesondere innerhalb der ersten 100 nm bewirkt [Rom97, Haw06, Nar01, Mor09].

Die Versetzungen mit c-Komponente, d.h. die Schrauben- und die gemischten Versetzungen besitzen eine höhere Energie aufgrund der höheren Translation entlang der c-Achse. a-Typ Versetzungen hingegen besitzen eine geringere Energie und sind deshalb nicht maßgeblich am Reaktions- und Annihilationsprozess beteiligt. Sie treten im GaN vermehrt auf und sind die wesentlichen Problemdefekte [Mor09]. So beträgt der Stufenversetzungsanteil in einer 1 μm MOVPE-GaN Schicht auf Saphir etwa 40%; nach 5 μm beträgt der Anteil sogar 70% oder mehr [Wu96]. Schraubenversetzungen sind nur zu einem geringen Anteil zwischen 1-10% in MOVPE gewachsenem GaN vorzufinden [Dat04, Xin98]. Auf Si Substraten liegt die Schraubenversetzungsdichte je nach Materialqualität bei etwa 10-20% der Gesamtdefekte [Mar11]. Der Anteil der gemischten Versetzungen schwankt mit der Schichtdicke aufgrund der Versetzungsreaktionen und liegt im initialen Schichtwachstum bei etwa 68% [Xin98].



(a)



(b)

Abb. 2.3: TEM Dunkelfeldaufnahme an der Bruchkante einer GaN Template Struktur unter zwei verschiedenen Beugungsbedingungen zur Sichtbarmachung der vertikalen Liniendefekte. In TEM-Bild (a) sind alle Defekte sichtbar, deren Burgers Vektor eine a-Komponente enthalten. Die Aufnahme (b) zeigt alle Defekte, deren Burgers-Vektor eine c-Komponente besitzen. Gemischte Versetzungen, die sowohl einen Stufen- als auch einen Schraubenversetzungsanteil besitzen, tauchen in beiden Bildern als Kontrast an derselben Position auf [Mar11].

Außerdem können Versetzungen bei energetisch günstigen Spannungsverhältnissen auch in

Partialversetzungen aufspalten, wobei der Burgers-Vektor einer Partialversetzung immer kleiner als der Gittervektor ist. Nähere Details zu diesem Versetzungstyp sind in der Arbeit von Hirth et al. nachzulesen [Hir68].

Kürzlich wurde die Beweglichkeit von Versetzungen durch Vakanz assistiertes Klettern bei hohen Temperaturen ($< 1000^\circ\text{C}$) suggeriert, wodurch sowohl Versetzungen reduziert als auch Spannungen abgebaut werden sollen [Mor10]. Allerdings konnte diese Theorie bislang nicht fundiert bewiesen werden, denn in hexagonalen Kristallen existieren, anders als in kubischen Kristallen, keine Scherkräfte, die die Beweglichkeit von Versetzungen voraussetzen [Nin96].

Mithilfe der Analyse der Transmissionselektronenmikroskopie (TEM) an der Bruchkante können die verschiedenen Versetzungstypen sichtbar gemacht und dadurch qualitativ und quantitativ bestimmt werden. Abb. 2.3 zeigt eine solche Bruchkanten TEM Aufnahme, die unter zwei verschiedenen Beugungsbedingungen aufgenommen wurde. Im oberen Bild sind alle Versetzungen mit einer a -Komponente, im unteren Bild alle Versetzungen mit c -Komponente sichtbar. Tauchen in beiden Beugungskontrasten dieselben Linienversetzungen auf, handelt es sich um gemischte Versetzungen. Enden Linien der TEM Abbildungen inmitten der Struktur bzw. werden sie nicht von einer Zwischenschicht geblockt, laufen die Defekte aus der Bildebene heraus (nach vorn oder nach hinten).

Die Entstehung der threading dislocations wird derzeit in 2 Modellen kontrovers diskutiert. Ein möglicher Ansatz ist die Entstehung durch die GaN Inselkoaleszenz während des initialen Kristallwachstums, wobei die Linienversetzungen an den Grenzen der anfänglich zusammenwachsenden GaN Inseln geformt werden [Nin96, Wu98, Fin98, Ben10]. Diese Inseln bilden einzelne Kristallitblöcke, die eine leichte Verkipfung und Verdrehung zueinander besitzen und durch defektreiche Korngrenzen voneinander getrennt sind, wie es in Abb. 2.4 illustriert ist. Die Kristallitverkipfung bzw. -verdrehung wird auch als Tilt bzw. Twist bezeichnet. Die an den Korngrenzen gehäuften Defekte haben ihre Ursache in den Anpassungsversetzungen, die am spannungsarmen Materialübergang der darunterliegenden Schicht gebildet werden. Koaleszieren die leicht zueinander misorientierten Inseln, kann die Versetzungslinie der Anpassungsversetzungen nicht in der benachbarten Insel weitergeführt werden, da die dazugehörigen Gitterebenen im angrenzenden Kristallit nicht mehr ineinander übergehen. Folglich knicken die Anpassungsversetzungen bei verdrehten GaN Inseln ab und bilden in den Kleinwinkelkorngrenzen Stufenversetzungen (Abb. 2.4). Schraubenversetzungen werden durch verkippte Inseln gebildet und gemischte Versetzungen bei koaleszierenden Inseln, die sowohl verkippt, als auch verdreht sind.

Die Bildung der vertikalen Linienversetzungen an den Kleinwinkelkorngrenzen der GaN

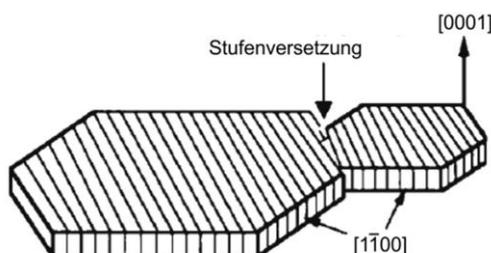


Abb. 2.4: Schematische Darstellung einer Korngrenze zwischen zwei koaleszierenden GaN Wachstumsinseln. Die Kristallite sind gegeneinander um die c -Achse ($[0001]$) verdreht und bilden eine Stufenversetzung zwischen den Inselgrenzen [Nin95]

Kristallitblöcke ist unter dem Namen „Mosaikblockmodell“ bekannt [Nin96]. Dabei kann der Winkel zwischen den Kristallkörnern zwischen $0.1 - 1^\circ$ betragen. Das Mosaikblockmodell wurde anhand von dicht angeordneten Liniendefektnetzwerken (Liniendefekt-Clustern) in der Aufsicht-TEM Analyse an Korngrenzen nachgewiesen [Wu98, Kwo05]. Je nach Art der Fehlorientierung kann das Versetzungsnetzwerk aus einem reinen Stufen- oder Schraubenversetzungsnetzwerk bestehen. Im Allgemeinen sind die Kristallitblöcke sowohl zueinander verkippt als auch verdreht, weshalb ein Mischnetzwerk aus beiden Versetzungstypen vorliegt [Rod07].

Narayanan et al. schlugen alternativ zum Mosaikblockmodell das „Nukleationsmodell“ vor, indem sie TEM Aufnahmen von GaN Schichten vor und nach der Inselkoaleszenz anfertigten und verglichen. Sie beobachteten im Gegenteil eine hohe Defektbildung von Stufen- und Schraubenversetzungen innerhalb der initialen GaN Inseln an stark gestörten Bereichen, die sich in der Nähe der Substrat/GaN Grenzfläche befinden [Nar01]. Im Nukleationsmodell bilden sich die vertikalen Linierversetzungen innerhalb der GaN Inseln aus Klettersegmenten von Basalflächenstapelfehlern (BSF). Diese werden innerhalb der GaN Nukleation aufgrund eines anfänglich kubischen GaN Wachstums gebildet, welches schließlich in das hexagonale Kristallwachstum übergeht und eine Änderung der Stapelfolge mit sich bringt. Mit voranschreitender Koaleszenz werden die Basalflächenversetzungen auch an den Seitenfacetten der Inseln beobachtet, aus denen schließlich die gemischten Versetzungen hervorgehen.

Das Nukleationsmodell wurde durch weitere AFM Analysen untermauert, in denen die Defektdichte innerhalb der Inseln gleich bzw. sogar größer war als die an den Korngrenzen [Oli06, Oli06a]. Allerdings wird vorwiegend hexagonales GaN im anfänglichen Schichtwachstum beobachtet, insbesondere bei Verwendung einer AlN Keimschicht. Deshalb ist die Anwendbarkeit des Nukleationsmodells auf GaN mit AlN-haltigen Keimschichten unsicher.

Einen ausführlichen Überblick über die Merkmale beider Modelle liefern Moram et al. anhand von Röntgen- und TEM Untersuchungen. Sie beobachteten sowohl die nach dem Koaleszenzmodell (Mosaikblockmodell) zu erwartende Defektnetzwerkbildung von vorwiegend a-Typ Versetzungen als auch die Präsenz von zufällig verteilten Versetzungen innerhalb der GaN-Kristallitinseln noch vor der GaN Inselkoaleszenz. Welches der beiden Modelle die tatsächlich dominierenden Mechanismen der TD-Entstehung beschreibt, ist derzeit noch nicht vollständig geklärt. Abhängig von der angewandten Untersuchungsmethode findet das Nukleationsmodell vorwiegende in der TEM Analyse Gültigkeit. Das Koaleszenzmodell favorisiert dagegen die Röntgenuntersuchungen.

Nachweislich führen Defektreduktionen zu einer Erhöhung der Leuchteffizienz, weshalb in den letzten Jahren bis heute gezielt an Methoden zur Defektreduktion im GaN geforscht wurde. Genutzt werden dabei beispielsweise der Wechsel der Wachstumsbedingungen (Temperatur, Druck) [Nak91, Ven97, Fig00], das Einfügen einer SiN Maskierung [Lah99, Kap07, Tan00, Pak04], die Anwendung von ELOG Strukturen [Gib04] oder das Einfügen von Al(Ga)N Zwischenschichten [Dad00]. Ein weiterer Ansatz ist die Herstellung von dicken GaN ($> 300\mu\text{m}$) Volumenkristallen mit Hilfe des HVPE Verfahrens, welches heutzutage bereits kommerzialisiert Anwendung findet, allerdings noch nicht für die Herstellung großflächiger GaN Substrate mit $>100\text{ mm}$ [Ben10]. Die Ammonothermal-Synthese ist ebenfalls eine Methode bei der unter Hochdruckatmosphäre ($>3000\text{bar}$) bei etwa 600°C defektarme GaN Einkristalle gezüchtet werden [Sch11].

Bei heteroepitaktisch hergestelltem GaN ohne die genannten defektreduzierenden Behandlungen und abhängig von der Schichtdicke betragen die Defektdichten zwischen 10^8 - 10^{10} cm^{-2} [Nak98]. Dennoch ist bei derart hohen Defektkonzentrationen immernoch eine gute Leuchteffizienz des GaN zu beobachten. Nach einem Modell von Karpov und Makarova, in dem die quantitative GaN-Lichtemission als Funktion der nichtstrahlenden Ladungsträgerrekombinationen an Liniendefektkernen berechnet wurde, müsste die Defektdichte bis mindestens 10^7 cm^{-2} reduziert werden um eine Effizienz von nahezu 100% zu erreichen [Kar02]. In Abb. 2.5 ist veranschaulicht, wie sich die Defektdichte mit zunehmender GaN Schichtdicke auf Saphir ohne defektreduzierende Behandlung verringert.

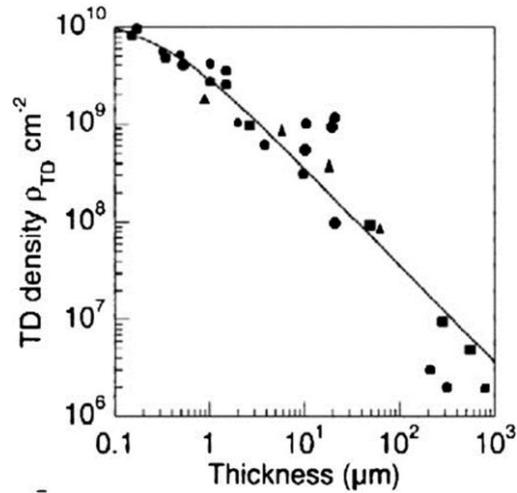


Abb. 2.5: Zusammenhang zwischen GaN Dicke und der TD-Versetzungsdichte aus den Messdaten von [Gib04, Mat01, Lee01, Mor01].

2.1.3. Verzerrungen und Spannungen im GaN

Bei der Heteroepitaxie wird die GaN Schicht auf ein Fremdsubstrat, wie beispielsweise Saphir, SiC, Si oder auf ein GaN-basiertes Template aufgewachsen. Im Gegensatz zur idealen Heteroepitaxie, bei der Substrate und Epitaxieschicht sowohl bezüglich der Gitterkonstanten als auch Kristallorientierung übereinstimmen, gibt es beim GaN zwischen der Epitaxieschicht und dem Substrat stets eine Gitterfehlpassung, die dazu führt, dass das aufwachsende GaN verspannt ist. Ferner passt sich das Gitter der Epitaxieschicht infolge einer hohen Gitterfehlpassung nicht vollständig dem Substratgitter an, wodurch vermehrt Anpassungsversetzungen an der Grenzfläche entstehen (siehe Abschnitt 2.1.2). Das Aufeinanderwachsen verschiedener Schichten mit unterschiedlichen Materialparametern ist demzufolge immer ein Kompromiss zwischen Verspannung und Defektdichte.

Wird der Kristall elastisch verformt, so nimmt er seinen ursprünglichen Zustand wieder ein, sobald die verformende Wirkung nachlässt. Im Rahmen der allgemeinen Elastizitätstheorie kann somit der Zusammenhang zwischen der auf den Kristall einwirkenden Spannung und der daraus resultierenden Verzerrung (Dehnung oder Stauchung) gebildet werden. Sind die Verformungen klein und reversibel gilt zwischen der Spannung und der Verzerrung nach dem Hook'schen Gesetz die folgende Beziehung:

$$\sigma_{ij} = C_{ijkl}\varepsilon_{kl} \quad \text{mit } i, j, k, l \in \{1,2,3\} \quad (2.1)$$

Folglich ist jede Komponente des Spannungstensors σ_{ij} über die elastischen Konstanten C_{ijkl} mit den Komponenten des Verzerrungstensors ε_{kl} verknüpft, weshalb es sich bei dem Elastizitätstensor C_{ijkl} um einen Tensor 4. Stufe handelt. Die Diagonalelemente des Spannungstensors (Verzerrungstensors) charakterisieren die lineare Kristalldehnung bzw. -stauchung, alle anderen Komponenten beschreiben die Scherspannung (Scherverzerrung). Da sowohl Spannungs- als auch Verzerrungstensor symmetrisch sind, ist der Elastizitätstensor invariant gegenüber Vertauschung von i, j und k, l [Nye85]. Das bedeutet gleichzeitig, dass es im Wurtzitkristall keine Scherkräfte gibt.

Das Koordinatensystem ist in dieser Betrachtung derart orientiert, dass die z -Achse parallel zur $[0001]$ -Richtung des hexagonalen Kristalls ausgerichtet ist. In der Regel sind c -orientierte GaN Epitaxieschichten, die mittels des MOCVD Verfahrens hergestellt wurden, biaxial verspannt [Kir00]. Das bedeutet, dass die Verspannung isotrop in der Basalebene vorliegt und die Spannungskomponente in der $[0001]$ -Wachstumsrichtung verschwindet. Daraus folgt:

$$\sigma_1 = \sigma_2 \neq 0, \sigma_3 = 0 \quad (2.2)$$

Die sich aus der Verspannung ergebende Verzerrung des Kristalls wird über die relative Dehnung der Gitterkonstanten zum relaxierten Gitter (a_0, c_0) gemäß:

$$\varepsilon_1 = \varepsilon_2 = \frac{a-a_0}{a_0}, \varepsilon_3 = \frac{c-c_0}{c_0} \quad (2.3)$$

beschrieben. Ist die Verzerrung (ε_1) negativ, ist die Kristallzelle gestaucht und somit kompressiv verspannt. Ist ε_1 positiv, ist der Kristall in der Basalebene gedehnt und demnach tensil verspannt. Bei der biaxialen Verspannung des Wurtzitkristalls ergibt sich aus Gleichung (2.3),

dass Gitterkonstante der Basalebene und der Prismenebene über die elastischen Konstanten in einem festen Verhältnis zueinander stehen:

$$\varepsilon_3 = -2 \frac{c_{13}}{c_{33}} \varepsilon_1 \quad (2.4)$$

Die Größe dieses Verhältnisses wird über das sogenannte Poissonverhältnis ν definiert, welches sich aus den materialspezifischen elastischen Konstanten ergibt [Kis96]:

$$\nu = \frac{\varepsilon_3}{\varepsilon_3 - 2\varepsilon_1} = \frac{c_{13}}{c_{13} - c_{33}} \quad (2.5)$$

Ist die Poissonzahl bekannt, kann bei einem biaxial verspannten Kristall aus der Verzerrung der a-Gitterkonstanten der dazugehörige c-Gitterwert berechnet werden und andersherum. Allerdings schwanken die theoretisch berechneten und auch die experimentell bestimmten Werte für das Poissonverhältnis relativ stark zwischen 0.14 und 0.37 [Kro03]. Für die in dieser Arbeit berechneten Spannungswerte wurde ein Poissonverhältnis von 0.21 angenommen, welches sich aus den elastischen Konstanten aus Tabelle 2.2 ergibt.

Tabelle 2.2: Elastische Konstanten und die dazugehörigen biaxialen Module für GaN und AlN Filme, entnommen aus [Rum05]

	C11 (GPa)	C12 (GPa)	C13 (GPa)	C33 (GPa)	C44 (GPa)	Mf (GPa)
GaN	390	145	106	398	105	478
AlN	410	140	100	390	120	499

Ist die Epitaxieschicht (f) biaxial verspannt, so ist die Spannung in der Basalebene gleichmäßig verteilt. Dadurch lässt sich der Elastizitätstensor, welcher jede Dehnungskomponente mit einer Spannungskomponente verbindet, zu dem sogenannten biaxialen Modul M_f vereinfachen:

$$M_f = C_{11} + C_{12} - \frac{c_{13}^2}{c_{33}} \quad (2.6)$$

und zwischen Verzerrung und Spannung in der Basalebene der folgende Zusammenhang bilden:

$$\sigma_f = M_f \varepsilon_f. \quad (2.7)$$

Im Laufe dieser Arbeit wurden die Verspannungen für dicke GaN Schichten nach Gleichung (2.8) bestimmt. Die dafür notwendigen Gitterparameter zur Berechnung der basalen Verzerrung wurden mittels hochauflösender Röntgenbeugung im streifenden Einfall gemessen (siehe Abschnitt 2.3).

2.1.4. Intrinsische und extrinsische Spannungsanteile

In Abhängigkeit von der Zahl der Gitterfehlpassung und den gewählten Wachstumsparametern werden drei Wachstumsverhalten der aufzuwachsenden Schicht unterschieden:

- a) **vollverspanntes Wachstum (pseudomorph):** die Epitaxieschicht nimmt vollständig die Gitterkonstante des darunterliegenden Substrats an, es entstehen keine Anpassungsversetzungen aufgrund des fehlerfreien und nahtlosen Gitterübergangs.
- b) **teilrelaxiertes Wachstum:** die Epitaxieschicht nimmt nur teilweise die Gitterkonstante des darunterliegenden Substrats an, Anpassungsversetzungen werden an den Stellen gebildet, an denen der nahtlose Gitterübergang unterbrochen ist und die aufgebaute Spannungsenergie die Energie zur Bildung einer Versetzung übersteigt.
- c) **relaxiertes Wachstum:** die Epitaxieschicht wächst mit ihrer natürlichen Gitterkonstante auf dem Substrat auf, da die aufgebaute Spannungsenergie dazu führt, dass die Schicht ihr natürliches Gitter annimmt, wobei Anpassungsversetzungen an der unteren Grenzfläche gebildet werden. Es gibt außer der Orientierung keine Korrelation der übereinanderliegenden Gitter mehr.

Je nachdem, ob die GaN Schicht bezüglich ihrer nativen Gitterkonstanten a_0 gestaucht oder gestreckt wird, spricht man von kompressiver ($a < a_0$) oder tensiler Verspannung ($a > a_0$). Entsprechend ändert sich der Gitterabstand c in Wachstumsrichtung.

Beim Abkühlen von Prozesstemperatur auf Raumtemperatur ziehen sich Epitaxieschicht und Substrat infolge der verschiedenen lateralen thermischen Ausdehnungskoeffizienten unterschiedlich stark zusammen. Die dabei aufgebaute thermisch induzierte Spannung gehört zu den extrinsischen Spannungseinflüssen. Im Gegensatz zum GaN Wachstum auf Saphir ist der laterale thermische Ausdehnungskoeffizient des GaN größer als der des Siliziumsubstrats. Während des Abkühlprozesses zieht sich die GaN Schicht stärker als das Silizium zusammen, wodurch sich eine starke tensile Spannung in der Schicht aufbaut und zu einer konkaven Waferkrümmung führt. Aufgrund der starken thermischen Fehlanpassung von -56% zwischen GaN und Si nimmt die thermisch induzierte Spannung einen erheblichen Anteil ein, weshalb GaN Schichten ohne spannungskompensierende Zwischenschichten eine kritische Rissdicke von nur ca. 1 μm besitzen [Dad00].

Im Gegensatz dazu sind abgekühlte GaN Schichten auf Saphir Substraten infolge der schwächeren und vorzeicheninversen thermischen Fehlanpassung von +17 % leicht kompressiv verspannt und die Wafer folglich konvex gekrümmt.

Wie hoch die thermisch induzierte Verzerrung (ε_{th}) ist, hängt von der Temperaturdifferenz zwischen Prozess- und Raumtemperatur gemäß der Beziehung

$$\varepsilon_{th} = \int_{T_R}^{T_P} (\alpha_{Schicht_{II}}(T) - \alpha_{Substrat}(T)) dT \quad (2.8)$$

ab, wobei hier zusätzlich die Temperaturabhängigkeit der lateralen thermischen Ausdehnungskoeffizienten berücksichtigt wurde. Bei einem ausreichend dicken Substrat wird die gesamte thermisch induzierte Spannung von der dünnen Epitaxieschicht aufgenommen, welche sich über das biaxiale Modul entsprechend Gleichung (7) ergibt:

$$\sigma_{th} = M_f \cdot \varepsilon_{th} \quad (2.9)$$

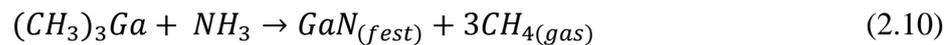
Da bei nichtkubischen Kristallen der thermische Ausdehnungskoeffizient von der kristallographischen Richtung abhängt, wird für die Spannungsberechnung der Koeffizient parallel (α_{\parallel}) zur c-Achse verwendet. Beim kubischen Silizium wird von einer isotropen Wärmeausdehnung ausgegangen. Für die Spannungsberechnungen sind die entsprechenden lateralen thermischen Ausdehnungskoeffizienten von GaN, AlN und den Heterosubstraten Si und Saphir den Publikationen [Rod05, Fig09, Iba69 und Rod07] zu entnehmen.

Weil es gerade beim GaN Wachstum auf Si eine starke thermisch induzierte Spannungskomponente gibt, wird versucht mit Hilfe von spannungsminimierenden Methoden diese zu kompensieren. Eine häufig angewandte Methode ist das Einfügen von Niedertemperatur-AlN-Zwischenschichten [Dad00], welche ausführlich in Kapitel 4 behandelt werden. Aufgrund der chemischen Reaktion zwischen Ga und Si oberhalb einer Temperatur von 700 °C, wird AlN auch als Nukleations- und Pufferschicht verwendet. Die GaN-basierte Struktur ist folglich nicht nur von den thermischen Eigenschaften des Si Substrats, sondern auch von den eingefügten AlN Schichten abhängig.

Neben dem epitaktischen Aufwachsen führen weitere sowohl wachstumsbedingte bzw. intrinsische Anteile, als auch extrinsische Einflüsse zu einer unerwünschten Spannung in der Schicht. Die Koaleszenz der GaN Kristallite während des initialen Schichtwachstums und die damit verbundene Defektstruktur verursachen eine zusätzliche tensile Verspannung [Dad03a, Nix99]. Ebenso der Einbau von Störstellen, wie z.B. eine Si Dotierung und ungewollte Fremdatome oder Punktdefekte verstärken die tensile Spannung und verursachen zusätzlich noch ein von der biaxialen Verspannung abweichendes Verhalten (hydrostatische Verspannung). Darüber hinaus gehören auch Phasenübergänge und Veränderungen von Versetzungsanordnungen dazu [Ber10, Rod09].

2.2. Metallorganische Gasphasenepitaxie

Die metallorganische Gasphasenepitaxie (MOCVD – metal organic chemical vapor deposition) ist ein Verfahren zur Herstellung dünner Halbleiterschichten auf einem Substrat unter Verwendung von organometallischen Quellen. Als metallorganische Ausgangsstoffe werden beispielsweise Trimethylgallium (TMGa) oder Trimethylaluminium (TMAI) eingesetzt, die die Gruppe-III-Elemente als Ausgangsstoffe liefern. Die Metallorganika TMGa und TMAI liegen in flüssiger Form in sogenannten Bubbllern vor. Der Stickstofflieferant Ammoniak (NH_3) und auch die Dotierquellen Silan (SiH_4) oder German (GeH_4) werden Hydride genannt und liegen als Gase zum Teil verdünnt mit Wasserstoff vor. Das hochreine Gasgemisch wird mit Hilfe eines Trägergases (N_2 oder H_2) über das geheizte und in der Regel rotierende Substrat geleitet. Bei den hohen Prozesstemperaturen werden die Moleküle der Ausgangsstoffe gespalten und diffundieren zum Substrat, auf dem sie adsorbieren und schließlich chemisorbieren, so dass sukzessive eine Schicht aus kristallinem Material wächst. Die einzelnen Reaktionen und Zerlegungen vor und während des Wachstumsprozesses sind vielzählig und sehr komplex. Der Reaktionsablauf ist im Detail nicht genau bekannt. Eine vereinfachte und veranschaulichende Reaktionsgleichung zur epitaktischen GaN Gewinnung ist:



Der epitaktische Wachstumsprozess ist extrem kritisch von der Temperatur abhängig. Er lässt sich in drei charakteristische Temperaturbereiche einteilen, in denen die Qualität und die Wachstumsgeschwindigkeit der Schicht sich maßgeblich unterscheiden. Bei geringen Temperaturen ist die Zerlegung der Ausgangsstoffe unmittelbar über dem Substrat und der Einbau unvollständig. Die Beweglichkeit der Adatome und die Adsorption dieser sind in diesem Bereich empfindlich von der Temperatur abhängig, weshalb die Wachstumsgeschwindigkeit im kinetisch begrenzten Bereich exponentiell von der Temperatur abhängt, was in Abb. 2.6 anhand des GaN Wachstumskinetik veranschaulicht wird. Etwa zwischen 600-1000 °C finden die Vorreaktionen und Zerlegungen über dem Substrat nahezu vollständig statt, weshalb das Schichtwachstum vorwiegend von Oberflächendifusionsprozessen dominiert ist. In diesem Transport begrenzten Wachstumsbereich ist die Diffusionsgeschwindigkeit der anzulagernden Atome durch die Gasphase nahezu temperaturunabhängig, weshalb auch die GaN Wachstumsrate in diesem Temperaturbereich näherungsweise konstant bleibt. Im Wesentlichen do-

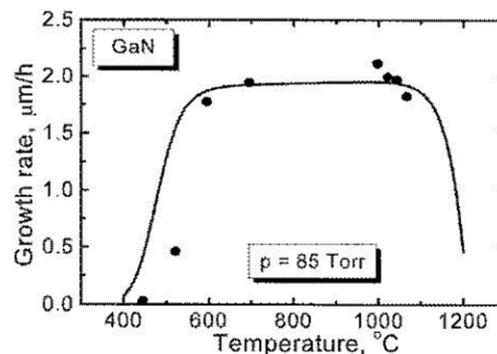


Abb. 2.6: Temperaturabhängigkeit der GaN Wachstumsrate, welches in einem horizontalen MOCVD Reaktor bei 85 Torr (~113mbar) abgeschieden wurde. Die durchgezogene Linie ist simuliert von [Tal01], die Messpunkte sind von [Che96].

miniert das Angebot der Ausgangsstoffe die Wachstumsrate. Bei noch weiter steigenden Temperaturen ($>1000\text{ }^{\circ}\text{C}$) bricht die Wachstumsrate wieder ein, da hier die chemische Zerlegung der Ausgangsstoffe zu früh und deshalb nicht unmittelbar über dem Substrat stattfindet. Zusätzlich desorbieren die Adatome aufgrund der hohen Substrattemperatur wieder, weshalb der Wachstumsprozess desorptionslimitiert ist. Die Vorreaktionen sind allerdings von der Desorption entkoppelt.

Mit der metallorganische Gasphasenepitaxie lassen sich reproduzierbar qualitativ sehr hochwertigen Halbleiterkristallschichten abscheiden, wobei die Schichtdicken bis in den Submonolagenbereich kontrollierbar sind. Die MOCD hat sich daher zum bedeutendsten Verfahren für die Herstellung von optoelektronischen und leistungselektronischen nitrideischen Halbleiterbauelementen entwickelt. In Abb. 2.7 sind der schematische Aufbau des verwendeten Horizontalreaktors mit Einzelwaferuszeptor und die entsprechende Fotografie des Reaktortyps *Aixtron AIX-200/4 RF-S* abgebildet.

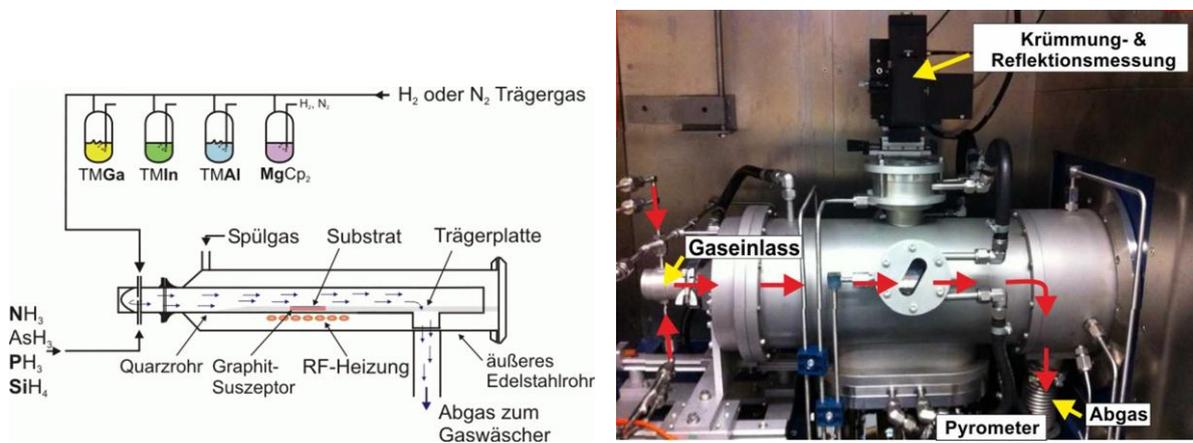


Abb. 2.7: Schema eines horizontalen MOCVD Reaktors (links) und Fotografie des verwendeten Aixtron 200/4 RF-S Reaktors (rechts) [Dad02].

Alle in dieser Arbeit vorgestellten Proben wurden mit diesem Verfahren hergestellt. Eine umfassendere Darstellung des MOCVD Prozesses kann in den folgenden Arbeiten vertiefend nachgelesen werden [Ab104, Mor08].

2.3. Röntgendiffraktometrie

2.3.1. Allgemeine Grundlagen

Die Röntgenstrukturanalyse ist ein zerstörungsfreies und leicht handhabbares Verfahren, welches die Beugung von Röntgenstrahlen an Kristallnetzebenen ausnutzt, um die kristallographischen Eigenschaften, wie Gitterparameter, Verspannung und Qualität zu bestimmen. In der Halbleiterherstellung ist es eine der wichtigsten Methoden zur schnellen und einfachen Qualitäts-, Struktur- und Kompositionsanalyse, da die Probe unter atmosphärischen Bedingungen ohne die Notwendigkeit des Abkühlens oder Hochheizens gemessen werden. Dazu werden sie auf den entsprechenden Gitterreflex justiert und ein Beugungsbild um diesen Reflex herum aufgenommen. Abhängig vom Messmodus können mit diesem Verfahren alle nötigen strukturellen Eigenschaften erfasst werden, weshalb die Röntgenbeugung in dieser Arbeit einen besonderen Schwerpunkt darstellt. Im Folgenden wird ein Überblick über die Grundlagen der Beugungstheorie gegeben und darauf aufbauend werden auch die verwendeten Messaufbauten im Detail vorgestellt.

Bei der Röntgenbeugung an einem Kristallgitter wird die einfallende elektromagnetische ebene Welle an den Elektronen des periodischen Atomgitters elastisch gestreut, so dass die Elektronen selbst eine Schar von Kugelwellen emittieren, die in Abhängigkeit von der optischen Weglänge destruktiv oder konstruktiv interferieren. Die emittierten und sich überlagernden Kugelwellen sollen nach der kinematischen Betrachtung keine sekundäre Wechselwirkung mit dem Kristall oder der Primärwelle haben und gelangen ungehindert zum Detektor. Zusätzlich wird angenommen, dass es sich um eine kohärente Streuung handelt, d. h. dass einlaufende und die von den Streuzentren auslaufenden Wellen eine feste Phasenbeziehung zueinander besitzen.

Für die Herleitung des Beugungssignals (vgl. Abb. 2.8) bestehend aus verschiedenen Streuamplituden, wird eine Kugelwelle betrachtet, die von der Röntgenquelle Q mit genügend großem Abstand auf den Kristall mit dem Streuzentrum P zum Zeitpunkt t ausgeht. Aufgrund des großen Abstands zwischen Streuzentrum P und Quelle Q , kann die Kugelwelle näherungsweise als ebene Welle betrachtet werden:

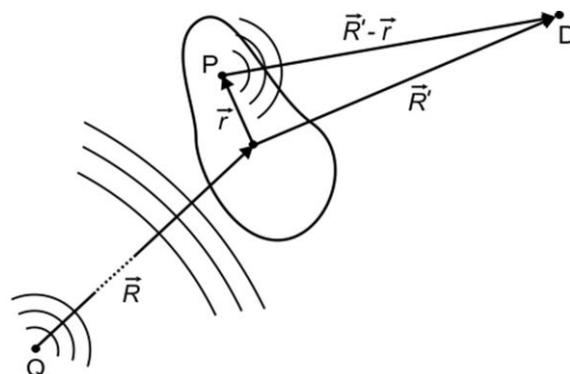


Abb. 2.8: Schematische Darstellung der elastischen Röntgenstreuung am Festkörper: Der Abstand \vec{R} zwischen Quelle Q und Körper ist groß, so dass die von der Punktquelle ausgehenden Kugelwellen näherungsweise als ebene Wellen am Objekt ankommen. Das gleiche gilt für den Abstand zwischen Gitterpunkt P und Detektor D (nach [Iba09]).

$$\Psi_P(t) = \Psi_0 e^{i\vec{k}(\vec{R}+\vec{r})-i\omega_0 t}. \quad (2.11)$$

Da das Beugungsmuster aus der erzwungenen Schwingung der Elektronendichteverteilung der untersuchten Kristallstruktur entsteht, muss die Amplitude am Detektionsort als Gesamtheit aller Streuprozesse proportional zur Elektronendichte $\rho(\vec{r})$ sein. Weil die einfallenden Röntgenstrahlen ausschließlich mit den Elektronen interagieren und diese die Streuung verursachen, wird die Elektronendichte auch Streudichte genannt. Die gestreuten Wellen können am Detektionsort näherungsweise beschrieben werden durch:

$$\Psi_D(t) = \Psi_P(\vec{r}, t) \rho(\vec{r}) \frac{e^{i\vec{k}(\vec{R}'-\vec{r}')}}{|\vec{R}'-\vec{r}'|}, \quad (2.12)$$

wobei $|\vec{R}'-\vec{r}'|$ der Abstand zwischen Streuquelle (Kristall) und Detektor beschreibt. Sind die Abstände zwischen der Quelle zu den Streuzentrenquellen und dem Detektor zu den Streuzentrenquellen sehr groß, können die Wellenvektoren \vec{k} und \vec{k}' für alle Streuzentren P im Kristall gleich und parallel zu diesen Abständen gesetzt werden. Unter Verwendung von Gleichung (2.11) ist die Streuamplitude am Detektor:

$$\Psi_D(t) = \frac{\Psi_0}{R'} e^{i(\vec{k}\vec{R}+\vec{k}'\vec{R})} e^{-i\omega_0 t} \rho(\vec{r}) e^{i(\vec{k}-\vec{k}')\vec{r}}. \quad (2.13)$$

Den Detektor erreicht nicht nur die Welle eines Streuzentrums, sondern alle gestreuten Wellen die innerhalb des beleuchteten Kristallvolumens erzeugt werden. Die Streuamplitude am Detektor ergibt sich daher aus der Integration über alle Streuzentren:

$$\Psi_D(t) \propto e^{-i\omega_0 t} \int \rho(\vec{r}) e^{i(\vec{k}-\vec{k}')\vec{r}} d^3r. \quad (2.14)$$

Für Streuprozesse an einem starren Gitter ist die Elektronendichte $\rho(\vec{r})$ zeitunabhängig, wodurch die Streuwelle Ψ_D nur noch in der Frequenz ω_0 die Zeitabhängigkeit enthält, was einer elastischen Streuung entspricht. Befindet sich das Gitter hingegen in Schwingung, handelt es sich um eine inelastische Streuung mit $\omega \neq \omega_0$.

In den Röntgenbeugungsexperimenten wird allerdings nicht die Streuamplitude gemessen, sondern die Intensität, die aus dem Betragsquadrat der Streuamplitude gebildet wird:

$$I(\Delta\vec{k}) \propto |\Psi_D|^2 \propto \left| \int \rho(\vec{r}) e^{-i\Delta\vec{k}\vec{r}} d^3r \right|^2. \quad (2.15)$$

Ein Intensitätsmaximum wird dann aufgenommen, wenn der Streuvektor $\Delta\vec{k}$ gerade einem reziproken Gittervektor \vec{G} entspricht (*von Laue Bedingung*). Zudem entspricht die Streuintensität aus der Fourier-Transformierten der Elektronendichte $\rho(\vec{r})$, woraus sich ableiten lässt, dass umso größere $\Delta\vec{k}$ und somit Primärwellenvektoren \vec{k} nötig sind, je kleiner die aufzulösenden Strukturen sind.

Weil bei der Erfassung der Streuintensität die Phaseninformation der komplexen Streuamplitude, welche die Elektronendichteverteilung und somit die genaue Kristallstruktur enthält, verlorengeht, wird zur exakten Strukturbestimmung programmgesteuert eine Modellstruktur berechnet, deren simulierte Streuintensität mit der gemessenen verglichen und bis zur vollständigen Übereinstimmung iteriert wird [Gro12].

Das Beugungsphänomen an einem Kristallgitter taucht nur dann auf, wenn die Wellenlänge des einfallenden Röntgenstrahls in der Größenordnung der Netzebenenabstände des Kristalls liegt ($\lambda \leq d$), was dem Angström Bereich entspricht. Wie zuvor schon erwähnt, erfolgt konstruktive Interferenz durch die Superposition der an den periodisch angeordneten Streuzentren entstandenen Kugelwellen genau dann, wenn der Gangunterschied zwischen einfallendem (\vec{k}) und auslaufendem Wellenvektor (\vec{k}') einem reziproken Gittervektor \vec{G} entspricht, wodurch die Beugungsbedingung erfüllt wird und der Streuvektor \vec{Q} gerade einem reziproken Gittervektor \vec{G} entspricht. Der Gittervektor steht senkrecht auf den vermessenen Netzebenen und besitzt die Länge $|\vec{G}| = 2\pi/d$, wodurch die jeweilige Netzebenenschar eindeutig bestimmt ist. Folglich ist die Entstehung eines Beugungsreflexes nur unter bestimmten Auswahlregeln für die Wellenzahländerung im reziproken Raum möglich. Diese Beugungsbedingung ist auch bekannt als *von Laue-Bedingung* und kann wie folgt beschrieben werden:

$$\vec{Q} = \vec{k}' - \vec{k} = \Delta\vec{k} = \vec{G}. \quad (2.16)$$

Abb. 2.9 (a) liefert eine geometrische Veranschaulichung der Laue-Bedingung mit Hilfe der Ewald-Konstruktion. Ein Beugungsmaximum tritt genau dann auf, wenn ein reziproker Gitterpunkt den Rand der Ewald-Kugel berührt, wobei der Radius der Ewald-Kugel durch die Wellenlänge der einfallenden Welle definiert wird:

$$r_{Ewald} = |\vec{k}| = |\vec{k}'| = \frac{2\pi}{\lambda}. \quad (2.17)$$

Eine zur Laue Bedingung äquivalente, aber stark vereinfachte Erklärung für die Entstehung von Beugungsreflexen von Kristallstrukturen gibt das Modell nach Bragg. Unter der Annahme, dass das Kristallgitter in Netzebenen mit dem Abstand d zerlegt werden kann und die einfallende Welle an jeder dieser Netzebenen „reflektiert“ wird, werden intensive Beugungsreflexe unter bestimmten Einfallswinkeln θ gemessen. Bei diesen Winkeln entspricht der Gangunterschied zwischen den von den Netzebenen reflektierten Strahlen einem ganzzahligen Vielfachen der Wellenlänge λ , wodurch konstruktive Interferenz beobachtbar ist. Diese Definition wird *Bragg-Bedingung* genannt:

$$n\lambda = 2d\sin(\theta) \quad n = 1,2,3 \dots \quad (2.18)$$

Dabei entspricht d dem Netzebenenabstand von zwei aufeinanderfolgenden Gitternetzebenen, θ dem halben Winkel zwischen der einfallenden und der gebeugten Welle (Streuwinkel), welcher experimentell gemessen wird, und n der Beugungsordnung. Abb. 2.9 (b) veranschaulicht die Bragg-Bedingung grafisch. Die Bragg-Bedingung macht sich die Periodizität des Kristallgitters zu eigen, da somit alle Gitterpunkte/-atome in parallele Netzebenenscharen unterteilt werden können. Allerdings vernachlässigt dieses Modell die Symmetrie des jeweiligen Bravais Gitters und die relative Intensität der verschiedenen Beugungsreflexe, die mit höheren Ordnungen deutlich schwächer werden [Gro12].

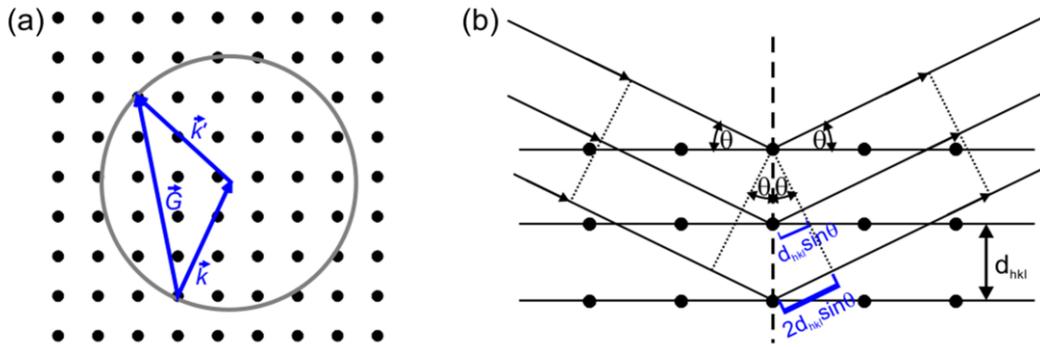


Abb. 2.9: Schematische Darstellung der Beugungsbedingung im reziproken Raum (Laue-Bedingung) (a) und im Realraum (Bragg-Bedingung) (b).

Der geometrische Zusammenhang zwischen der Laue- und der Bragg-Bedingung wird in Abb. 2.9 veranschaulicht. Da für die elastische Beugung die Bedingung $|\vec{k}'| = |\vec{k}|$ gilt, kann für den reziproken Gittervektor der folgende Zusammenhang gefunden werden:

$$|\vec{G}| = |\Delta\vec{k}| = 2|\vec{k}| \sin \theta = n \frac{2\pi}{\lambda} \sin \theta = n \frac{2\pi}{d_{hkl}}, \quad (2.19)$$

wobei d_{hkl} der Abstand der Netzebenen in der betrachteten Netzebenenschar ist. Aus der Beziehung (2.19) ist sichtbar, dass die Laue- und Bragg-Bedingung äquivalent sind.

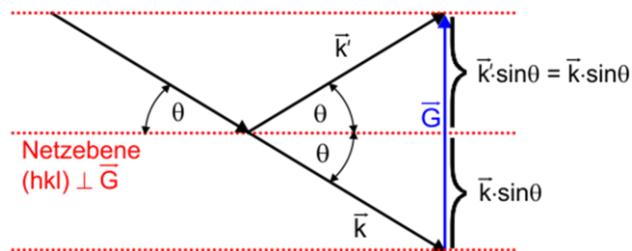


Abb. 2.10: Geometrischer Zusammenhang zwischen reziprokem Gittervektor in Abhängigkeit vom Einfallswinkel θ , nach [Gro12]

2.3.2. Methoden der Röntgendiffraktometrie

In dieser Arbeit wurden alle Proben mit monochromatischer Röntgenstrahlung mit Variationen des Drehkristall-Verfahren untersucht. Unter Verwendung unterschiedlicher Messgeometrien werden verschiedene Eigenschaften des Kristalls gewonnen. Im Beugungsfall entspricht der Streuvektor gerade einem reziproken Gittervektor ($\vec{G} = \vec{Q}$), welcher vom einfallenden und ausfallenden Röntgenstrahl aufgespannt wird. Dabei wird die Lage des Streuvektors genau durch den Einfallswinkel ω und den Detektorwinkel 2θ festgelegt. Zur grafischen Beschreibung der Auswahlregeln der zu messenden Beugungsreflexe dient die Ewald-Konstruktion (Abb. 2.9 (a)).

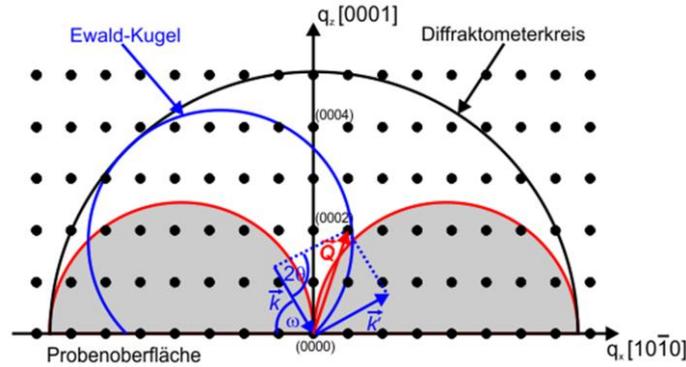


Abb. 2.12: Erweiterte Ewald-Konstruktion: Schnitt durch den reziproken Raum für einen (0001)-orientierten hexagonalen Kristall. Der Diffraktometerkreis umschließt alle möglichen messbaren Beugungsreflexe, die in konventioneller Reflexionsgeometrie (weißer Bereich) und in Transmissions- oder schief-symmetrischer Geometrie gemessen werden können, nach [Kro95].

Dies ist eine Kugelkonstruktion im reziproken Gitter mit dem Radius $\vec{k} = 2\pi/\lambda$. Der Beugungsreflex tritt in dieser Darstellung genau dann auf, wenn auf der Ewald-Kugel ein Gitterpunkt des reziproken Gitters liegt, wobei die Laue-Bedingung $\vec{k}' - \vec{k} = \vec{G}$ erfüllt wird. Dies wird in der erweiterten Ewald-Konstruktion in Abb. 2.12 dargestellt, in der der Streuvektor \vec{Q} auf einem Gitterpunkt endet, welcher genau auf dem Rand der Ewald-Kugel (blau) liegt. Diese erweiterte Ewald-Konstruktion markiert alle möglichen messbaren Beugungsreflexe, welche durch den Diffraktometerkreis umschlossen werden. Der weiß hinterlegte Bereich umfasst alle Reflexe, die in konventioneller Bragg-Geometrie, d. h. in Reflexion gemessen werden können. Die grau hinterlegten Halbkreise kennzeichnen alle Reflexe in schief-symmetrischer Beugungsgeometrie oder in der Laue-Geometrie, d. h. in Transmission, zugänglich werden. Der Radius der grauen Halbkreise entspricht gerade dem der Ewald-Kugel.

Bei der Kristallstrukturanalyse mit Röntgenstrahlung wird der reziproke Gitterpunkt (hk(i)l) durch Abtasten mit dem Streuvektor vermessen. Eine ideale, streng periodische Kristallstruktur besitzt einen nulldimensionalen Gitterpunkt, welcher zu einem scharfen und intensiven

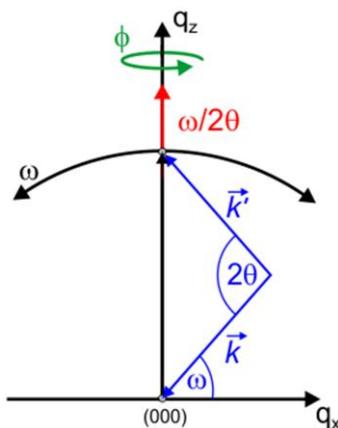


Abb. 2.11: Möglichkeiten verschiedener Winkelvariationen zur Vermessung des reziproken Gitterpunktes (hkl)

Röntgenreflex führt. Allerdings bestehen reale Kristalle aus endlich dicken Schichten und besitzen infolge der epitaktischen Abscheidung Störungen, wie Granularität, Mosaizität und lokale Variationen der Gitterkonstanten. Durch diese Abweichungen von der strengen Periodizität wird der reziproke Gitterpunkt „verschmiert“, wodurch die Röntgenmesskurve verbreitert wird. Zusätzlich limitieren instrumentelle Einflüsse, wie beispielsweise die Strahlgüte, die Auflösung des reziproken Gitterpunktes. Wie der reziproke Raum vermessen werden kann, gibt Abb. 2.11 anhand der q_x und q_z Richtung wieder. Abhängig vom gewählten Beugungsreflex und der verwendeten Beugungsgeometrie werden unterschiedliche Strukturinformationen gewonnen und anhand der Signalform lassen sich die Ursachen der Gitterpunktverbreiterung ermitteln [Spi09]. Die wichtigsten und auch am häufigsten verwendeten Messva-

rianten sind der ω -Scan (a) und der $\omega/2\theta$ -Scan (b), die in Abb. 2.13 anhand der verschiedenen Streuvektorbewegungen dargestellt sind.

Mit einem ω -Scan werden Informationen über die Mosaizität (Twist und Tilt) des Kristalls gewonnen. Indirekt stecken in dieser Messung auch Informationen über die Defektdichte und die Kristallitgröße (Kohärenzlänge / Korngröße) des nicht perfekt monokristallinen Nitridkristalls [Kag97]. Werden die ω -Scans an verschiedenen Positionen über der Probe aufgenommen, kann sogar auf die Probenkrümmung geschlossen werden [Mor09b]. Die Probe wird bei dieser Messung um den Winkel ω gedreht, wobei Quelle und Detektor in einer fixen Position mit fest eingestelltem 2θ Winkel stehen. Somit bleibt die Länge des Streuvektors konstant, der bei der Drehung um ω um seinen Ursprung bewegt wird. Die verschiedenen verkippten bzw. verdrehten Kristallite werden bei jedem Winkelschritt in die Beugungsbedingung gedreht, wodurch eine Verteilung aller vorkommenden Kristallitorientierungen gewonnen wird. Beim hexagonalen GaN lässt sich die Verkippfung (Tilt) am symmetrischen (0002) Reflex bestimmen, die Verdrehung (Twist) am (10 $\bar{1}$ 0) Reflex, welcher senkrecht zur c-achsenorientierten GaN Oberfläche liegt und in der streifenden Strahlgeometrie gemessen wird. Je schmaler die gemessene Verteilung, desto besser die Kristallinität und folglich die Qualität des Materials.

Mit der $\omega/2\theta$ Messung werden ergänzend zum ω -Scan Aussagen über die Gitterkonstanten, die Verspannung und die Komposition durch die Aufnahme der Netzebenenabstandsverteilung der gewählten Orientierung gewonnen. Dabei werden Proben- und Detektorposition derart gekoppelt, dass sich mit jedem Winkelschritt ω der Detektor um den doppelten Winkel 2θ bewegt. Die Lage des Streuvektors wird dadurch festgehalten und nur dessen Länge variiert (Abb. 2.13 b). Diese beiden Messungen lassen sich in der Messung einer reziproken Gitterkarte (RSM - reciprocal space map) miteinander kombinieren. Der Streuvektor wird dabei in seine Komponenten q_x und q_z gemäß den Beziehungen (2.20) und (2.21) zerlegt [Spi09]. So lassen sich alle wichtigen strukturellen Eigenschaften um einen reziproken Gitterpunkt mit einer einzigen Messung erfassen.

$$q_x = \frac{2}{\lambda} \sin(\theta) \sin(\omega - \theta) \quad (2.20)$$

$$q_z = \frac{2}{\lambda} \sin(\theta) \cos(\omega - \theta) \quad (2.21)$$

Wird der RSM an einem symmetrischen Reflex vermessen, z. B. am (0002) Reflex von

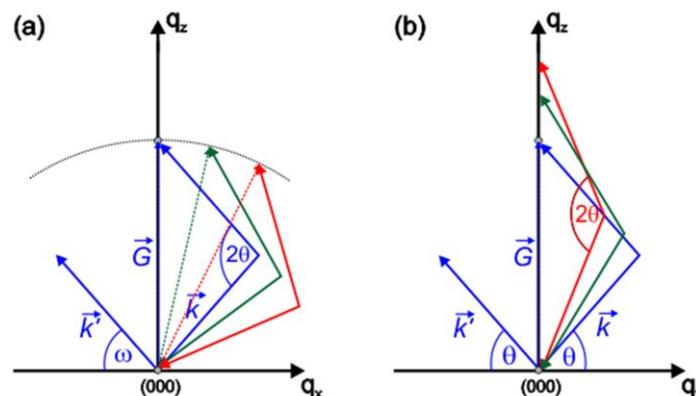


Abb. 2.13: Variation des Streuvektors während eines ω -Scans (a) und bei einem $\omega/2\theta$ -Scan (b).

c-orientiertem GaN, wie es in Abb. 2.14 (a) dargestellt ist, gibt der Intensitätsverlauf entlang q_z Aufschluss über den Verspannungszustand der Schicht (kompressiv, tensil, relaxiert). Der Verlauf entlang q_x enthält, analog zum ω -Scan, Informationen über die Kristallqualität. Die blaue Markierung kennzeichnet die Reflexposition für relaxiertes GaN. Taucht der GaN Reflex bei kleineren q_z -Werten auf, ist die Schicht kompressiv in der Wachstumsebene verspannt, andersherum entsprechen größere q_z -Werte einer tensil verspannten Schicht.

Bei der Vermessung asymmetrischer Netzebenen, vgl. Abb. 2.14 (b), lassen sich durch die Streuvektorzerlegung die a- und c-Gitterkonstanten des Materials bestimmen. Darüber hinaus geben diese beiden Gitterparameter Aufschluss über den Verspannungszustand, ob dieser kompressiv, tensil oder relaxiert relativ zu vollständig unverspanntem Material ist, und über den relativen Verspannungszustand (pseudomorph, teilrelaxiert oder vollständig relaxiert) bezogen auf die übrigen Reflexe der Gesamtschichtstruktur. Da bei der Röntgenbeugung die integrale Intensität aller Schichten einer Struktur aufgezeichnet wird, ist die Zuordnung der Einzelreflexe zu der Schichtfolge nicht möglich. Nur wenn der Schichtaufbau bekannt ist, können die Reflexlagen gemäß Plausibilitätsüberlegungen den Schichtpositionen zugeordnet werden und Verspannungszustände daraus abgeleitet werden, wie es später in Kapitel 4.3 anhand einer komplexen GaN Templatestruktur auf Si gezeigt wird.

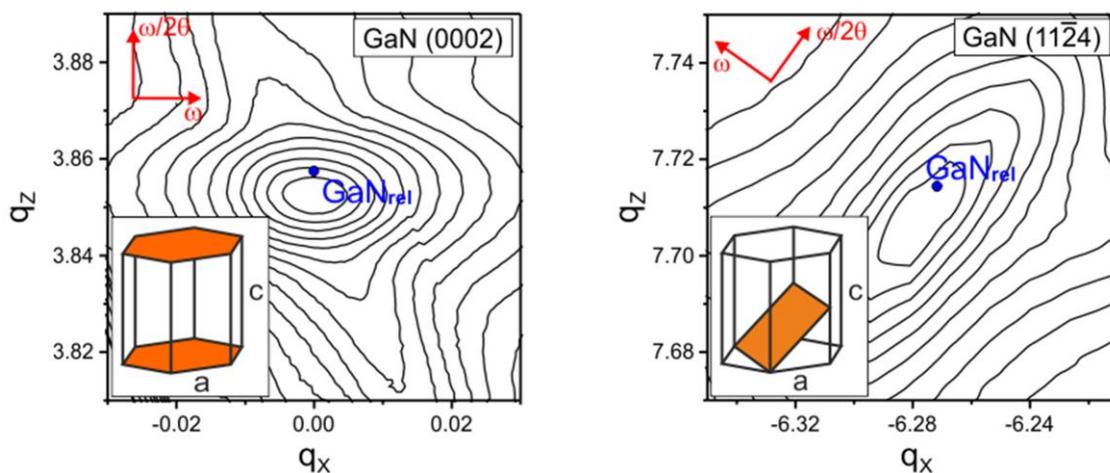


Abb. 2.14: Messungen reziproker Gitterkarten am (a) symmetrischen (0002) Reflex und am (b) asymmetrischen (11 $\bar{2}$ 4) Reflex eines c-orientierten GaN Kristalls.

Die Abb. 2.14 (b) gibt den asymmetrischen RSM an den (11 $\bar{2}$ 4) GaN Netzebenen wieder, bei dem die Richtungen entsprechend gedreht sind und die die Informationen der Messmodi enthalten (ω und $\omega/2\theta$). Ergänzend illustriert die eingefügte Skizze die Lage dieser asymmetrischen Netzebene in der hexagonalen Einheitszelle. Die Intensität des GaN Reflexes zeigt eine Verbreiterung entlang der $\omega/2\theta$ -Richtung, was auf eine Überlagerung mehrerer Verspannungszustände infolge verschieden verspannter Schichtfolgen im Material deutet. Der blaue Punkt markiert auch hier die Reflexposition für vollständig relaxiertes GaN. Anders als beim symmetrischen RSM wird der Verspannungszustand hier anhand der q_x -Werte abgelesen. Folglich befinden sich in diesem vermessenen GaN Schichtstapel neben kompressiv (größere q_x -Werte relativ zu q_{GaNrel}) und tensil verspannten Schichtanteilen (kleiner q_x -Werte relativ zu q_{GaNrel}) auch relaxierte Anteile. Analog zur symmetrischen Messung ist die Verbreiterung entlang der ω -Achse ein Maß für die Kristallqualität.

Mit der Messung einer reziproken Gitterkarte lassen sich nahezu alle strukturellen Eigen-

schaften einer Probe aus der charakteristischen Form und Intensität der vermessenen Gitterpunkte gewinnen. Allerdings tauchen an der Oberfläche von realen Kristallstrukturen Relaxationseffekte auf, die nur mit oberflächenempfindlichen Messungen sichtbar werden. Außerdem erfassen die bisher erläuterten Methoden in der Bragg-Geometrie keine bzw. nur teilweise Informationen über die Verdrehung (Twist) der Kristallite. Mithilfe von Röntgenmessungen im streifenden Einfall (*grazing incidence in-plane diffraction* - GIID) lassen sich eben diese Effekte bestimmen, wodurch die oberen Schichteigenschaften von dem Gesamtstapel separiert werden können. Der Primärstrahl fällt unter einem sehr flachen Einfallswinkel α_i auf die Probenoberfläche und wird an den senkrecht zur Oberfläche stehenden Netzebenen unter Erfüllung der Bragg-Bedingung gebeugt, siehe Abb. 2.15. Der Sekundärstrahl verlässt die Probenoberfläche unter dem Ausfallwinkel α_f , welcher gleich dem Einfallswinkel α_i ist. Der Streuvektor \vec{Q} steht, definiert durch die Winkel der Primär- und Sekundärwellenvektoren, unter dem gleichen Winkel α_q zur Probenoberfläche. Durch die Wahl des Messmodus lassen sich bei der Messung eines $\omega/2\theta$ -Scans die in-plane Gitterkonstanten der Schicht bestimmen. Entspricht der Einfallswinkel dem kritischen Winkel der externen Totalreflexion ($\alpha_i = \alpha_f = \alpha_{krit}$), werden nur Informationen aus dem oberflächennahen Bereich der dynamisch evaneszierenden Primärwelle gewonnen, was einer Messtiefe von nur wenigen Nanometern entspricht. Durch die schrittweise Variation des Einfallswinkels α_i wird sukzessive die Eindringtiefe des Primärstrahls und folglich die Informationstiefe verändert, woraus ein tiefenabhängiger Verlauf der in-plane Gitterkonstante resultiert (GIID-Tiefenmap). Anhand dieses tiefenaufgelösten Verlaufs lassen sich mögliche Spannungsvariation, wie beispielsweise Oberflächenrelaxation, nachweisen. Die bestimmten in-plane Gitterkonstanten, die bei hexagonalen c-orientierten Kristallen an den m- oder a-Ebenen gemessen werden (vgl. Abb. 2.15 rechts), lassen in Verbindung mit den Gitterkonstanten aus der symmetrischen $\omega/2\theta$ Messung, Rückschlüsse auf die Verformung des Kristalls zu (biaxial, uniaxial oder hydrostatisch verspannt).

Besonders bei semi- oder non-polaren GaN Schichten tauchen verstärkt Anteile der uniaxialen und hydrostatischen Verspannung auf, welche nur mit Hilfe von Röntgenmessungen in verschiedenen Beugungsgeometrien nachweisbar sind [Mor09a, Sun12].

Mit der ω -Messung im streifenden Einfall erhält man den Twist, das heißt die Verteilung der verdrehten Kristallite (Twist). Diese Messung stellt die Ergänzung zur Tiltermittlung aus dem symmetrischen ω -Scan dar, denn aus der um 90° gedrehten Beugungsgeometrie werden so die

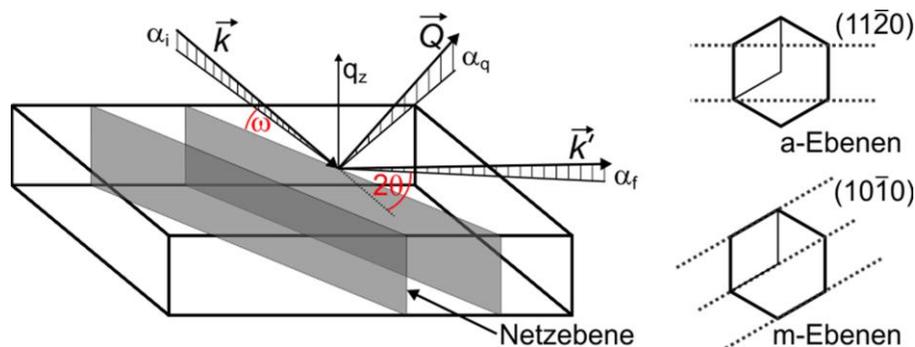


Abb. 2.15: Beugungsgeometrie im streifenden Einfall (GIID) zur Untersuchung von Netzebenen, die senkrecht zur Probenoberfläche stehen. Bei hexagonalen c-achsenorientierten Kristallgittern werden die a- oder m-Netzebenenscharen verwendet (siehe Hexagone rechts).

vollständigen Informationen über das Kohärenzvolumen und das Verhältnis zwischen a- und c-Defektanteilen der vorhandenen Linienfehler erzielt.

Weil die in-plane Gitterkonstanten (a oder m) mit der Röntgenmessung im streifenden Einfall nur in Oberflächennähe bestimmbar sind, bedient man sich zusätzlich der Beugung in Transmission (Laue-Geometrie), um eine Tiefeninformation der Netzebenen zu erhalten. Die Beugung in dieser Messgeometrie wird auch XTS-Methode (*engl.: X-ray transmission scattering*) genannt. Die dafür zu wählenden Reflexe sind in der erweiterten Ewaldkonstruktion den grauen Halbkreisen zu entnehmen (Abb. 2.12). Aus der symmetrischen Messung erhält man bereits ein tiefenintegrates Signal, allerdings nur über die Verteilung der c-Gitterkonstante. Tauchen aber Effekte wie Gitterseparation durch z. B. Dotierung oder verschiedenen verkippte Domänen innerhalb einer Schicht auf, genügen die symmetrischen Beugungsinformationen nicht. Des Weiteren lässt sich aus der Kombination symmetrischer XRD und der XTS Messungen eine detaillierte Defektanalyse mit Informationen über die Struktur von Versetzungen gewinnen [Rat00].

Die Probe wird gemäß Abb. 2.16 senkrecht in den Strahlengang justiert, so dass der Röntgenstrahl die Probe vollständig durchdringt und alle in-plane Netzebenen des jeweils justierten Reflexes das tiefenintegrale Beugungsbild ergeben. Wird ein XTS- ω -Scan gemessen (Abb. 2.16 a), ergeben sich im Gegensatz zu den symmetrischen XRD und GIID-Messungen folgende Unterschiede: Obwohl die in-plane Gitterreflexe vermessen werden, wird nun maßgeblich die Verkippung (Tilt) der Kristallite erfasst. Zusätzlich kann die Schichtdicke dünner Schichten aus Schichtdickenoszillationen bestimmt werden, die sich bei der Probenrotation um den Winkel ω aus dem Beitrag der q_z -Komponente (senkrecht zur Oberfläche) ergeben und die ω -Messkurve überlagern [Ber10].

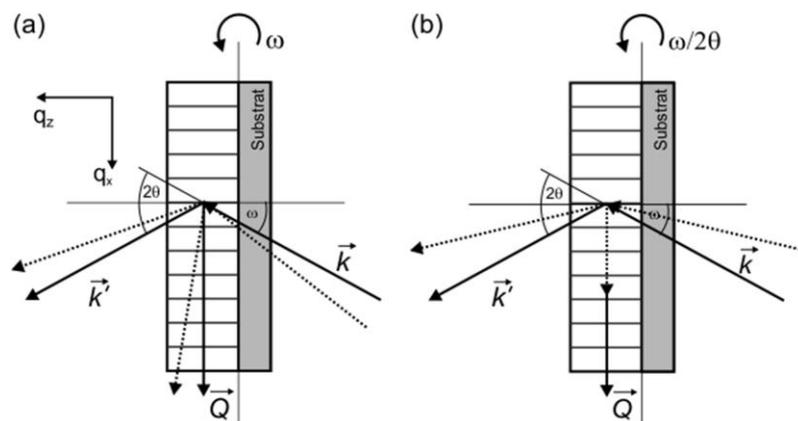


Abb. 2.16: Beugungsgeometrie der XTS-Messung für den (a) ω -Scan und (b) $\omega/2\theta$ -Scan, nach [Ber10].

Außerdem sind die Intensitätsbeiträge der Schichten anders gewichtet als bei der symmetrischen Beugung in Bragg-Geometrie. Da alle Schichten unabhängig von der Lage im Schichtstapel gleich gewichtet sind, entspricht der intensivste Beitrag der dicksten Schicht.

So lassen sich bei der Messung eines XTS- $\omega/2\theta$ Scans in Ergänzung zur symmetrischen Messung, bei dem die obersten Schichten den wesentlichen Intensitätsbeitrag liefern, eine eindeutige Zuordnung verschiedener Spannungsanteile entlang der Schichtstruktur treffen.

2.3.3. Eingesetzte Röntgenmessapparaturen

Hochauflösendes Röntgendiffraktometer

Mit Hilfe von hochauflösenden Röntgendiffraktometern können Gitterparameter von Halbleiterstrukturen genauestens bestimmt und kleinste Abweichungen dieser aufgelöst werden. Abhängig von der Beschaffenheit der Probe können die strahlformenden Komponenten des verwendeten Röntgensystems in Monochromasie, Winkelauflösung und Primärstrahlintensität angepasst werden. Für die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten XTS- und symmetrischen Messungen wurde die Röntgenanlage Seifert 3003 HR eingesetzt. Der Strahlengang dieses Diffraktometers ist schematische in Abb. 2.17 dargestellt. Ergänzend zeigt Abb. 2.18 die Fotografie des Diffraktometers mitsamt beschrifteter Röntgenkomponenten. Die Apparatur besitzt einen Hybridmonochromator als Primäroptik, bestehend aus einem W/Si-Multilayerspiegel und einem 2-fach Ge(220) Channel-Cut-Monochromator. Aufgrund seiner parabolischen Krümmung und dem lateralen Schichtdickengradienten, monochromatisiert der Multilayerspiegel die zunächst weiße Röntgenstrahlung auf eine Energiebandbreite des $\text{Cu}_{K\alpha}$ Anteils und parallelisiert den Primärstrahl auf eine Reststrahldivergenz von 0.04° (144 arcsec). Der danach folgende Ge(220) Kristall schärft den Strahl auf den Wellenlängenbereich der $\text{Cu}_{K\alpha 1}$ Strahlung und lässt den 2-fach reflektierten Strahl mit einer Restdivergenz von nur 13 arcsec zur Probe passieren (siehe Hybridmonochromator in Abb. 2.17).

Sekundärseitig befindet sich ein Ge(220) Analysatorkristall, welcher auf den $\text{Cu}_{K\alpha 1}$ Reflex justiert ist und somit genau den Detektorwinkel 2θ festlegt. Um einen Einfluss der Probenkrümmung auf die Messung auszuschließen, wurde bei den ω -Messungen zusätzlich eine 0.1 mm Sekundärblende eingesetzt. Die Anlage wurde mithilfe des Programms *Rayflex* computergestützt gesteuert. Die Auswertung der Messgraphen erfolgte mit der Software *Rayflex Analyze*.

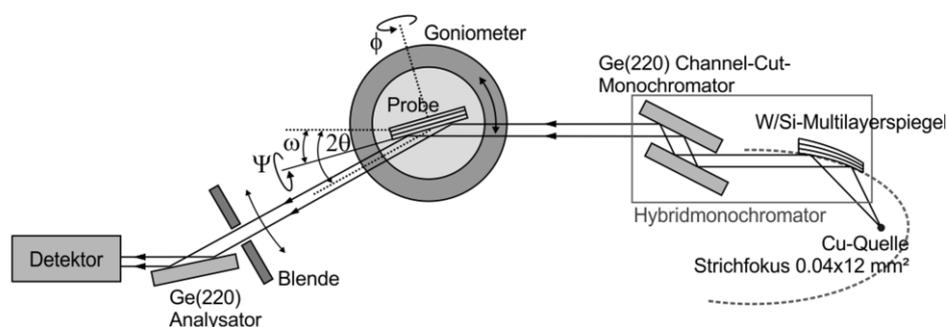


Abb. 2.17: Strahlengang des eingesetzten hochauflösenden Röntgendiffraktometers „Seifert 3003 HR“ mit Hybridmonochromator als strahlformende Primäroptik. Die Probe ist auf dem Goniometer befestigt, welches alle eingezeichneten Drehbewegungen der Probe um die Goniometerachse ausführen kann.

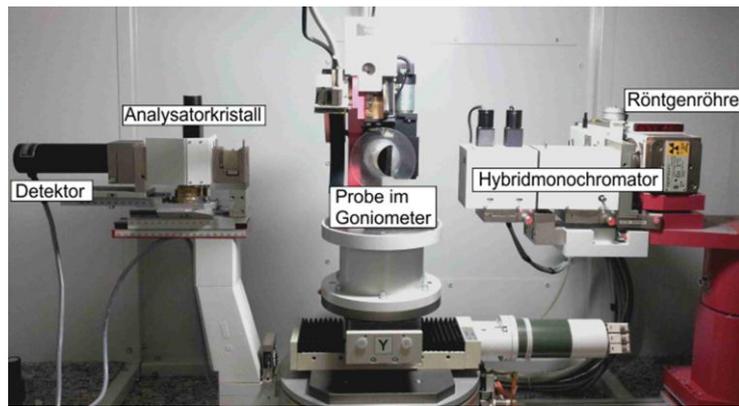


Abb. 2.18: Fotografie des hochauflösenden Röntgendiffraktometers „Seifert 3003 HR“ mit stehender Cu-Röntgenröhre, primärseitigem Hybridmonochromator, sekundärseitigem Analysatorkristall und einem Szintillationszählrohr als Detektor.

Röntgendiffraktometer mit Flächendetektor

Für die Messung der reziproken Gitterkarten (RSM) wurde das von der Uni Magdeburg konzipierte Röntgendiffraktometer Bruker D8/GAADS eingesetzt (Abb. 2.19). Diese Anlage ist mit einer Kupfer-Drehanode (TXS), welche im Vergleich zu herkömmlich eingesetzten stehenden Röntgenröhren eine Größenordnung mehr Intensität liefert, und mit einem Flächendetektor von Vantech 2000 mit einer Pixelzahl von 2048 x 2048 auf einer Fläche von 14x14 cm² ausgestattet. Als Primäroptik werden hier ein gekrümmter Johansson-Ge(111)-Monochromator Vario 1 in Kombination mit einer Höhenblende (10 mm) und einer variable Streustrahlblende (~130 µm) eingesetzt, der ein monochromatisches und konvergentes Strahlenbündel auf die Probe fokussiert.

Mit dieser Anlage wurden neben den reziproken Gitterkarten auch Flächenmessungen zur Homogenitätsanalyse an größeren Proben mit Waferdurchmessern von 100 mm realisiert. Die Information über die gesamte Fläche wird aus dem schrittweisen Abrastern der Probe gewonnen. Dabei wurden unter anderem Rocking-Phi-Scans zur Darstellung der strukturellen Änderung über der Probenfläche [Fri09] und GIID Maps zur ortsabhängigen Analyse der Oberflächentopologie gemessen. Details zur Röntgenanlage und zu den Messverfahren im streifenden Einfall sind in den Arbeiten von Krost et al. zu finden [Kro09].

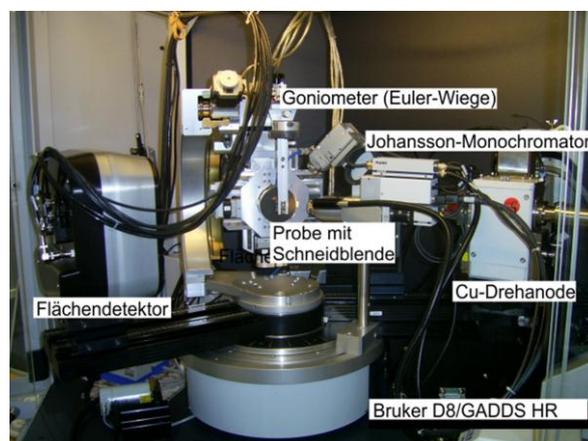


Abb. 2.19: Röntgenanlage Bruker D8/GAADS mit Flächendetektor, Cu-Drehanode und Johansson-Monochromator (kollimierender, gekrümmter Ge(111) Kristall).

Röntgendiffraktometer für Messungen im streifenden Einfall

Das Röntgendiffraktometer für Messungen im streifenden Einfall besitzt eine aufrecht montierte Kupfer-Röntgenröhre, so dass der Linienfokus (12 mm x 1 mm) der Quellstrahlung auch in dieser Messgeometrie als Strich auf die Probe gelangt. Zusätzlich ist die Röntgenröhre höhenverstellbar, so dass der Einfallswinkel α_i für GIID-Tiefenmaps und zur Intensitätsmaximierung einstellbar ist. Um die maximale Intensität zu nutzen, wird der Primärstrahl hier nicht streng monochromatisiert. Der sekundärseitige Ge(220)-Analytorkristall lässt sowohl die $\text{Cu}_{K\alpha 1}$ als auch $\text{Cu}_{K\alpha 2}$ Strahlung passieren. Die Parallelisierung der Strahlen erfolgt durch Sollerkollimatoren und Blenden auf eine Winkeldivergenz von 0.15° , siehe Abb. 2.20 (b). Somit werden Einfalls- α_i und Ausfallswinkel α_f genau festgelegt [Kro09]. Als Goniometer dient ein URD6 (Seifert/FPM). Direkt über der Probe wurde eine höhenjustierbare Schneidblende eingesetzt, um die bestrahlte Fläche zu limitieren, siehe Abb. 2.20 (a) und Abb. 2.21. An dieser Anlage wurden ausschließlich Messungen im streifenden Einfall vorgenommen. Dabei wurde immer der $(10\bar{1}0)$ -Reflex vermessen, da sich die m-Ebenen bei c-orientiertem GaN immer senkrecht zum Flat des Si-Substrats befinden und die Reflexjustage dadurch erleichtert ist.

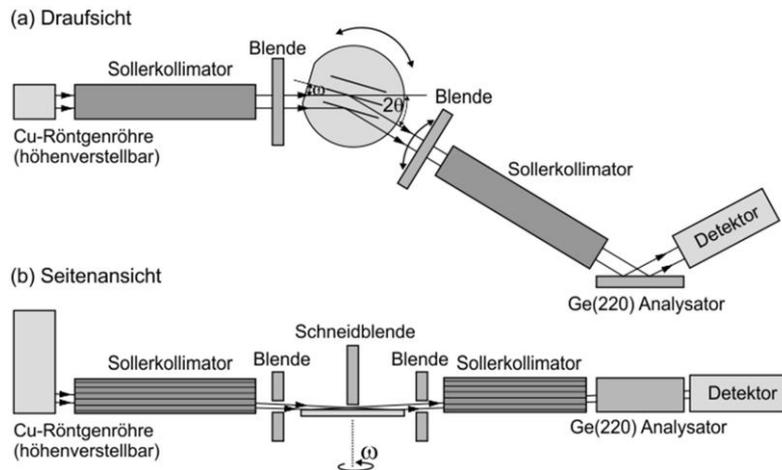


Abb. 2.20: Strahlengang des Röntgendiffraktometers für Messungen im streifenden Einfall, (a) in Aufsicht und (b) von der Seite. Als strahlformende Röntgenoptiken wurden Sollerkollimatoren und Blenden eingesetzt. Den gewählten Röntgenreflex selektiert der Sekundärkristall mit einer mittleren Energiedispersion von Cu ($K_{\alpha 1} + K_{\alpha 2}$).

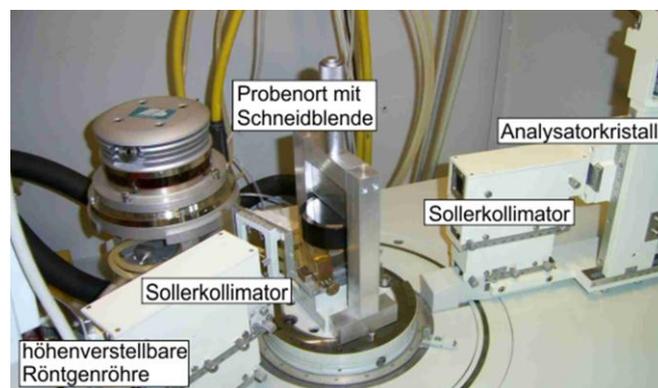


Abb. 2.21: GIID-Messplatz für den streifenden Einfall. Über dem Probenort befindet sich die Schneidblende, die mit einer Mikrometerschraube höhenverstellbar ist.

2.4. Optische in-situ Messungen

Mit Hilfe von optischen in-situ Messungen lassen sich schon während des Wachstums zerstörungsfrei wesentliche Informationen über die entstehende Halbleiterschichtstruktur gewinnen. Im Rahmen dieser Arbeit wurde für diese Echtzeitmessung während des Wachstumsprozesses das in-situ-Messgerät EpiCurve®TT der Firma LayTec eingesetzt. Mit diesem Gerät ist es möglich die Oberflächentemperatur, die Reflektivität und die Krümmung des Wafers in Abhängigkeit von der Wachstumszeit zu messen. Zu Beginn der Wachstumsexperimente wurde

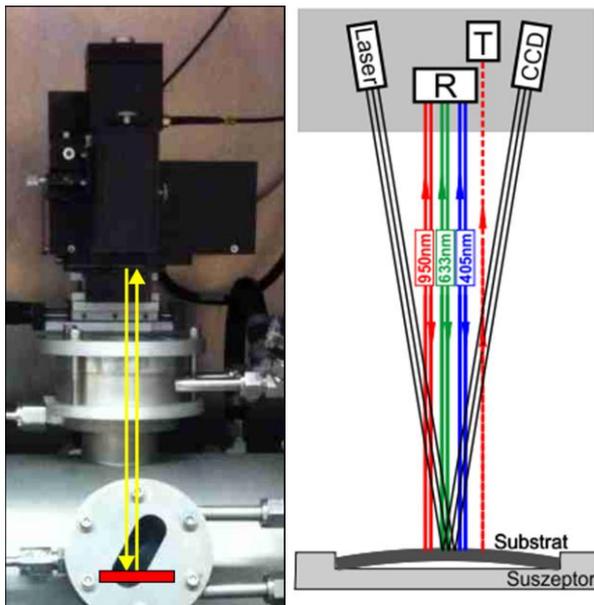


Abb. 2.22: Links: Fotografie des in-situ-Sensors EpiCurve®TT der Firma LayTec, wie er auf dem Reaktor montiert ist mit angedeutetem Strahlengang zur Probe (rot). Rechts: schematische Strahlengänge der verschiedenen Messungen mit dem in-situ Sensor.

ein in-situ Sensor eingesetzt, welcher mit 2 Laserstrahlen für die Krümmungsmessung und 2 Wellenlängen (633 nm, 950 nm) für die Reflektivität ausgestattet war. Für spätere Experimente wurde auf einen für das GaN Wachstum auf Si geeigneterer Sensor umgestellt, welcher 3 Laserstrahlen für eine rauschärmere Krümmungsmessung und 3 Wellenlängen für die Reflektivitätstransienten bot (Abb. 2.22). Aus der Reflektivitätsmessung lassen sich anhand der Fabry-Pérot Oszillationen (FPO) die Schichtdicke und die Wachstumsrate bestimmen. Konstruktive Interferenz, d. h. ein Maximum in der Reflektivitäts transienten entsteht dabei unter der Bedingung: $m\lambda_{RefI} = 2nd$, mit der Anzahl der Oszillationen m , der Lichtwellenlänge λ_{RefI} , dem Brechungsindex des wachsenden Materials n und der Schichtdicke d . FPOs treten nur im optisch transparenten Spektralbereich des Halbleitermaterials auf, weshalb die Möglichkeit mit 3 Wellenlängen zu messen einen breiten Bereich möglicher Materialien mit unterschiedlichen Bandlücken abdeckt. Anhand der Amplitude der Oszillationen kann zudem die Qualität der Schichtoberfläche überwacht werden. So führt eine Oberflächenaufräuhung zu einer Minderung der mittleren Reflektivität und die Zunahme von Schichtdickeninhomogenitäten zu einer kleiner werdenden FPO-Amplitude bei konstantem Signalniveau [Lay09]. Außerdem können aus den Reflektivitätswerten im Absorptionsbereich der Schichten deren Oberflächenrauigkeiten exakt und eindeutig bestimmt werden.

Für die pyrometrische Temperaturmessung des Wafers wird die simultan gemessene 950 nm Reflektivitätsmessung verwendet, um die Temperatur von der Überlagerung der Fabry-Pérot Oszillationen zu entkoppeln. Die MOCVD-Anlage bietet ebenfalls eine Pyrometermessung, welche die Temperatur der Suszeptorunterseite bestimmt. Letztere kann jedoch beträchtliche Unterschiede zur Waferoberflächentemperatur von bis zu 100 K oder mehr haben. Zudem belegt sich die Lichtfaser des Anlagenpyrometers im Laufe der Wachstumsprozesse, wodurch weitere, langsame Temperaturfehler zustande kommen. Entsprechend wird hier stets die Wachstumstemperatur anhand der in-situ Pyrometrie kontrolliert.

Für das Wachstum von GaN Strukturen ist die Krümmungsmessung hilfreich, um schon während der Epitaxie Aussagen über den Spannungsverlauf in den Schichten treffen zu können und um durch eine Anpassung der Prozessparameter die Struktur vor dem Reißen im Abkühlprozess zu schützen, was insbesondere beim Wachstum von GaN auf Si essenziell ist. Eine

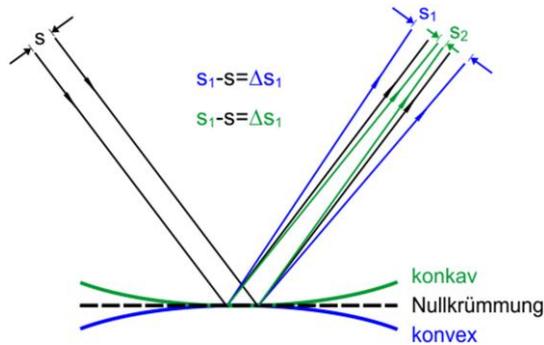


Abb. 2.23: Strahlengang zur Veranschaulichung des Prinzips der Krümmungsmessung bei verschiedenen Waferkrümmungen.

Möglichkeit zur Krümmungsbestimmung der Probe wird in der Schemazeichnung in Abb. 2.23 wiedergegeben. Zwei parallele Laserstrahlen treffen mit einem definierten Abstand s auf den Wafer. Bei einem gekrümmten Wafer werden die Laserstrahlen entsprechend der Krümmung (konkav oder konvex) abgelenkt, so dass aus dem detektierten Abstand der reflektierten Laserstrahlen die Abstandsdifferenz berechnet und in die Waferkrümmung κ umgerechnet werden kann [Ber10, Flo01]. Dank der Krümmungskalibrierung anhand geeigneter Referenzproben kann die native Krümmung des Substrats vor dem Bewachsen gemessen und die absolute Krümmung des Wafers während des Schichtwachstums bestimmt werden. Der aus der Spannung der Schicht resultierende Krümmungsbeitrag wird in erster Näherung durch die Stoney-Gleichung beschrieben:

$$\kappa = \frac{1}{R} = \frac{6\sigma_f d_f}{M_s d_s^2} = \frac{6M_f \varepsilon_{xx} d_f}{M_s d_s^2}. \quad (2.22)$$

Demnach wird die Krümmung κ bestimmt durch Filmparameter, wie das biaxiale Modul M_f , die in-plane Verzerrung ε_{xx} und die Filmdicke d_f und durch Substratparameter, wie das biaxiale Modul M_s und die Substratdicke d_s [Sto09].

Die Stoney-Gleichung ist allerdings in dieser Form nur gültig, solange (a) von einer biaxialen Spannung in Schicht und Substrat mit nur kleinen Verformungen ausgegangen wird, so dass die lineare Elastizitätstheorie gilt; (b) die epitaktische Schicht weniger als ein Prozent der Gesamtdicke ausmacht und (c) der Wafer homogen und vollflächig isotrop ist, wobei Randeffekte vernachlässigbar sind [Fre04]. Unter diesen drei Annahmen besitzt der verspannte Wafer eine sphärische Krümmung. Allerdings können innerhalb der gewachsenen vielschichtigen Halbleiterstruktur enorme Spannungen aufgebaut werden, beispielsweise durch Dotierungen und Heterostrukturen. Diese Spannungen können oberhalb eines temperaturabhängigen kritischen Werts teilweise durch das Substrat abgebaut werden, wobei sich der Wafer plastisch deformiert und es zu einer asphärischen Krümmung kommt [Dad13, Fri12]. Die enormen Spannungen enthalten häufig einen zusätzlichen uniaxialen oder hydrostatischen Spannungsanteil, weshalb die lineare Elastizitätstheorie nicht mehr uneingeschränkt anwendbar ist. Clos et al. erläuterten und berechneten den Zusammenhang zwischen Spannung und Krümmung im Bereich nichtlinearer und nichtplastischer Verformungen, wobei die Abweichung von der biaxialen Verspannung bis zu 100% betragen kann [Clo04, Clo10].

Die in dieser Arbeit aufgenommenen Krümmungsmessungen erfolgten an einfachen Teststrukturen mit Schichtdicken bis zu 2.5 μm . Für die Berechnung der Verzerrungen bzw. Verspannungen aus diesen Krümmungskurven ist die Stoney-Gleichung (2.22) noch anwendbar, was anhand von Röntgendiffraktometrieuntersuchungen belegt wurde.

2.5. Mikroskopische Verfahren

2.5.1. Feldemissions-Rasterelektronenmikroskopie (FE-REM)

Mit Hilfe der Rasterelektronenmikroskopie wird ein Abbild der elektronischen Oberflächenstruktur der untersuchten Probe in extrem hoher Auflösung und Tiefenschärfe gewonnen. Dabei wird die Probe mit einem feinen, fokussierten Elektronenstrahl schrittweise abgerastert. Es können zwei verschiedene Elektronentypen detektiert werden. Die energieärmeren Sekundärelektronen entstehen durch das Herausstoßen von Elektronen aus der Atomschale, wobei der Bildkontrast durch Materialunterschiede mit unterschiedlichen Austrittsarbeiten und dem vermehrten Austreten von Sekundärelektronen an Seitenflächen und Kanten begründet ist. Die energiereicheren rückgestreuten Elektronen sind von den Atomkernen (mit Kernladungszahl Z) der Probe elastisch reflektierte Primärelektronen, welche durch den entstehenden z -Kontrast Rückschlüsse auf die chemische Zusammensetzung der Probe zulassen.

Im Gegensatz zu den standardmäßig eingesetzten Rasterelektronenmikroskopen, bei denen die Primärelektronen thermisch emittiert werden, wird bei der Feldemissions-Rasterelektronenmikroskopie eine spitze Wolfram-Kaltkathode eingesetzt, bei der die Elektronen durch das anliegende hohe elektrische Feld aus der kalten Kathode heraustunneln und dadurch eine extrem schmale Energieverteilung für ein verbessertes Auflösungsvermögen besitzen. Mit einem FE-REM lassen sich Auflösungen bis in den unteren Nanometerbereich erreichen, so dass auch einzelne Quantenwells von MQW-Strukturen sichtbar gemacht werden können. Nachteilig bei der RE-Mikroskopie ist allerdings, dass die Proben leitfähig sein müssen, da sich ansonsten die Probe lokal elektrisch auflädt und den ankommenden Elektronenstrahl zu Lasten der Auflösung defokussiert. Isolierende Proben können dennoch mit dem REM untersucht werden, wenn sie vorher metallisch oder mit Kohlenstoff beschichtet wurden.

Die in dieser Arbeit präsentierten FE-REM Bilder wurden an einem Hitachi S4800 bei Beschleunigungsspannungen von 15 kV aufgenommen.

2.5.2. Nomarski Mikroskopie

Das Nomarski-Mikroskop ist ein Interferenzkontrastmikroskop, welches eine vertikale Auflösung besitzt, die wesentlich kleiner als die Wellenlänge des eingestrahlten Lichtes ist. Abgebildet wird der Höhenkontrast von Oberflächeninhomogenitäten innerhalb der untersuchten Probenoberfläche, wie z. B. Rauigkeiten, Wachstumsstufen oder Risse. Aufbau und Fotografien des Nomarski Mikroskops sind in Abb. 2.24 zu finden. Die extrem hohe Auflösung im unteren Nanometerbereich wird erreicht, indem das einfallende, polarisierte Licht durch ein Nomarski-Prisma in zwei kohärente und senkrecht zueinander polarisierte Teilstrahlen aufgespalten wird, die allerdings durch den polarisationsabhängigen Brechungsindex unter verschiedenen Winkeln aus dem Prisma austreten und nach der Parallelisierung durch einen Kondensator mit einem leichten örtlichen Versatz auf die Probe auftreffen. Die an der Probenoberfläche reflektierten Strahlen durchlaufen wieder den Primärstrahlengang bis zum Nomarski-Prisma, in dem die beiden unterschiedlich polarisierten Teilstrahlen zu einer Lichtwelle mit einer resultierenden Polarisation zusammengeführt werden. Diese resultierende Lichtwelle durchläuft anschließend einen Analysator, welcher eine zirkular polarisierte Lichtwelle, d. h. von zwei Teilstrahlen ohne Phasendifferenz, vollständig auslöschen würde. Wird allerdings der optische Gangunterschied der beiden Teilstrahlen durch Unebenheiten in der Pro-

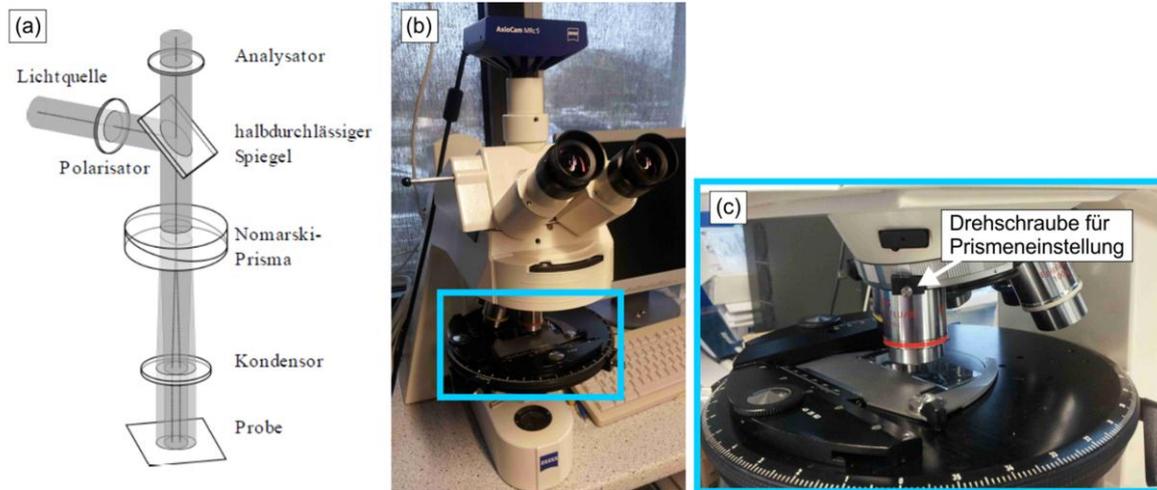


Abb. 2.24: (a) Strahlengang durch die optischen Komponenten in einem Nomarski-Mikroskop [Mil80], (b) Fotografien des eingesetzten Nomarski-Mikroskops mit vergrößert dargestelltem Objektivrevolver, wobei jedes Objektiv ein Nomarski-Prisma für die Kontrastoptimierung besitzt (siehe Foto c)

benoberfläche verändert, so dass die resultierende Welle elliptisch polarisiert wird, kann ein Anteil des Lichts den Analysator passieren. Im Mikroskop ist dann ein Hell-Dunkel-Kontrast in der Oberflächenabbildung erkennbar. Der Kontrast kann zusätzlich noch verstärkt werden, indem die beiden Prismenanteile des Nomarski-Prismas gegeneinander verschoben werden. Dadurch variieren der auftreffende Strahlabstand auf der Probe und gleichzeitig die Phasendifferenz beider Teilstrahlen [Rei09]. In dieser Arbeit wurde das Nomarski-Mikroskop AxioPlan 2 Imaging mit einer AxioCamMRC5 Kamera der Firma Zeiss verwendet.

2.5.3. Transmissionselektronenmikroskopie (TEM)

Bei der Transmissionselektronenmikroskopie (TEM) wird die Probe von einem feinen, homogenen Elektronenstrahl durchstrahlt und eine Abbildung bis hin zur atomaren Auflösung gewonnen. Die Elektronen werden mit einer Spannung von ca. 200 kV in Probenrichtung beschleunigt und über strahlformende Elektronenoptiken zu einem nahezu parallelen Strahl mit geringer Divergenz auf die Probe geführt. In der Probe werden die Elektronen durch die Coulomb-Wechselwirkung am Kristallgitter, ähnlich der Röntgendiffraktometrie, gebeugt. Anschließend werden die aus der Probe austretenden gebeugten Elektronen durch die Objektivlinse (Kondensor) in der Beugungsebene fokussiert, in der eine Separation der verschiedenen gebeugten Strahlanteile entsprechend ihrer Streuwinkel erfolgt. Aus dem Beugungsbild in der Beugungsebene lassen sich Abstand und Richtungen der entsprechenden Netzebenen bestimmen. Das resultierende TEM Bild wird schließlich in der Abbildungsebene erzeugt. Der Strahlengang eines TEM ist schematisch in Abb. 2.25 skizziert. Für ausführlichere Details zum TEM-Prinzip und der Analyse wird auf [Goo01] und [Pen11] verwiesen. Die in der Probe ablaufenden elastischen und inelastischen Beugungsprozesse werden empfindlich von der Materialbeschaffenheit, wie Ordnungszahl, Gitterkonstanten und Kristalldefekte, beeinflusst. So werden alle Veränderungen der Beugungseigenschaften in einem Hell-Dunkel Kontrast sichtbar. Durch gezielte Selektion eines gebeugten Teilstrahls in der Abbildungsebene kann je nach Beugungsreflex der Verlauf und die Zuordnung spezieller Versetzungstypen in der Probenstruktur sichtbar gemacht werden. Eine ausführliche Beschreibung der TEM

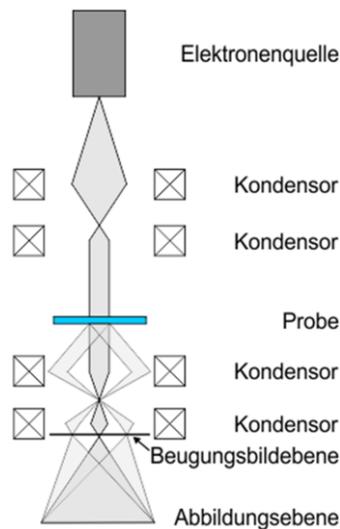


Abb. 2.25: Funktionsprinzip eines TEM mit Strahlengang und Elektronenstrahl formenden Optiken, nach [Rei09].

gestützten Defektanalyse wird in [Met98] und [Tok08] vertieft.

Nachteilig bei der TEM Methode ist, dass die Proben für die Elektronentransmission eine sehr geringe Dicke von etwa 100 nm besitzen müssen. Dafür werden die Proben mit entsprechend hohem präparativen Aufwand in mehreren Schritten gedünnt. Für die hochauflösende TEM (HRTEM) sind sogar noch kleinere Probenquerschnitte (< 80 nm) notwendig. Die in dieser Arbeit gezeigten TEM-Bilder wurden vom Institut für Kristallzüchtung (IKZ) in Berlin angefertigt. Weiterführende TEM Analysen (HRTEM und STEM) an diesen Proben werden in der Dissertation von Toni Markurt (IKZ) vorgestellt [Mar14].

2.6. Spektroskopische Verfahren - Photo- und Kathodolumineszenz

Sowohl die Photolumineszenz (PL) als auch die Kathodolumineszenz (KL) sind spektroskopische Verfahren zur Untersuchung der optischen Emissionseigenschaften der Proben. Dazu werden im Halbleitermaterial Elektronen-Loch-Paare erzeugt, die anschließend rekombinieren und bei strahlender Rekombination ein für die jeweilige Halbleiterprobe charakteristisches Spektrum emittieren. Aus Signalbreite und der energetischen Lage lassen sich Informationen über die Materialbeschaffenheit der Halbleiterstruktur gewinnen. So können aus dem Einzelspektrum Aussagen über die Komposition, Verspannung, Leuchteffizienz und die Defektdichte getroffen werden.

In der PL erfolgt für diese Arbeit eine optische Anregung durch Photonenbeschuss mit einem He-Cd-Laser (325 nm), dessen Photonenenergie größer als die Bandlücke des zu untersuchenden Halbleitermaterials ist. Die PL wird standardmäßig bei Raumtemperatur mit einem Anregungsfokus < 1 mm² durchgeführt. Für eine detaillierte Störstellenanalyse bedient man sich der Tieftemperatur-PL. Dabei wird die Probe mit Hilfe eines stickstoffdurchflossenen Kryostaten auf ca. 10 K gekühlt und anschließend schrittweise auf Raumtemperatur erwärmt. Das sich für jede Temperatur ändernde Spektrum gibt Aufschluss über die Defektnatur in der Probe.

Bei der Kathodolumineszenz (KL) wird die Anregungsenergie durch einen fokussierten Elektronenbeschuss zugeführt, wobei die Messung in der Regel bei einer Temperatur von etwa 5 K durchgeführt wird. Das Prinzip der Elektronenbeschleunigung gleicht dem des Rasterelektronenmikroskops. Die Primärelektronen werden je nach Probenbeschaffenheit mit etwa 3-7 kV auf die Probe beschleunigt. Die vertikale Informationstiefe der von den Sekundärelektronen erzeugten Lumineszenz beträgt dabei etwa 80-200 nm [Bri05]. Die laterale Auflösung hängt stark vom Strahlstrom, der Ladungsträgerdiffusion und der Beschleunigungsspannung ab. An der im Rahmen dieser Arbeit verwendeten KL-Anlage ist unter optimalen Anregungsbedin-

gungen eine laterale Ortsauflösung von 45 nm möglich, was hochortsaufgelöste Querschnittsaufnahmen zur vertikalen Spannungsanalyse in komplexen Probenstrukturen ermöglicht [Mue13]. Das emittierte Spektrum wird über den gesamten Halbraum integral detektiert und spektral ausgewertet.

3. Optimierung des Heteroübergangs Si(111) - GaN

Dieses Kapitel gibt einen Leitfaden für den Beginn des GaN Wachstums auf Si Substraten. Es werden unterschiedliche Methoden vorgestellt, um den Einfluss von Temperatur, Dauer und Komposition der Keimschicht auf die Qualität des darauffolgenden GaN zu untersuchen.

3.1. Ausgangssituation zur Nukleation von Gruppe-III-Nitriden auf Si (111)

Der erste und wichtigste Schritt für eine GaN Struktur auf Si(111) ist die Keimschicht. Sie erfüllt vier Funktionen. Zum einen bestimmt sie wesentlich die Qualität bzw. die Defektdichte des darauffolgenden GaN, zum zweiten ist die Keimschicht der erste Schritt der Spannungskompensation für eine rissfreie GaN Struktur und zum dritten bildet sie eine Art Isolationschicht zwischen GaN und dem Siliziumsubstrat, um das sogenannte „Meltback Etching“ zu verhindern. Zuletzt soll durch die Keimschicht die Diffusion der Si-Substratome in den Verbindungshalbleiter unterbunden werden [Tin11].

Das „Meltback Etching“ ist eine chemische Ätzreaktion zwischen Ga und Si, die bei Wachstumstemperaturen ab ca. 700 °C ausgelöst wird und zu einer starken Schädigung des Substrats und der GaN Struktur führt [Kro02, Dad03]. Als Keimschicht wurden deshalb zu Beginn der GaN auf Si Wachstumsuntersuchungen mehrere kristalline Materialsysteme, wie beispielsweise AlAs [Str97, Str99a], ZnO [Str99], BP [Nis00, Nis02], (3C)-SiC [Tak91, Kom09], GaAs [Yan96], γ -Al₂O₃ [Wak04, Ohs99] und AlN [Pal04, Wat93, Kun95] und sogar LT-GaN [Ish98, Hui04, Tak06] verwendet, letzteres um insbesondere das darauffolgende GaN gitterangepasst zu wachsen. Denn je höher die Gitterfehlanspassung, die zwischen GaN und Si (111) 17% beträgt, desto höher ist auch die Zahl der Anpassungsversetzungen an der Grenzfläche. Die Anpassungsversetzungen führen zu einer minimalen Rotation der initialen GaN Wachstumsinseln. Koaleszieren die fehlorientierten GaN Inseln entstehen an den Berührungsflächen Kleinwinkelkorn Grenzen, die den Ursprung der vertikalen Linienversetzungen bilden [Kwo09, Mor09]. Um das Entstehen von Anpassungsversetzungen zu verhindern, wurden amorphe Si_xN_y Schichten und Si_xN_y Maskierungen als Nukleation eingesetzt [Nak98, Ars09, Yod01]. Im Allgemeinen führt das Überwachsen der amorphen Schichten zu polykristallinem GaN [Pal04]. Eine leichte Benetzung mit Si_xN_y und das anschließende Überwachsen mit AlN reduziert wiederum die Zahl der Versetzungen beträchtlich. Gleichzeitig wird die Kristallorientierung des Si Substrates auf die AlN und GaN Schichten übertragen, da es sich dabei lediglich um eine Benetzung, nicht um eine geschlossene Schicht handelt [Ars09]. Für epitaktische GaN Schichten werden weitestgehend reine AlN Keimschichten ohne vorhergehende Substratnitridation angewendet. Um die Nitridation des Si Substrates zu verhindern, wird vor dem Schichtwachstum reines, metallisches Al abgeschieden [Yan00, Dad03, Cao10, Che01]. Die AlN Bekeimung selbst ist eine polykristalline und nicht vollständig koaleszierte Schicht. Dabei werden die AlN-Keimschichten noch einmal in Tieftemperatur (LT) und Hochtemperatur (HT) Keimschichten unterschieden.

Tieftemperatur AlN-Keimschichten werden bei deutlich tieferen Temperaturen als die HT-

AlN Keimschichten abgeschieden. Sie werden bezüglich ihrer Wachstumskonditionen als deutlich kritischer als die Hochtemperaturkeimschichten eingestuft. Bei einer Wachstumstemperatur von ca. 630°C sollen nur wenige Graddekaden von dieser Zieltemperatur entfernt keine gelingende Bekeimung mit guter GaN Qualität mehr realisierbar sein [Dad11a]. Insbesondere die Bekeimung im Mitteltemperaturbereich führe zu einer geringen Kristallqualität des GaN. Eine einfache Erklärung für den eingeschränkten Tieftemperaturbereich soll sein, dass ausschließlich HT-AlN eine strikte c-Achsenorientierung senkrecht zur Oberfläche in der darauffolgenden Schicht bewirken kann [Tin11]. Tatsächlich sind in der Literatur nur wenige GaN auf Si Strukturen mit LT-AlN Keimschichten zu finden [Cao10, Xio10, Dad03, Tin11], noch weniger sind Untersuchungen über geeignete Wachstumskonditionen dieser dokumentiert.

Hochtemperatur AlN Keimschichten werden bei Wachstumstemperaturen um ca. 1000°C abgeschieden, welche von einigen Arbeitsgruppen angewandt werden [Kim10, Kim10a]. Allerdings stößt man auch hier in der Literatur nur in sehr wenigen Fällen auf GaN Strukturen, die auf einer HT-AlN Bekeimung abgeschieden sind. Bisher ist nicht bekannt, ob HT-AlN Keimschichten zu besseren Strukturen führt, oder nicht. Einer der Gründe dafür liegt darin, dass die Bekeimung einen essentiellen Teil der Bauteilstruktur darstellt, die jeder vertraulich behandelt.

Nach der Keimschicht wird allerdings noch nicht direkt die erste GaN Schicht abgeschieden, denn die AlN Bekeimungsinselfen besitzen noch keine strikte c-Achsenorientierung, die dem darauffolgenden GaN aufgeprägt wird und ein hochwertiges GaN Wachstum voraussetzt [Rei09]. Auf die Nukleation wird folglich eine dicke Hochtemperatur (HT)-AlN Schicht gewachsen, welche die mehrheitlich durch die vorgegebene Substratorientierung vorhandenen, c-achsenorientierten Bekeimungskristallite favorisiert und eine einheitliche, geschlossene AlN Schicht bildet. Wegen der kleineren Gitterparameter dieser relaxierten HT-AlN Schicht, wird das darauffolgende GaN kompressiv vorgespannt, welches bei Prozesstemperaturen über 1000°C bestrebt ist, die darunterliegenden Gitterparameter des Pseudosubstrates anzunehmen. Um das Relaxieren des überwachsenen GaN und die damit einhergehende Bildung von Anpassungsversetzungen zu verhindern, wird des Öfteren zusätzlich ein gradierter AlGaIn Puffer eingebaut, der das GaN aufgrund der geringeren Gitterfehlpassung versetzungsärmer, aber weniger kompressiv vorgespannt, überwachsen lässt [Kim 01, Lin09, Abl05, Wei11]. Weitere Versuche eine glattere und defektarme GaN Oberfläche zu gewinnen, wurden mit HT-AlN/LT-AlN Übergittern [Ars08], mit dem Einbau eines quaternären AlInGaIn Puffers [Wu05, Wu08] oder mit dem Einfügen einer in-situ SiN Maskierung auf der AlN Keimschicht [Dad03b] erreicht. Schließlich hat sich für ein hochwertiges GaN Wachstum auf Si(111) Substraten eine AlN/AlGaIn Pufferstruktur mit einer SiN Maskierung etabliert, mit der die Defektdichte im GaN noch einmal drastisch reduziert werden kann [Dad02a, Ars09, Hae10]. Die SiN Maske wirkt als ELO Struktur (epitaxial lateral overgrowth), wobei Si Atome Ga Plätze einer GaN-Monolage besetzen und mit längerer Maskierungszeit die Besetzungsdichte der Si Atome höher wird. Die SiN Maske wirkt als Filter für einen Großteil der Linienversetzungen infolge der Defektannihilation, die durch den Spannungsaufbau der SiN Maske begünstigt wird [Con02]. Dadurch können im GaN Defektdichten im 10^8 cm^{-3} Bereich erzielt werden [Hae10].

Bevor der gitteranpassende und defektreduzierende Puffer gewachsen wird, beeinflusst die AlN Bekeimung wesentlich die Eigenschaften des darauffolgenden Systems. In der Literatur

existiert bislang keine umfassende Studie über die Empfindlichkeit der HT- oder LT-AlN Keimschichten in Abhängigkeit von den Prozessparametern, ebenso wenig wie ein Vergleich, ob HT- oder LT-AlN Keimschichten zu einer besseren GaN Qualität führen. Im Folgenden wird der Einfluss von Prozessparametern, wie Temperatur, Al-Vorströmzeit, AlN Wachstumszeit und die Komposition bei ternären Keimschichten variiert und schließlich die HT- und LT-AlN Bekeimungen bezüglich der GaN Qualität verglichen.

3.2. Optimierungsvorgehen für die gesamte Basisstruktur

Ein wichtiges Prozedere vor dem epitaktischen Bewachsen des Si-Substrates ist die nasschemische Vorbehandlung in einem mehrmaligem Wechsel zwischen der Säuremischung $\text{H}_2\text{SO}_4:\text{H}_2\text{O}_2:\text{H}_2\text{O}$ (3:1:1) und HF (5%). Dadurch wird die Substratoberfläche zunächst oxidiert und anschließend durch die HF-Benetzung deoxidiert und gleichzeitig wasserstoffterminiert, welche etwa 24 Stunden anhält [Gru91, Rei09].

Alternativ zur aufwendigen nasschemischen Behandlung können die Si-Substrate auch im Reaktor in einer H_2 -Atmosphäre ausgeheizt werden.

Für die Optimierung der Keimschichten wurden AlN-Keimschichten sowohl im Hochtemperatur- als auch im Tieftemperaturbereich sukzessive untersucht, aber auch ternäre Nukleationen bestehend als AlGaIn oder AlInN.

Für die Dimensionierung der Keimschichten zur Verbesserung der GaN Schichtqualität wurde eine Basisstruktur verwendet, bestehend aus:

- a) Nukleationsschicht (20-50 nm)
- b) HT-AlN Schicht (~125 nm)
- c) erste GaN Deckschicht (~700 nm)

Das Wachstum beginnt mit zunächst mit dem Abscheiden einer dünnen und reinen Aluminiumbenetzung, um die Substratnitridation zu unterbinden. Die darauffolgende Keimschicht besteht aus einer dünnen, nicht geschlossenen Schicht. Sowohl die HT, als auch für die LT-AlN Keimschicht wurden mit einem TMAI Fluss von $8.7 \mu\text{mol}/\text{min}$ und einem Ammoniakfluss von $22 \text{ mmol}/\text{min}$ gewachsen. Die darauffolgende etwa 120 nm dicke HT-AlN-Schicht ($T \approx 1020^\circ\text{C}$) wurde mit einem 4-fach höherem Aluminiumangebot von $34.6 \mu\text{mol}/\text{min}$ (TMAI) bei $\text{NH}_3 = 8.9 \text{ mmol}/\text{min}$ abgeschieden, um dem darauffolgenden GaN die c-Achsenorientierung aufzuprägen und ein 2D-Wachstum des GaN zu erreichen [Yue09]. Als Substrat wurden $2''$ Silizium (111) Wafer verwendet. Die Siliziumsubstrate sind $500 \mu\text{m}$ dick und hoch mit Arsen dotiert, wodurch sie einen Widerstand von $0.01 \Omega\text{cm}$ besitzen.

Die GaN Deckschicht wurde in 2 Stufen gewachsen. Zuerst führt ein niedriges V/III Verhältnis von 405 bei Flussraten von $\text{TMGa} = 108.4 \mu\text{mol}/\text{min}$ und $\text{NH}_3 = 44 \text{ mmol}/\text{min}$ zu einem 3-D Wachstum, danach erzielt ein nahezu verdoppeltes V/III Verhältnis von 923 durch die Verdopplung des Ammoniakflusses und einer leichten Reduktion des TMGa-Flusses auf $96.4 \mu\text{mol}/\text{min}$ ein Ansteigen der Wachstumsrate mit gleichzeitigem Wachstumsmodenwechsel zum 2-D Wachstum. Als Trägergas wurde durchgehend H_2 eingesetzt.

Die Wirksamkeit jedes einzelnen Optimierungsschritts für diese Basisstruktur wird anhand der resultierenden Qualitätsverbesserung der GaN Deckschicht bewertet. Dabei werden unvermeidbare und reaktorbedingte, laterale Variationen der Schichteigenschaften, z. B. Tempe-

raturschwankungen und -inhomogenitäten infolge von Waferverkrümmungen, als Fehlerquelle ausgeschlossen, indem nur im Zentrum der Wafer systematisch ausgewertet wird.

Für die nachfolgenden Optimierungsschritte werden hauptsächlich die Halbwertsbreiten der röntgenographischen ω -Scans der GaN Deckschicht als Maß für die Kristallqualität verwendet. Die ω -Halbwertsbreiten geben sowohl Informationen über den Twist ($10\bar{1}0$) und Tilt (0002), als auch über die laterale oder vertikale Kohärenzlänge, d.h. über die mittlere Größe der idealen, störungsfreien GaN Kristallite [Met98, Rat00, Lee05]. Nach dem Mosaik-Block-Modell korrelieren der Twist und der Tilt wiederum linear mit der Zahl der vertikalen Linienversetzungen [Met98]. Der Twist stellt dabei ein Maß für alle Linienversetzungen mit einem Burgers-Vektor mit a-Komponente dar, der Tilt gleichermaßen für alle Versetzungen mit c-Komponente. Somit kann die Röntgendiffraktometrie indirekt zur Defektdichtebestimmung verwendet und zur Erklärung der auftretenden Diskrepanz zwischen den Twist- und Tiltwerten herangezogen werden. Je kleiner die ω -Halbwertsbreite bei fester GaN Schichtdicke ist, umso geringer ist die Anzahl der c-Typ Versetzungen (Tilt) und a-Typ Versetzungen (Twist) in der GaN Deckschicht. Gleichzeitig weisen sehr kleine Tilt- und Twistwerte auf eine gute Textur der GaN Schicht hin.

3.2.1. HT-AlN Keimschichten

Einfluss der Wachstumstemperatur

Für die Optimierung der HT-AlN Keimschichten wurde zunächst die Wachstumstemperatur der Bekeimung zwischen 935°C und 1110°C variiert. Der Aluminiumvorfluss wurde für die Temperaturvariation anfänglich auf 4 Sekunden eingestellt.

Unter Verwendung der HT-AlN Keimschichten ist die Qualität der GaN Schichten sehr empfindlich von der Prozesstemperatur der Bekeimung abhängig. Bereits mit dem bloßen Auge ist eine Aufrauung am Rand der Wafer sichtbar, sobald die Bekeimungstemperatur auch nur um wenige Grad ($\pm 10^\circ\text{C}$) vom optimalen Wert von 980°C abweicht. Je weiter die Temperatur sinkt oder steigt, reicht die graue Mattierung immer weiter in die Wafermitte hinein.

Da die reaktorbedingten Temperaturschwankungen (beispielsweise durch die zunehmende Linerbelegung [Rei09]) relativ groß sind, schwankt auch die kristalline Qualität der GaN Teststrukturen entsprechend stark (siehe Messwertstreuung in Abb. 3.1).

Der Vergleich der ω -Halbwertsbreiten der verschiedenen GaN-Reflexe zeigt einen besseren Tilt bei der geringsten Wachstumstemperatur von 935°C der HT-AlN Keimschichten. Allerdings sagen die ω -Halbwertsbreiten im streifenden Einfall einen besseren Twist für Temperaturen knapp unter 1000°C aus. Der Grund für die unterschiedlichen Qualitäten liegt in der Anzahl und Art der sich bei der GaN Koaleszenz bildenden Versetzungen. Die erheblich höheren Twistwerte weisen auf eine wesentlich höhere Dichte an Stufenversetzungen hin, die niedrigeren Tiltwerte dagegen bedeuten eine geringere Anzahl an Schraubenversetzungen, wobei eine geringe c-Typ Defektdichte nicht gleichzeitig mit einer geringeren a-Typ Defektdichte korreliert.

Unter dem Aspekt, dass im GaN erheblich mehr a-Typ Versetzungen vorhanden sind, ist es deshalb sinnvoller die Teststrukturen im Weiteren bezüglich eines niedrigen Twistes zu optimieren.

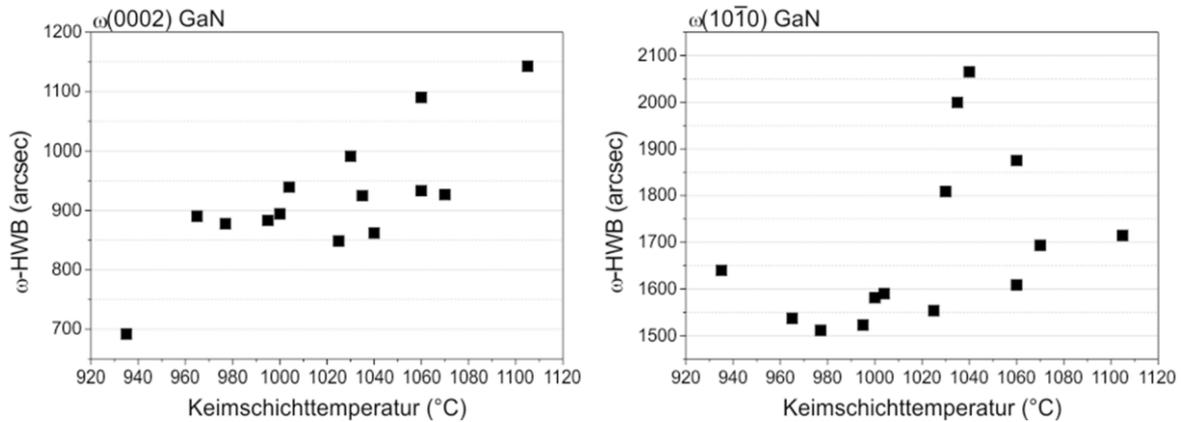


Abb. 3.1: ω -Halbwertsbreiten des GaN auf einer HT-AlN Bekeimung, die bei verschiedenen Temperaturen abgeschieden wurden.

Dass die Versetzungen schon während der Bekeimung gebildet werden und in der darauffolgenden HT-AlN Schicht fortlaufen, untermauern die Messungen der symmetrischen ω -Halbwertsbreiten dieser HT-AlN Schichten (hier nicht gezeigt). Der Verlauf der HT-AlN ω -Halbwertsbreiten mit der Temperatur ist weitestgehend identisch mit entsprechenden GaN Halbwertsbreiten. Demzufolge prägt die darunterliegende HT-AlN Schicht dem GaN nicht nur die Orientierung auf, sondern bestimmt auch maßgeblich dessen Qualität. Die wesentlich höheren Tiltwerte des HT-AlN (~ 3200 arcsec) sind nicht allein aus dem schlechten Signal-Rausch Verhältnis und der geringen Schichtdicke (nur etwa 125 nm) des AlN zu erklären, sondern auch aus dessen wesentlich höherer Defektdichte. Mit dem Überwachsen des GaN und der damit einhergehenden Spannungsänderung, knicken die Mischversetzungen ab und annihilieren zu einem Großteil in den ersten 100 nm des GaN [Rom03, Mor09]. Aus diesem Grund ist die GaN Qualität um mehr als 2000 arcsec besser als das AlN darunter.

In den Nomarski Aufnahmen von den GaN Oberflächen in Abb. 3.2 zeigt sich, dass auch die Oberflächenqualität der GaN Teststruktur empfindlich von der Bekeimungstemperatur abhängt. Bei Keimschichttemperaturen ab 1040°C ist die GaN Oberfläche sehr feinkörnig. Zusätzlich tauchen jedoch vereinzelt Risse auf, was auf die starke tensile Verspannung innerhalb der GaN Schicht hinweist. Kleine GaN Wachstumsinseln bedeuten eine feine Körnigkeit und eine hohe Anzahl von Linienversetzungen und somit auf einen erhöhte tensile Verspannung hin [Böt01, Dad03, Mor08]. Bei Bekeimungstemperaturen unter 1040°C nimmt die Korngröße zu. Die Kristallite sind größer und gleichzeitig die Liniendefekte geringer, was auch die ω -Halbwertsbreiten belegen.

Ausnahmslos alle GaN Teststrukturen sind tensil verspannt. Die geringste tensile Verspannung weisen die Teststrukturen mit einer Keimschicht auf, die bei Temperaturen zwischen $995 - 1040^\circ\text{C}$ gewachsen wurden. Je heißer die Keimschichten gewachsen wurden, desto höher wurde die Rissdichte des GaN.

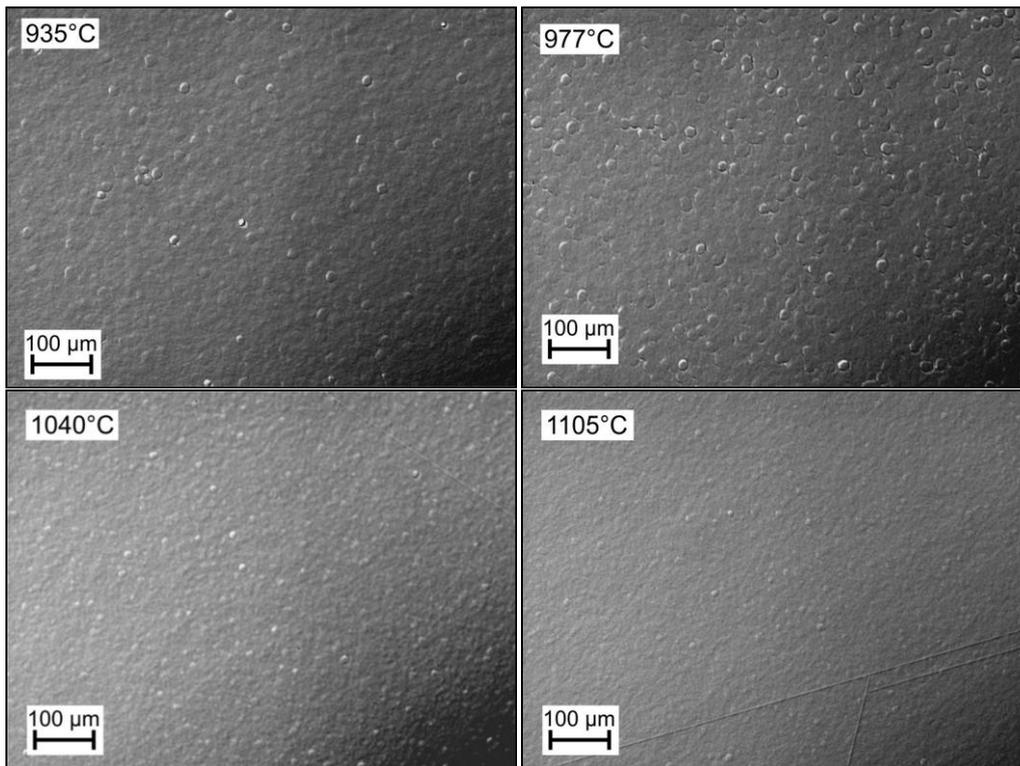


Abb. 3.2: Nomarski Aufnahmen der GaN Oberflächen abhängig von verschiedenen Wachstumstemperaturen der HT-AlN Keimschichten.

Einfluss der Aluminium-Vorströmzeit

Die intensive Analyse der GaN Qualität in Abhängigkeit von der initialen Al-Bedeckung der Si-Substratoberfläche ergibt, dass es auch beim Al-Vorströmen ein sehr enges Zeitfenster für eine gute GaN Qualität gibt. Im Vorströmprozess wird das Si-Substrat zum Schutz vor Nitridation mit reinem Aluminium benetzt, wobei die Benetzungszeit einen drastischen Einfluss auf die darauffolgende Keimschicht und den nachfolgenden Schichtaufbau hat. Sowohl der Al-Vorfluss, als auch die AlN Bekeimung wurden bei 1030°C durchgeführt. Das darauffolgende HT-AlN wurde bei 1020°C und das abschließende GaN bei 1060°C abgeschieden. Diese Temperatúrauswahl ergab die geringste Rissdichte und eine mittlere GaN Qualität bezüglich der ω -Halbwertsbreiten von <700 arcsec.

Schon während des Herstellungsprozesses lässt sich die Schichtqualität der Teststruktur mithilfe von in-situ Reflexionsmessungen überwachen. Die Reflektivitäten spiegeln die Qualität der GaN Oberfläche schon nach wenigen Minuten des GaN Wachstums wieder (Abb. 3.3). Mit einer Aluminiumbedeckung von 6 Sekunden bilden sich ausgeprägte Oszillationen mit hoher Amplitude aus, welche eine glatte Oberfläche signalisieren. Die erste Oszillation nimmt eine geringere Amplitude an, da dort die Schicht noch nicht vollständig geschlossen ist. Die Schichtdickenoszillationen erreichen ihr Maximum, wenn die Schicht vollständig geschlossen ist.

Bei zu viel (16 sek.) bzw. zu wenig (2 sek.) vorangehender Aluminiumbedeckung entstehen keine ausgeprägten Oszillationssignale, was auf eine starke Rauigkeit infolge von 3-D Wachstum und ausbleibender Koaleszenz der GaN Oberfläche hindeutet. Die Qualität einer gelun-

genen Keimschicht lässt sich allerdings erst während des GaN Wachstums einschätzen, weil die AlN Keimschicht und die darauf gewachsene dünne HT-AlN Schicht auf dem Si-Substrat zu dünn für die eingesetzten Wellenlängen sind und somit keine eindeutige Morphologieinterpretation zulassen.

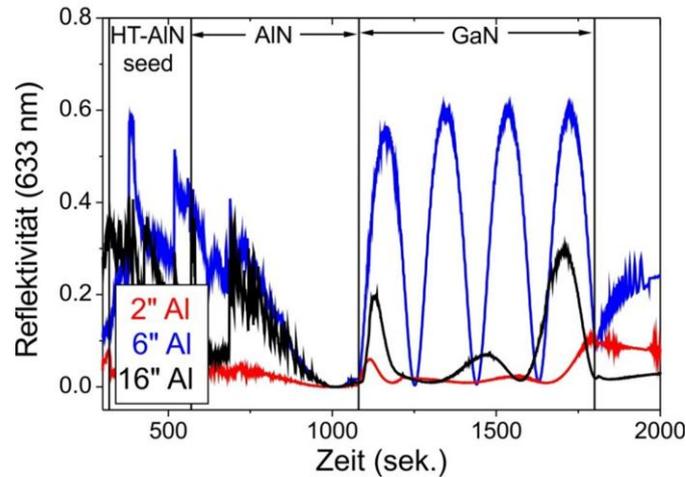


Abb. 3.3: In-situ Reflektivitätsmessung, gemessen mit 633 nm, von der GaN Teststrukturen in Abhängigkeit von drei verschiedenen Aluminiumbenetzungszeiten vor dem Keimschichtwachstum.

Die GaN ω -Halbwertsbreiten in Abhängigkeit von der Al-Bedeckungszeit zeigen, wie von der in-situ Reflexionsmessung prognostiziert, ein deutliches Qualitätsoptimum bei einer Vorströmzeit von 6 Sekunden (Abb. 3.4). Diese Aluminiumbenetzung hat dabei einen größeren Einfluss auf die Verdrehung der GaN Kristallite (Twist), bzw. auf die Dichte der Linienversetzungen mit a-Komponente, als auf den Tilt. Bei Vorströmzeiten zwischen 6-8 Sekunden besitzt das GaN einen ähnlichen Tilt und wird erst mit noch höheren Vorströmzeiten schlechter.

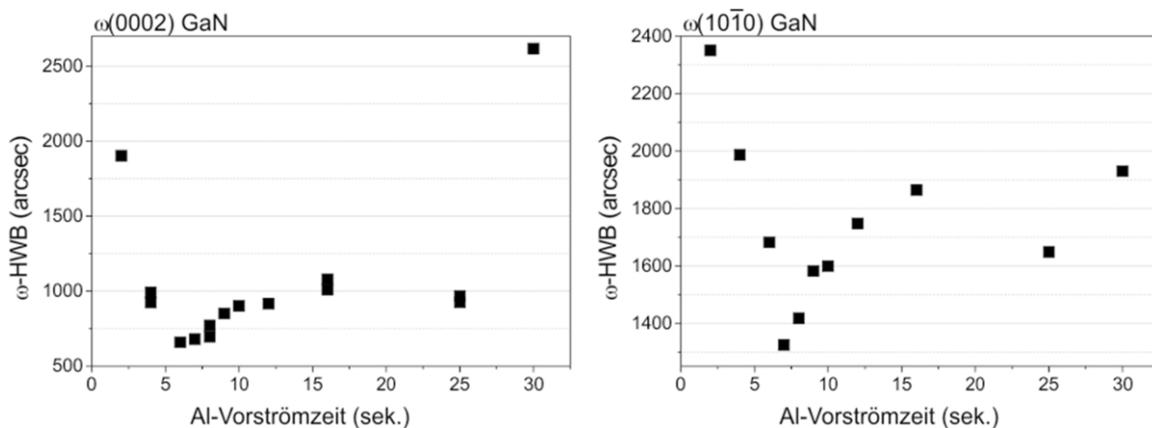


Abb. 3.4: ω -Halbwertsbreiten vom GaN in Abhängigkeit von variierten Al-Vorströmzeiten.

Die Röntgenergebnisse bestätigen Resultate von Chen et al., dass bei ungenügender bzw. fehlender Aluminiumbedeckung die GaN Oberfläche stark aufraut [Che01], da die Si-Substratoberfläche beim Zuschalten des Ammoniak nitridiert und die strenge Orientierung des GaN Kristalls behindert. Die raue Oberfläche führt zu einem hohen diffusen Streuanteil bei der ω -Messung im streifenden Einfall, weshalb der Twist bei 2 sek. Al-Benetzung sehr

(2350 arcsec) hoch ist. Wie auch eine einfache visuelle Inspektion zeigt, ist zwischen 4 und 9 Sekunden langer Aluminiumvorströmzeit die Oberfläche glatt und spiegelnd. Stärkere Aluminiumbedeckungen führen wieder zu einer matten Oberfläche, was durch die Reaktion zu einer AlSi Legierung bei Überangebot von Al erklärt werden kann [Che01].

Der Vergleich der GaN Oberflächen in den Nomarski Aufnahmen (Abb. 3.5) bestätigt ebenfalls die Beobachtung von Chen et al., dass es bei zu geringer Aluminiumbedeckung zu einer Aufrauung der GaN Oberfläche kommt [Che01]. Bei Vorströmzeiten zwischen 4-9 Sekunden sind die GaN Oberflächen glatt, allerdings tauchen bei nur 4 Sekunden Aluminiumbedeckung vereinzelt Risse auf. Ab 10 Sekunden setzt wieder die Oberflächenaufrauung ein, die mit stärkerer Aluminiumbedeckung ausgeprägter wird. Die stärkere Oberflächenaufrauung mit der Aluminiumbedeckung steht im Widerspruch zu Kim et al. Sie beobachten eine höhere Rissdichte mit zunehmender Aluminiumbedeckung [Kim10, Kim10a]. Bei ihren Teststrukturen werden allerdings bei geringerem Reaktordruck (66 mbar) gewachsen, was die Spannung der GaN Schicht bei der HT-Prozesstemperatur empfindlich beeinflussen kann.

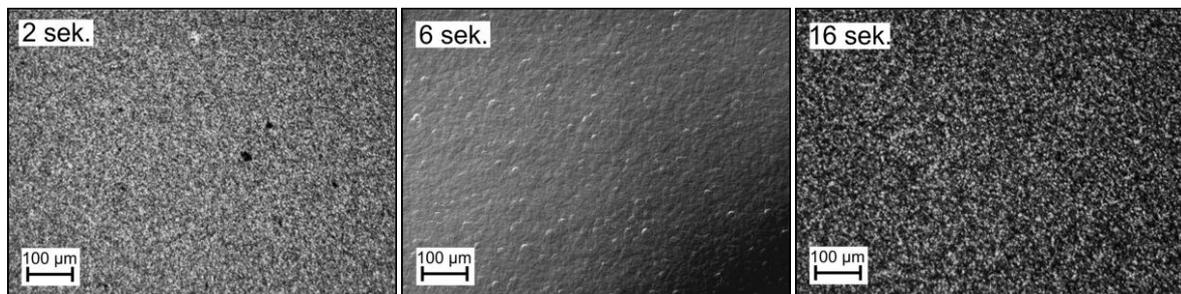


Abb. 3.5: Nomarski Aufnahmen der GaN Oberflächen in Abhängigkeit von der Aluminium Vorströmzeit vor dem Abscheiden der HT-AlN Keimschicht.

Die Ursache der schlechten GaN Morphologie bei nur 2 sek. Aluminiumbedeckungszeit zeigen die FE-REM Aufnahmen in der Draufsicht in Abb. 3.6. Die GaN Inseln sind nicht vollständig koalesziert. In den schmalen Inselzwischenräumen ist die HT-AlN Oberfläche zu erkennen, die keine scharfe Grenzfläche zum darauffolgenden GaN bildet, sondern aus einzelnen Konglomeraten ohne hexagonale Symmetrie zu bestehen scheint. Dies ist konsistent zu den schwachen in-situ Reflektivitätssignalen während der HT-AlN Abscheidung in Abb. 3.3.

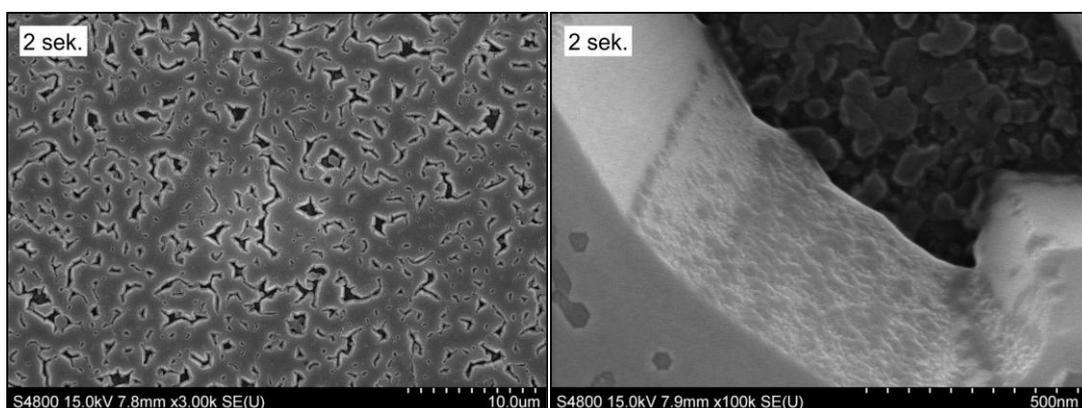


Abb. 3.6: FE-REM Draufsichtaufnahmen in verschiedenen Vergrößerungen der GaN Oberfläche mit 2 sek. Aluminiumbedeckung vor der HT-AlN Bekeimung.

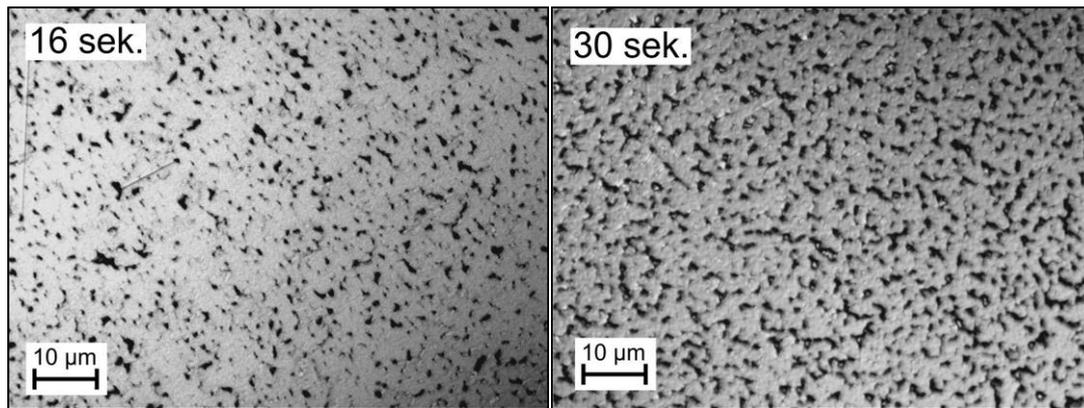


Abb. 3.7: Nomarski Aufnahmen der GaN Oberfläche mit 16 sek. (links) und 30 sek. Aluminiumvorströmzeit (rechts).

Je weiter die Aluminiumbenetzung gesteigert wird, desto feinkörniger wird die GaN Oberflächenrauigkeit. Die GaN Oberflächenmorphologie bei 16 sek. Al-Bedeckung ist gröber, als die feinkörnige GaN Oberfläche mit höherem Aluminiumgehalt (z.B. 30 sek.). Die hochauflösenden Nomarski Aufnahmen in Abb. 3.7 zeigen eine nicht vollständig koaleszierte GaN Schichtoberfläche bei 16 sek. Al-Vorströmzeit, die zusätzlich einige Risse besitzt. Bei höherer Aluminiumbedeckung (30 sek.) scheint die Koaleszenz gehemmt. Die GaN Inseln wirken abgerundet und das Zusammenwachsen der Inseln wesentlich weniger vorangeschritten.

Kritische Rissdicke der GaN Deckschicht

Nachdem für HT-AlN Keimschichten eine Wachstumstemperatur von 1030°C und eine 6 sekündige Aluminiumprädeposition als die optimalen Prozessparameter für eine hochwertige und rissfreie GaN Struktur ermittelt wurden, interessiert nun welche kritische Rissdicke der GaN Schicht mit dieser Keimschicht erreicht werden kann. Unter Beibehaltung des Puffersystems wurde die GaN Schichtdicke schrittweise bis zur Rissgrenze erhöht. Mit dicker werdender GaN Schicht reduzieren sich der Halbwertsbreiten beider Röntgenreflexe, vgl. Abb. 3.8. Dies liegt am Annihilieren von Versetzungen mit entgegengesetzten Burgers-Vektoren, was zu einer Verbesserung der Twist- und Tiltwerte führt. Die Schicht beginnt bei 900 nm GaN Dicke zu reißen und wird mit steigender Schichtdicke immer rissiger. Bis dahin nimmt der Tilt kontinuierlich mit der Schichtdicke ab, steigt aber nach Überschreiten der Rissgrenze wieder leicht an. Die ω -Halbwertsbreite des $(10\bar{1}0)$ Reflexes im streifenden Einfall nimmt ebenso bis zur kritischen Rissdicke ab und steigt danach wieder abrupt an. Die Verschlechterung der Kristallqualität nach Überschreiten der Rissgrenze hat möglicherweise etwas mit den entstehenden Mikrorissen zu tun, die mit steigender Schichtdicke zunehmen [Lee07]. Neben dem spannungsbedingten Abknicken der Versetzungen wird noch eine zusätzliche Beweglichkeit der Versetzungen aufgrund eines thermisch getriebenen Vakanzen-Diffusionsmechanismus angenommen, welcher das Annihilieren von entgegengesetzten Linienversetzungen unterstützt [Fol05, Mor10]. Entstehen die Mikrorisse während des Wachstums, werden die Beweglichkeit der Versetzungen und folglich der Annihilationsprozess dieser gestört, was das Einbrechen der GaN Qualität nach dem Reißen der Schicht erklärt.

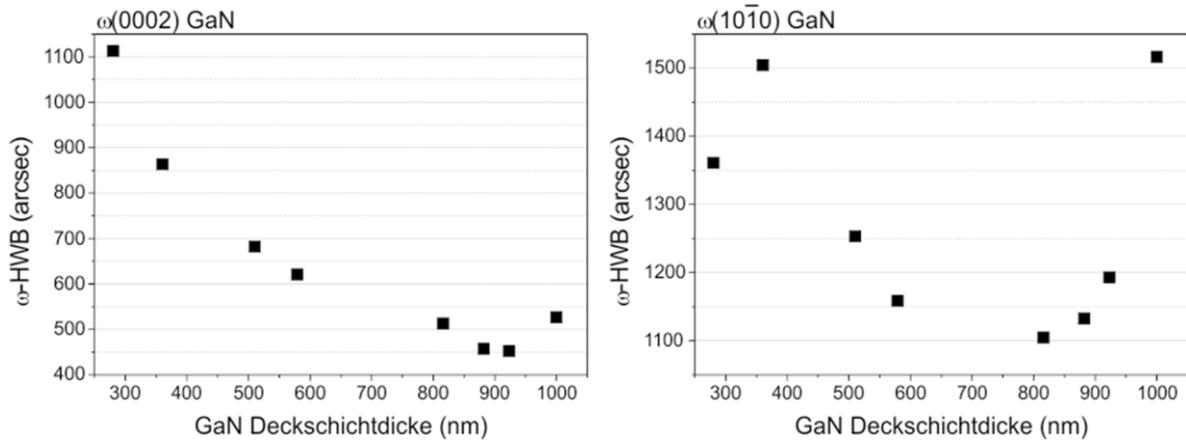


Abb. 3.8: ω -Halbwertsbreiten des symmetrischen (0002) GaN Reflexes (links) und des $(10\bar{1}0)$ Reflexes im streifenden Einfall (rechts) in Abhängigkeit von der steigenden GaN Schichtdicke, welche auf der optimierten HT-AlN Keimschicht gewachsen ist.

Mit Erreichen der kritischen Rissdicke von ca. 900 nm, steht die GaN Schicht unter 0.9 GPa tensiler Spannung, siehe Abb. 3.9. Schon bei nur 280 nm besitzt die Schicht eine Spannung von 0.66 GPa. Mit jedem weiteren 100 nm werden zusätzlich ca. 0.1 GPa tensile Verspannung aufgebaut. Mit einer zusätzlichen AlGaN Schicht wurde bereits eine 2 μm dicke GaN Schicht auf einer HT-AlN Keimschicht realisiert [Men10]. Eine Variation der HT-AlN Dicke soll ebenfalls einen hohen Einfluss auf die GaN Qualität haben. Mit einer HT-AlN Dicke von 120 nm wurden nahezu rissfreie 2.5 μm GaN Schichten realisiert [Kim10a]. Um eine defekt- und spannungsoptimierte GaN Struktur für das Bauteilstrukturwachstum herzustellen, muss vor Erreichen der kritischen Rissdicke eine Zwischenschicht eingeführt werden. Die Resultate der entsprechenden Zwischenschichtoptimierung werden in Kapitel 4 ausführlich vorgestellt.

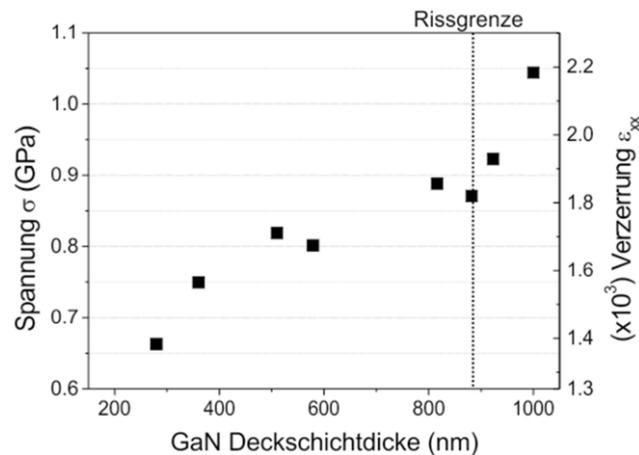


Abb. 3.9: Zunahme der Spannung mit der GaN Schichtdicke auf der optimierten HT-AlN Keimschicht

3.2.2. LT-AlN Keimschichten

Einfluss der Wachstumstemperatur

Für die Tieftemperaturbekeimung wurde die Wachstumstemperatur zwischen 530°C und 840°C bei einer anfänglichen Al-Vorbenetzung von 10 Sekunden variiert. Der Einfluss der Bekeimungstemperatur auf die Kristallqualität der abschließenden GaN Schicht wurde anhand von symmetrischen und streifend einfallenden ω -Scans untersucht. Aufgrund der Schwankungen infolge der reaktorbedingten Temperaturendrifts kann sowohl aus der Tiltmessung (Abb. 3.10 a) als auch aus der Twistmessung (Abb. 3.10 b) kein eindeutiges Temperaturoptimum für die Tieftemperaturbekeimung abgeleitet werden. In beiden Messungen ist aber ein Trend zu erkennen, in dem ein Temperaturbereich zwischen 675°C und 725°C deutlich wird, in welchem die Keimschicht zu einer besseren GaN Qualität führt als davon abweichende Keimschichttemperaturen. Da mit Hilfe der Twistmessung die Anzahl der im GaN vermehrt auftauchenden a-Typversetzungen qualitativ erfasst wird und die Reduktion der a-Typ Versetzungen ein maßgebliches Qualitätskriterium für GaN Strukturen darstellt, wird bei der Keimschichtoptimierung insbesondere der Einfluss auf den Twist berücksichtigt. Für die weiteren Experimente wird eine Keimschichttemperatur von 685°C gewählt, da diese Temperatur im besagten optimalen Temperaturbereich liegt und zusätzlich zu einem Minimum des Twists führte.

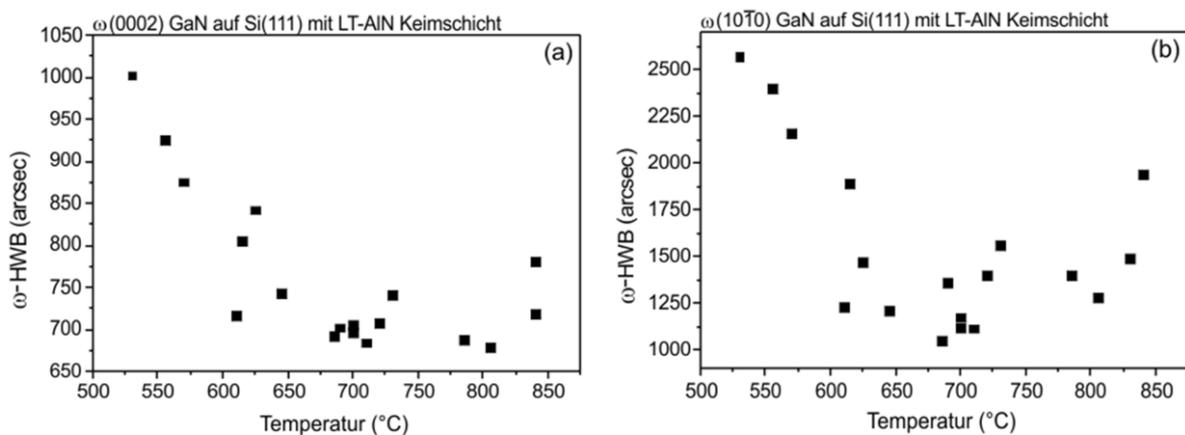


Abb. 3.10: Einfluss der Wachstumstemperatur der LT-AlN Keimschicht auf die GaN Qualität. (a) Verkippung (Tilt) innerhalb der GaN Schicht aus der ω -(0002)-Messung und (b) Verdrehung (Twist) der GaN Kristallite aus der ω -(10 $\bar{1}$ 0)-Messung.

Neben dem Tilt und Twist wird auch das c/a-Verhältnis als weiteres Kriterium zur Temperaturoptimierung herangezogen, siehe Abb. 3.11. Ein idealer hexagonaler Kristall besitzt ein c/a-Verhältnis von 1.63299, welches das ideale Achsenverhältnis für eine perfekt dichte Kugelpackung in der Atomanordnung beschreibt. Der Grad der Abweichung von dem c/a-Verhältnis, welches idealerweise im GaN erreicht werden kann, stellt die Güte der GaN Kristallqualität dar. Aus dieser Betrachtung heraus ergibt sich auch hier als optimale Bekeimungstemperatur ein Bereich von etwa 50° um 700°C herum, wenn man dem Verlauf des Trends folgt. Die in der Literatur verwendeten Temperaturen von 700°C [Xio10], 720°C [Dad03], 820°C [Cao10] führen in der hier präsentierten Serie zu keinen besseren GaN Qualitäten.

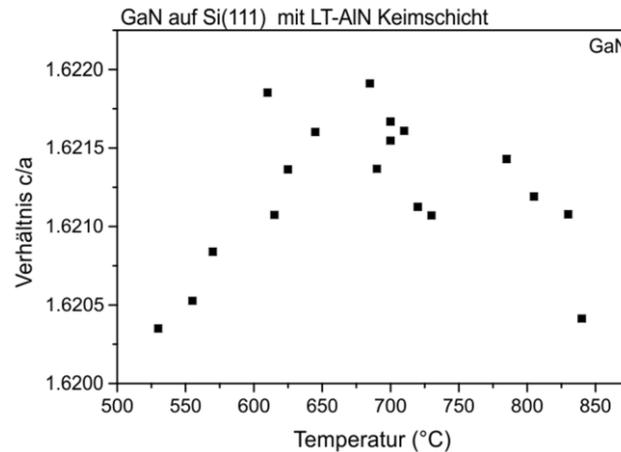


Abb. 3.11: GaN Gitterverhältnis c/a in Abhängigkeit von der Bekeimungstemperatur der LT-AlN Keimschicht. Die Gitterparameter sind aus den symmetrischen und streifend einfallenden $\omega/2\theta$ -Messungen gewonnen.

Für die Prozessoptimierung wurden zusätzlich die symmetrischen Röntgenmessungen am AlN hinzugezogen. Auch das unmittelbar nach der Keimschicht folgende 125 nm dicke HT-AlN, welches die strikte c-Achsenorientierung auf das GaN überträgt, zeigt im temperaturabhängigen Verlauf der ω -Halbwertsbreiten eine bessere Schichtqualität bei einer Wachstumstemperatur von 685°C.

Interessanterweise korreliert der Verlauf der AlN c-Gitterkonstante direkt mit dem Verlauf der ω -Halbwertsbreiten (Abb. 3.12). Dieser Zusammenhang steht im Widerspruch zu der Beobachtung, dass defektreichere Kristalle stärker tensil verspannt seien [Fra11]. Es sei hier noch angemerkt, dass die Qualitäts-Spannungs-Korrelation des AlN für jede hier vorgestellte Wachstumsserie im Rahmen der LT-AlN Keimschichtoptimierung beobachtet wird. Betrachtet man jedoch den Verlauf des Keimschichttemperatur abhängigen GaN Tilt mit dessen Gitterkonstanten, ist dieser Zusammenhang nicht mehr sichtbar. Vielmehr ist der Wert der GaN c-Gitterkonstante unabhängig vom GaN Tilt.

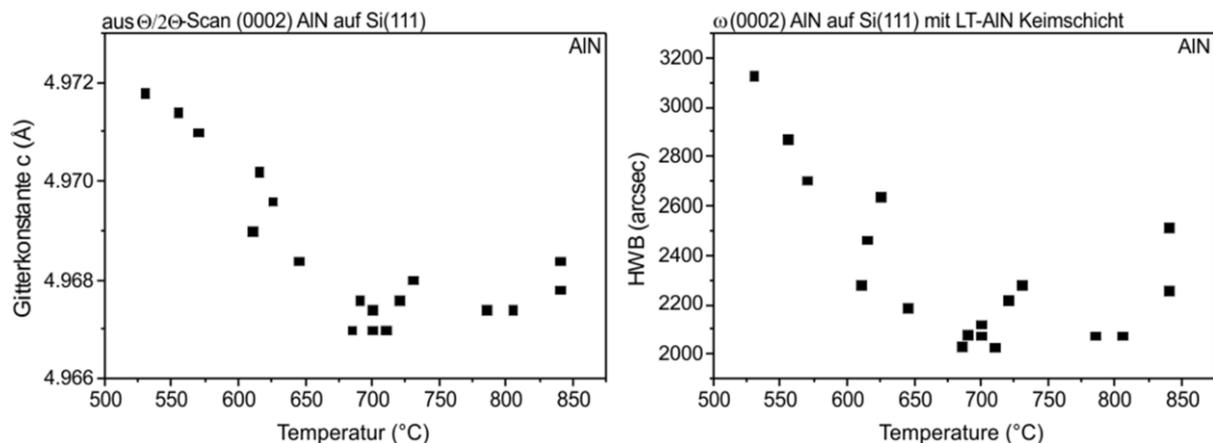


Abb. 3.12: c-Gitterkonstante (links) und Tilt (rechts) des HT-AlN, welches unmittelbar unter dem GaN gewachsen ist. Interessanterweise korreliert der Verlauf der Gitterkonstanten mit dem Verlauf des Tilts.

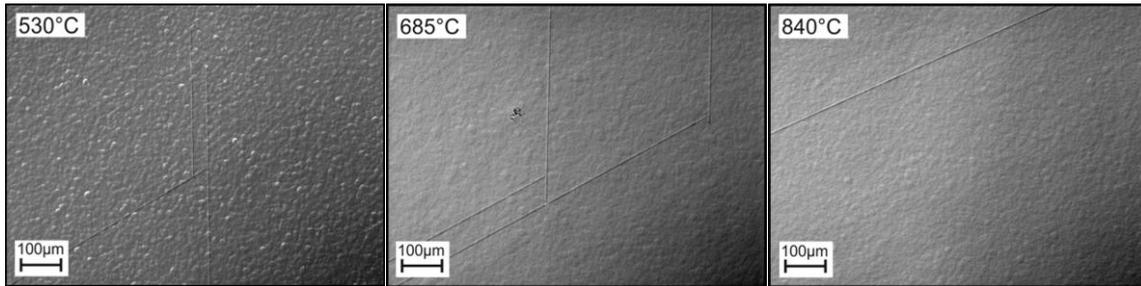


Abb. 3.13: Nomarski Aufnahmen der GaN Teststruktur bei optimaler Bekeimungstemperatur von 685°C (links) und der nicht optimalen Bekeimungstemperatur von 840°C (rechts). Die Probenoberfläche zeigt Risse vom Abkühlprozess

Obwohl aus den Röntgenmessungen eine deutliche Verbesserung der GaN Qualität von der optimalen Bekeimungstemperatur zu verzeichnen ist, konnte keine einzige der 700 nm GaN Teststruktur mit einer Temperatur variierten Tieftemperaturbekeimung rissfrei hergestellt werden. Die Nomarski-Aufnahmen in Abb. 3.13 zeigen die gerissenen GaN Oberflächen der Proben mit optimaler (links) und nicht optimaler Bekeimungstemperatur (rechts). Die mikroskopische Oberflächenanalyse zeigte, dass die Rissdichte mit höheren Keimschichttemperaturen stärker ausfällt. Je geringer die Keimschichttemperatur, desto weniger Risse zeigen die GaN Strukturen. Besonders die Proben mit Bekeimungen zwischen 530°C und 625°C zeigen nur vereinzelte Risse, während die Proben bei heißeren Bekeimungen deutlich mehr Risse insbesondere im Randbereich aufweisen. Aus diesem Grund wurde im Folgenden keine weitere Analyse der kritischen Rissdicke angestrengt.

Zuletzt werden die in-situ Reflektionsdaten als qualitätsbeurteilende Messung der GaN Teststrukturen hinzugezogen (Abb. 3.14). Abhängig von der Bekeimungstemperatur lassen sich unterschiedlich starke Amplituden des Reflektionssignals beobachten, die für unterschiedliche Oberflächenqualitäten stehen. Je ausgeprägter die Amplitude ist, desto glatter ist die Probenoberfläche. Während die Reflektionsmessungen nach den heißeren Bekeimungen bei 690°C und 730°C sehr schwach ausfallen und bei kälteren Bekeimungen (610°C und 625°C) ausgeprägter sind, zeigt sich die maximale Reflektionsamplitude bei 685°C. Die Bekeimung bei 685°C zeigt sich folglich auch im in-situ Reflektionssignal als optimale Bekeimungstemperatur. Auch hier sind alle GaN Schichten nach der Röntgenanalyse der c-Gitterkonstanten tensil

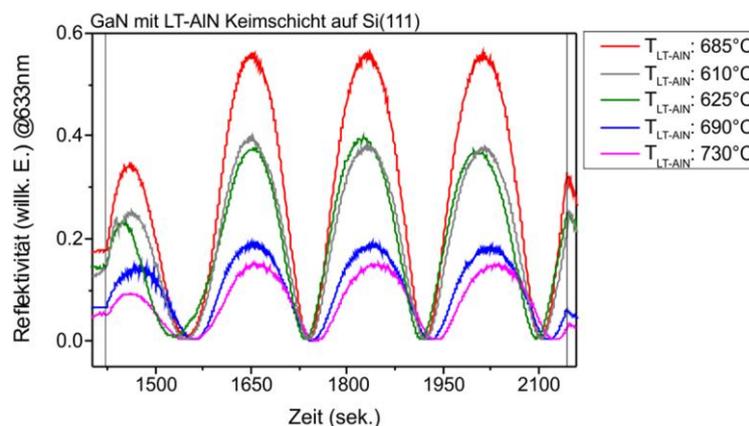


Abb. 3.14: In-situ Reflektionsmessung bei 633 nm während des GaN Wachstums. Die ausgeprägte Amplitude des GaN Signals in Abhängigkeit von der Keimschichttemperatur zeigt deutlich ein Temperaturoptimum bei 685°C.

verspannt.

Einfluss der Aluminium-Vorströmzeit

Wie auch schon bei den HT-AlN Keimschichten gezeigt, ist neben der Bekeimungstemperatur die Aluminiumbenetzung vor dem eigentlichen Keimschichtwachstum essentiell. Das Substrat wird zum Schutz vor Nitridation mit reinem Aluminium benetzt, wobei die Benetzungszeit einen drastischen Einfluss auf die darauffolgende Keimschicht und den nachfolgenden Schichtaufbau hat. Die Benetzungszeit des Aluminiums wird bei einem konstant gehaltenen TMAI-Fluss von $8.7 \mu\text{mol}/\text{min}$ (20 sccm) und der zuvor optimierten Keimschichttemperatur von 685°C variiert.

In Abb. 3.15 sind der Tilt (a) und der Twist (b) des GaN aus den ω -Scans der entsprechenden Reflexe in Abhängigkeit von der Al-Vorströmzeit dargestellt. In beiden Darstellungen ist deutlich zu erkennen, dass die Qualität des GaN nur schwach von der vorangehenden Aluminiumbenetzungszeit abhängt, sobald die Benetzungszeit 4 Sekunden übersteigt. Im Bereich 4 bis 16 Sekunden sind die Abscheideintervalle enger gewählt, weil sich dort das Optimum für die Aluminiumvorbehandlung befindet, siehe vergrößerter Bildausschnitt in den Abb. 3.15 (a) und (b). Dabei zeigt der Verlauf des GaN Tilts eine optimale Benetzungszeit bei 10 Sekunden für die beste Schichtqualität, was mit einer geringeren Anzahl an c-Typ Versetzungen einhergeht. Die Twistanalyse zeigt hingegen eine optimale Aluminium Vorströmzeit bei 6 Sekunden, bei denen die GaN Schicht einen verringerten Anteil an a-Typ Versetzungen besitzt.

Um aus den nicht eindeutigen Aussagen der Tilt- und Twistmessungen eine optimale Al-Abscheidezeit für die weiteren Experimente ableiten zu können, wird die Oberflächenmikroskopie mit dem Nomarski-Mikroskop herangezogen, siehe Abb. 3.16 Während bei der Temperaturvariation der Keimschicht keine Struktur rissfrei, aber mit gleichbleibend glatter Oberfläche hergestellt werden konnte, zeigte sich eine deutlich stärkere Abhängigkeit der Rissdichte und der Oberflächenmorphologie von der Aluminium Vorbehandlung.

Bei zu geringen Al-Benetzungszeiten bis zu 2 Sekunden führt das weitere Wachstum zu einer rauen Oberfläche, da die Substratbenetzung mit nur 2 sek. reinem Aluminium (bzw. TMAI)

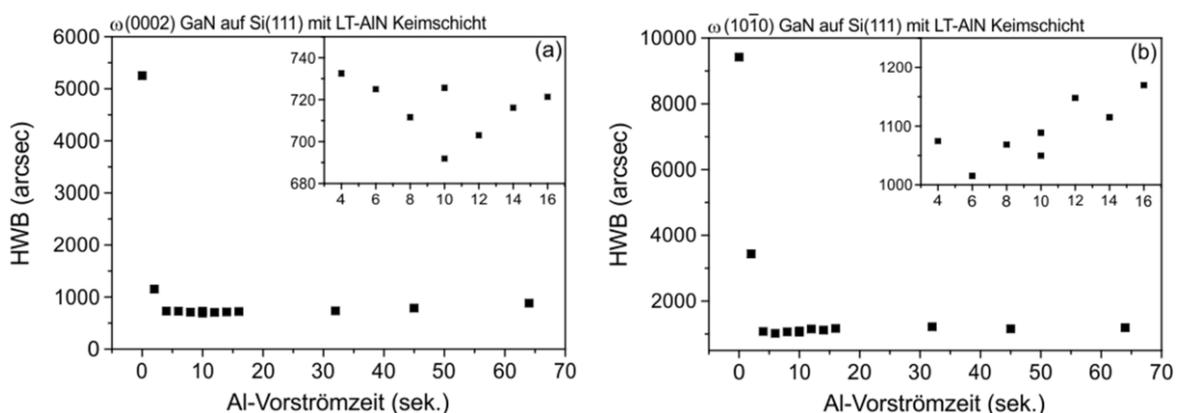


Abb. 3.15: Tilt und Twist der GaN Teststruktur in Abhängigkeit der Aluminium Vorströmzeit zur Optimierung der LT-AlN Bekeimung. In beiden Graphen wurde der Bereich zwischen 4 bis 16 Sekunden vergrößert als Bildausschnitt dargestellt.

nicht ausreicht, um die Nitridation der Substratoberfläche zu verhindern. Die Röntgenanalyse dieser Proben zeigt eine immens schlechte GaN Qualität mit sehr hohen Twist und Tilt Werten (Abb. 3.15). Zusätzlich zeigt die Probe mit 2 Sek. Al-Benetzung zahlreiche Risse (Abb. 3.16 links).

Ab 4 Sekunden Aluminium Vorströmzeit ist die Benetzung ausreichend, um die Substratoberfläche vollständig mit Aluminium zu bedecken und die qualitätsmindernde Nitridierung zu verhindern. Für die Benetzungszeiten zwischen 8 und 12 Sekunden ist die Probenoberfläche spiegelglatt und rissarm. In diesem Bereich ist die beste Oberflächenqualität mit geringster Rissdichte bei 10 Sekunden zu beobachten.

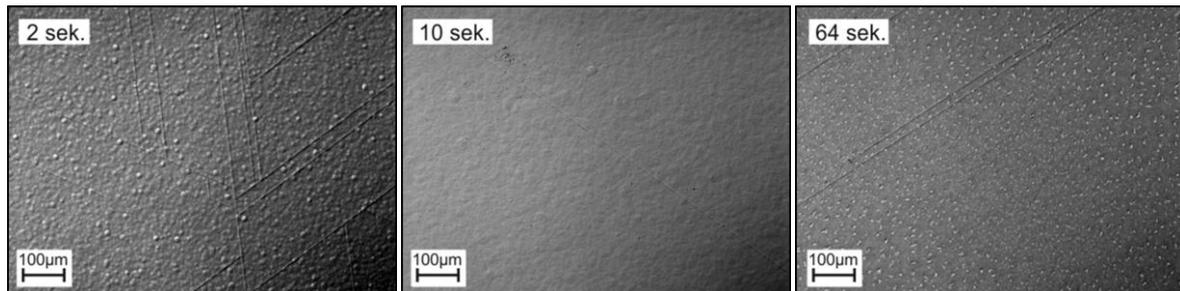


Abb. 3.16: Nomarski-Mikroskopie der GaN Oberfläche in Abhängigkeit der Al Substratbenetzungszeit vor dem Keimschichtwachstum.

Wie im vorherigen Abschnitt schon erwähnt, zeigen die AlN Schichten der Proben mit Tieftemperatur-Keimschicht einen zusammenhängenden Verlauf zwischen der ω -Halbwertsbreite und der c -Gitterkonstanten des AlN zeigen. Diese Korrelation zwischen AlN Kristallitverteilung und Gitterverzerrung liegt auch in Abhängigkeit von der Al-Benetzungszeit vor, siehe Abb. 3.17. Wird die Kristallitverteilung als Maß für die c -Typ Versetzungen (Schraubenversetzungen) betrachtet, so reduziert sich die Defektdichte von der AlN Schicht (2033 arcsec @10 sek.) zur GaN Schicht (692 arcsec @10 sek.) um den Faktor 2.9, d.h. mehr als 1/3 der Schraubenversetzungen wird an der AlN/GaN Grenzfläche geblockt. Es erfolgt bei dem Materialwechsel folglich eine sprunghafte Reduktion der Defektdichte, welche keinen Einfluss auf die Kristallitverteilung in der abschließenden GaN Schicht hat.

Die direkte Korrelation zwischen AlN Kristallitverteilung und der Gitterkonstanten und die plötzliche Brechung dieser Korrelation im darauffolgenden GaN lässt die Vermutung zu, dass an der Grenzfläche vom GaN/AlN weitere Anpassungsversetzungen infolge von nicht vollständig pseudomorphem GaN Wachstum gebildet werden. Diese weiteren Anpassungsversetzungen beeinflussen das Spannungsverhalten in der GaN Schicht derart, dass die im AlN beobachtete Korrelation zwischen Tilt und Verzerrung im GaN verlorenght.

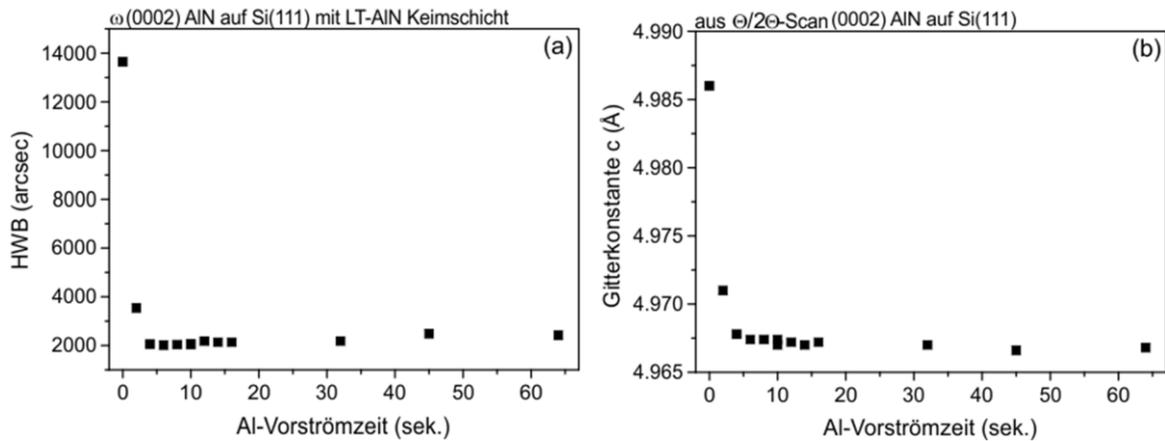


Abb. 3.17: Einfluss der Al-Vorströmzeit (a) auf die ω -Halbwertsbreite der etwa 120nm dicken HT-AlN Schicht und (b) auf die Gitterkonstante c dieses AlN. Der Benetzungsgrad abhängige Verlauf zeigt eine deutliche Korrelation zwischen der AlN Kristallitverteilung und der AlN Gitterverzerrung, die auch schon im Keimschichttemperatur-Verlauf in Abb. 3.12 beobachtet wurde. Mit geringerer Verteilung der Kristallitverkipfung nimmt die Verzerrung (Stauchung) der AlN Einheitszelle zu.

Zwischenbilanz: Vergleich HT- und LT-Keimschicht

Zieht man nach den gewonnenen Untersuchungen eine Bilanz, welche der beiden Zwischenschichten, HT-AlN oder LT-AlN, nun die bessere für eine ideale GaN Pufferstruktur darstellt, scheint schließlich doch die LT-AlN Keimschicht diejenige zu sein, die mehr strukturelle und morphologische Vorteile besitzt.

Bei den HT-AlN Bekeimungen führten höhere Prozesstemperaturen zwar zu einer rissfreien GaN Schicht, allerdings nahm die Körnigkeit und somit die Defektdichte des GaN erheblich zu. Die LT-AlN Keimschichten dagegen erzielten eine grobere Körnigkeit der GaN Kristallite mit vor allem weniger a-Typ Versetzungen. Tabelle 3.1 stellt die Kernparameter der beiden optimierten Keimschichtserien gegenüber.

Tabelle 3.1: Vergleich der GaN Qualitäten auf den optimierten Keimschichten der HT- und der LT-Wachstumsserie.

	HT-AlN Keimschicht	LT-AlN Keimschicht
Temp., Al-Vorstrom	1030°C, 6 sek.	685°C, 10 sek.
Tilt	660 arcsec	692 arcsec
Twist	1324 arcsec	1050 arcsec
Körnigkeit	sehr feinkörnig	grobkörnig
Spannung	0.97 GPa	0.71 GPa
Oberfläche	glatt, rissfrei	glatt, sehr wenige Risse

Werden zudem die Ergebnisse der Keimschichttemperaturen beider Serien zusammengeführt, ergibt sich ein interessanter Verlauf mit einem ausgezeichneten Temperaturminimum für die optimale GaN Qualität, siehe Abb. 3.18. Sowohl die Tilt- als auch die Twistmessung identifizieren einen Temperaturbereich um 800°C als den für die Keimschicht optimale Temperatur, was zunächst erst nach der vollständigen Analyse und der Gegenüberstellung der Keimschicht-

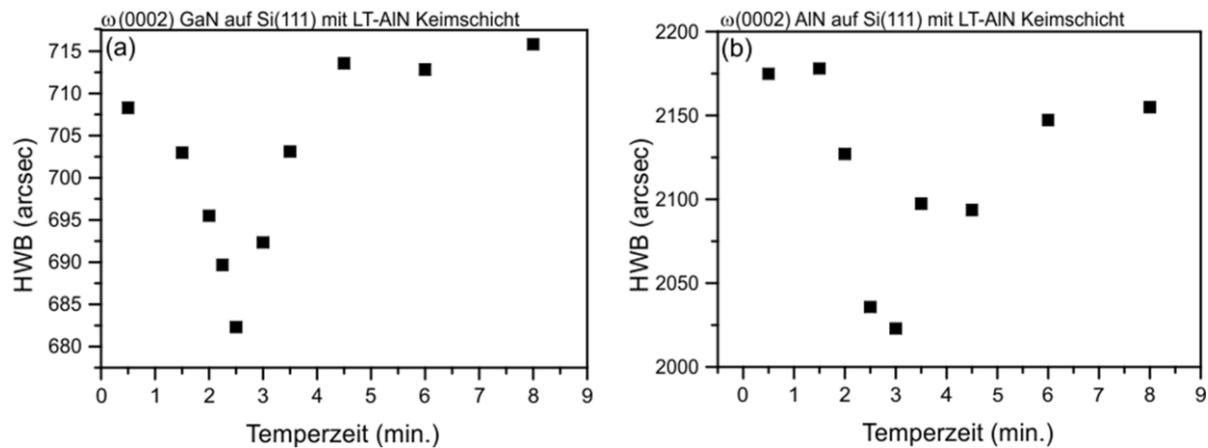


Abb. 3.19: Einfluss der Ausheizzeit der Keimschicht auf die Kristallqualität des GaN (a) und des darunterliegenden HT-AlN (b).

ten deutlich wurde. Zudem ist aus der Literatur bekannt, dass der mittlere Temperaturbereich für das Keimschichtwachstum gerade zu keiner guten GaN Qualität führe [Hag01, Dad11a]. Eine mögliche Erklärung sei der Übergang der Oberflächenrekonstruktion des Si, was allerdings bis heute nicht abschließend geklärt ist. Des Weiteren ist nicht vorherzusehen, ob eine Optimierung der Keimschichten im Mitteltemperaturbereich zu besseren GaN Qualitäten führt, als die bisher durchgeführten Verbesserungen der HT- und LT-Keimschichten. Deshalb wird aufbauend auf diesen gewonnenen Resultaten für die weiteren Optimierungsschritte die LT-Keimschichten mit den optimierten Parametern verwendet.

3.2.3. Weitere Optimierung am HT-AlN

Nachdem die Keimschichten bezüglich Wachstumstemperatur und Al-Vorbenetzung optimiert wurden, wird nun der Fokus auf die stabilisierende HT-AlN Schicht gelegt. Im Folgenden wird der Einfluss dieser Schicht auf das GaN beleuchtet.

Variation der Temperzeit der Keimschicht

Bevor das stabilisierende HT-AlN abgeschieden wird, wird die darunterliegenden Keimschicht für wenige Minuten bei 1040°C ausgeheizt. Inwieweit dieses Ausheizen einen „ausheilenden“ Effekt auf die Kristallinität des AlN und folglich auch des GaN hat, zeigen die ω -Halbwertsbreiten in den Abb. 3.19 (a) und (b). Zwischen 30 Sekunden und 8 Minuten wurde die Ausheizzeit der Keimschicht variiert, wobei in den vorherigen Versuchen für 110 Sekunden getempert wurde. Eine optimale Temperzeit konnte für 2,5 min (150 sek.) für ein deutliches Qualitätsmaximum festgestellt werden, bei der die ω -Halbwertsbreite des ca. 700 nm dicken GaN auf 683 arcsec reduziert wurde. Der Verlauf der Halbwertsbreiten der darunterliegenden AlN Schicht bestätigt das Qualitätsoptimum für eine bestimmte Ausheizzeit, die für die beste AlN Kristallinität bei 3 Minuten liegt. Wird die ω -Halbwertsbreite des symmetrischen (0002) Reflexes als Maß für die Zahl der Schraubenversetzungen betrachtet, kann die Dichte der Schraubenversetzungen durch das zeitoptimierte Tempern sowohl im AlN als auch im GaN kontrolliert werden.

In den ω -Halbwertsbreiten, die den Twist widerspiegeln, lässt sich diese Abhängigkeit der GaN Qualität von der Temperzeit nicht feststellen. Abb. 3.20. Folglich hat das Tempern

ausschließlich Auswirkungen auf die Verkipfung und somit auf die Defekte mit c-Komponente. Die Versetzungen mit a-Komponente bleiben von der Temperzeitoptimierung unbeeindruckt.

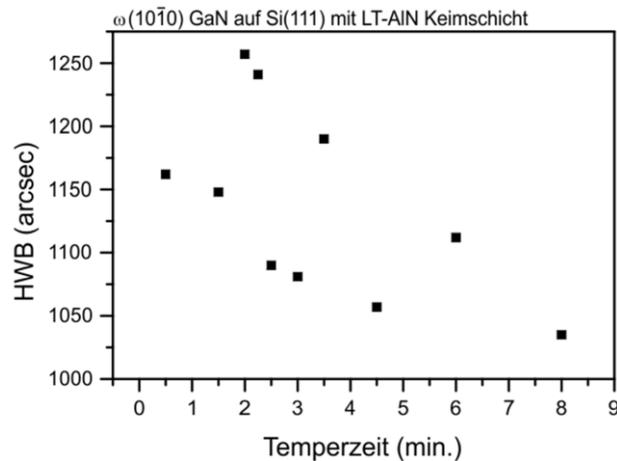


Abb. 3.20: Abhängigkeit der GaN ω -Halbwertsbreite vom $(10\bar{1}0)$ Reflex von der Temperdauer der LT-AlN Keimschicht

HT-AlN Dickenvariation

Die HT-AlN Schicht wird nun in der Dicke variiert. Diese Schicht ist unmittelbar auf der Keimschicht gewachsen und besitzt eine strikte c-Achsenorientierung, welche sie aus der Selektion der vereinzelt c-GaN Kristallite der darunterliegenden Keimschicht angenommen hat. Ein Optimum in dieser HT-AlN Schichtdicke ist auch hier zu verzeichnen. Mit wachsender HT-AlN Dicke verbessern sich die ω -Halbwertsbreiten des GaN für beide untersuchten Reflexe, siehe Abb. 3.21. Der Einfluss des HT-AlN wurde hier nur bis zu einer Dicke von 200 nm untersucht. Der Verlauf der Halbwertsbreiten deutet aber an, dass noch größere Schichtdicken die GaN Qualität weiter verbessern. Die Ursache dafür liegt in der Annihilation der abknickenden Liniendefekte mit wachsender AlN Schichtdicke. Ein Teil der im AlN übermäßig vorhandenen Defekte löschen sich mit wachsender Schichtdicke aus, da das Abknicken der Defekte spannungsgetrieben ist und die HT-AlN tensil verspannt sind (Abb. 3.22 a). Eine stark tensil verspannte AlN Schicht fördert folglich mit wachsender Schichtdicke eine

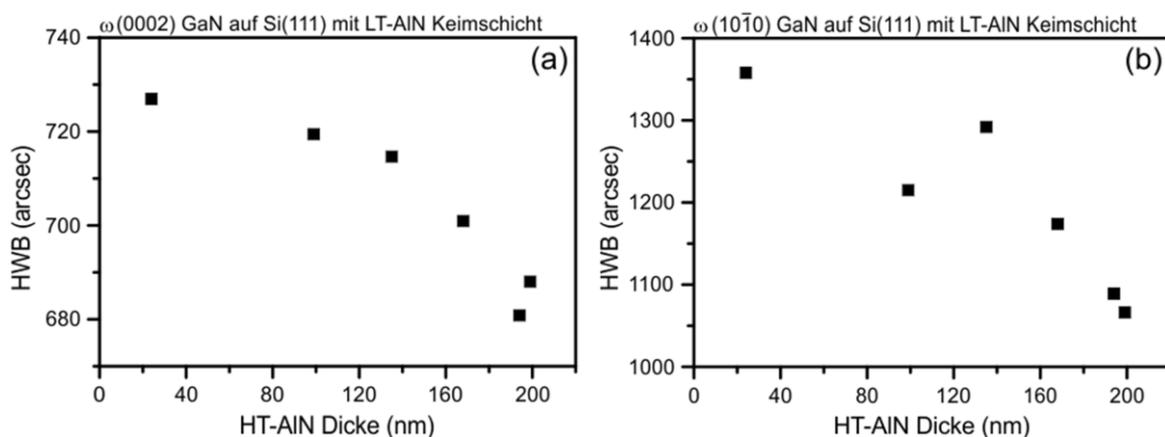


Abb. 3.21: Einfluss der HTAlN Schichtdicke auf die GaN ω -Halbwertsbreiten des symmetrischen und des Reflexes im streifenden Einfall.

stärkere Defektauslöschung als eine unverspannte. Der Materialwechsel vom AlN zum GaN reduziert zusätzlich einen erheblichen Teil (>30%) der Versetzungen. Aus diesem Grund ist eine stetige Verbesserung der GaN Kristallinität mit steigender HT-AlN Dicke zu beobachten.

Eine deutliche Reduktion der c-Typ Versetzungen in Abhängigkeit von der zunehmenden HT-AlN Schichtdicke, zeigt Abb. 3.22 (a). Das bedeutet, dass mit zunehmender HT-AlN Schichtdicke die Defekte annihilieren. Damit einhergehend steigt auch die tensile Spannung innerhalb der HT-AlN Schicht, wenn die Schichtdicke zunimmt (Abb. 3.22 b). Dies ist ein Beleg für die Aktivität der Defekte mit steigender Spannung. Die Defekte bewegen/wandern nicht nur, sondern löschen sich gegenseitig aus, wodurch die tensile Spannung in der Schicht zunimmt. Dadurch wird zunächst die Kristallinität des HT-AlN verbessert, Abb. 3.22 (a), welche sich dann auf das darauffolgende GaN auswirkt, vgl. Abb. 3.21 (a).

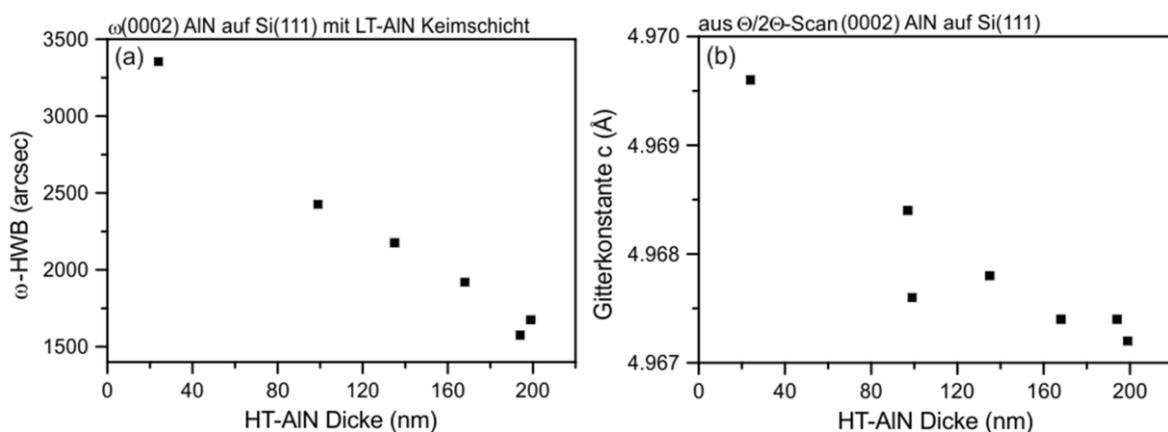


Abb. 3.22: Entwicklung der AlN (0002) ω -Halbwertsbreite (a) und c-Gitterkonstante (b) mit wachsender AlN Schichtdicke.

Ein großer Einfluss auf die GaN Qualität durch die Variation der HT-AlN Schichtdicke wurde bereits von anderen Arbeitsgruppen prognostiziert. Kim et al. verwendeten eine 120 nm dicke HT-AlN Schicht, mit denen sie nahezu rissfreie 2.5 μm dicke GaN Schichten realisieren konnten [Kim10a]. Der Ansatz einer dicken HT-AlN Schicht wurde nun auch von weiteren Arbeitsgruppen aufgegriffen, um vor allem auf großen Si-Substratdurchmessern dickes und rissfreies GaN zu wachsen. Insbesondere bewirkt das dickere HT-AlN eine Reduzierung der notwendigen Zwischenschichten, die zur Spannungskompensation in dicken GaN Strukturen eingesetzt werden und reduziert zusätzlich die Wahrscheinlichkeit des Meltback Etchings. [Tri12].

3.3. Ternäre Keimschichten

Hochtemperatur AlGaIn Keimschichten

Aufgrund der Ätzreaktion „Meltback-Etching“ zwischen Ga und Si, sind keine Ga-haltigen Keimschichten auf Si empfehlenswert. Allerdings findet diese Reaktion erst ab einer bestimmten Menge an Ga im Prozentbereich statt. Zudem verringert die Ga Zugabe in die AlN Keimschicht den Kontaktwiderstand und führt aufgrund der besseren Ga-Mobilität zu glatteren Keimschichten. Was genau bei einer Ga-haltigen Keimschicht passiert, die unter Hochtemperaturbedingungen abgeschieden wurde, wird anhand der folgenden Resultate gezeigt. Der

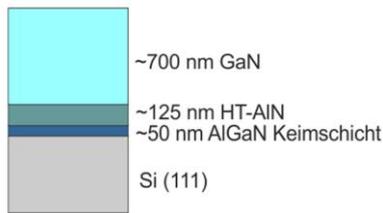


Abb. 3.23: Aufbau der GaN Teststruktur mit AlGaN Keimschicht.

Keimschicht wurde bei etwa 1030°C abgeschieden, wobei die Zugabe des Ga-Eduktes in Form von Triethylgallium (TEGa) zwischen 0 und 93.6 $\mu\text{mol}/\text{min}$ (0-160 sccm) variiert wurde.

Wie die ω -Halbwertsbreiten in Abb. 3.24 zeigen, hat die Galliumzugabe keinen qualitätsverbessernden Einfluss auf die GaN Schichtqualität. Sowohl der Tilt (Abb. 3.24 (a)) als auch der Twist (Abb. 3.24 (b)) nehmen mit zunehmendem Ga-Fluss zu. Folglich nimmt durch die Ga Keimschichtbeimengung sowohl die Zahl der c-typ Defekte als auch der a-Typ Defekte zu.

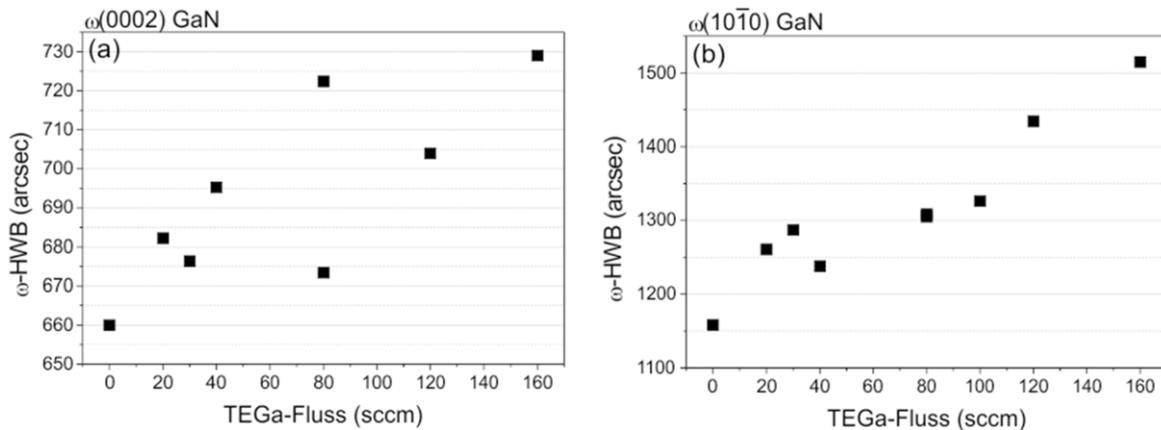


Abb. 3.24: Einfluss der Ga-Zugabe in die HT-AlGaN Keimschicht die ω -Halbwertsbreiten des symmetrischen (0002) (a) und des in der Oberflächenebene liegenden (10 $\bar{1}$ 0) GaN Reflexes (b).

Bei Betrachtung der GaN Schichtspannung in Abhängigkeit vom zugeschalteten TEGa-Fluss zeigt sich zunächst eine starke Schwankung bis 100 sccm ohne einen klaren Spannungseinfluss durch die Ga-Beimengung (Abb. 3.25). Erst darüber hinaus bei TEGa-Flüssen von 120 und 160 sccm ist eine deutliche Spannungszunahme durch die AlGaN Keimschicht zu verzeichnen.

Ausnahmslos alle HT-AlGaN Keimschichten führen zu Meltback Etching. Die Proben weisen im heißen Waferzentrum die für Meltback Etching charakteristischen Ätzspuren (Sprenkel) auf. Die FE-REM Aufnahmen in Abb. 3.26 verdeutlichen das Aussehen des Meltback Etching. Neben den aufgerauten Ätzflächen tauchen zusätzlich auch Risse um das Meltback Etching auf. Das Meltback Etching wird stärker mit steigendem Ga-Fluss. Bei einer Zugabe von 160 sccm TEGa war die gesamte Wafermitte der Probe stark vom Meltback Etching aufgeraut.

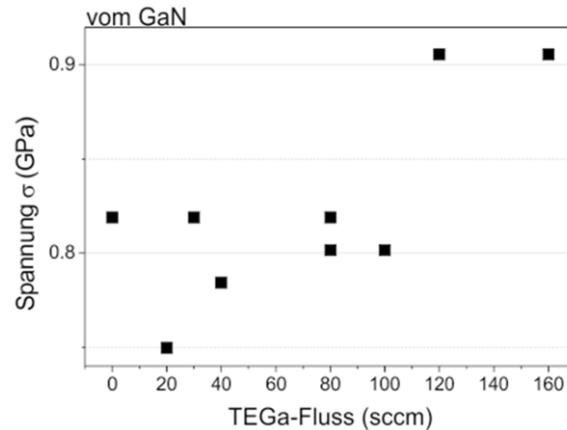


Abb. 3.25: Spannung der GaN Deckschicht in Abhängigkeit von der TEGa-Zugabe in die HT-AlGaN Keimschicht.

Eine besondere Darstellung, um den Einfluss des Meltback Etching auf den GaN Kristall zu verdeutlichen, ist ein röntgenographisches Topografieraster. Im streifenden Einfall wird die Waferoberfläche bei fest eingestelltem Detektorwinkel auf den $(10\bar{1}0)$ GaN Reflex abgerastert. Damit wird ein Abbild der Oberflächenbeschaffenheit geschaffen, welches aus Kristallverdrehung, Verspannung und Waferkrümmung besteht. Jede Farbänderung ist eine Abweichung von den voreingestellten, festen Bedingungen des gewählten GaN Reflexes und hat seine Ursache in mindestens einem der drei genannten Einflüsse.

Die Topografiemessungen in Abb. 3.27 zeigen für jede AlGaN Keimschicht mit verschiedener Ga-Konzentration den zentralen Bereich, in dem die Sprengel vom Meltback Etching konzentriert sind. Erstaunlicherweise nimmt die Topografie eine flächige Änderung in dem Bereich an, der mit Ätzspuren besetzt ist. Der Randbereich ist frei von Ätzspuren und besitzt eine andere Qualität als die Mitte. Zusätzliche ω -Messungen am selben GaN Reflex ergaben, dass die Randbereiche eine um etwa 100 arcsec höhere Halbwertsbreite als das Zentrum besitzen. Nach diesen Beobachtungen breitet sich das Meltback Etching mit zunehmendem Ga-Gehalt vom Waferzentrum zum Rand aus und beeinflusst gleichzeitig den betroffenen Bereich vollflächig bezüglich des Twists. Außerhalb dieses Bereichs besitzt das GaN eine schlechtere Qualität mit höherer Versetzungsdichte mit a-Typ Komponente.

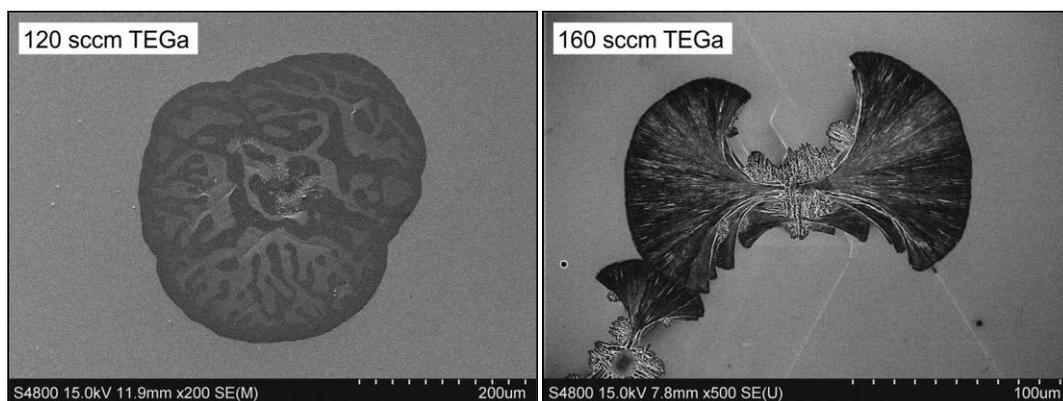


Abb. 3.26: FE-REM Aufnahmen der GaN Oberfläche, die auf einer HT-AlGaN Schicht mit verschiedenen Ga-Gehalt gewachsen wurden.

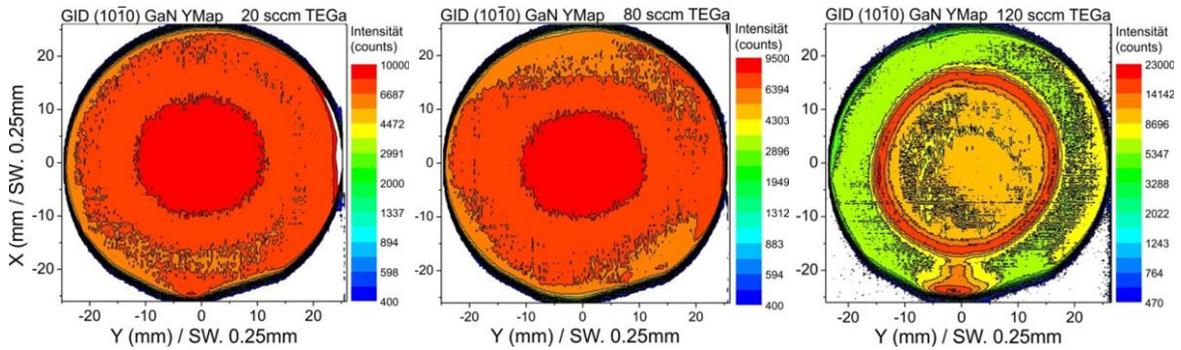


Abb. 3.27: Röntgentopografiemessungen im streifenden Einfall in Abhängigkeit vom Ga-Gehalt in der HT-AlGaIn Keimschicht. Die Farbkodierung zeigt jede Abweichung von dem fest eingestellten Beugungsreflex ($10\bar{1}0$). Eine Farbänderung in der gezeigten Topografiemessung geht einher mit einer Spannungs- oder einer Twiständerung. Alle Farbänderungen sind relativ zum Waferzentrum zu betrachten, auf welches der Strahl justiert wurde.

Schließlich sind Hochtemperatur AlGaIn Keimschichten keine geeignete Option, um die GaN Struktur defektarm, glatt und rissfrei herzustellen.

Tieftemperatur AlGaIn Keimschichten

Aufgrund der Ätzreaktion „Meltback-Etching“ zwischen Ga und Si bei Temperaturen ab etwa 700°C werden nun Ga-haltige Keimschichten präsentiert, die unter Niedertemperaturbedingungen abgeschieden wurden. Der Probenaufbau ist derselbe, wie in Abb. 3.23 dargestellt. Die 10 sekundige Al-Vorbenetzung wurde zusammen mit der darauffolgenden AlGaIn Keimschicht bei etwa 675°C abgeschieden. Die Zugabe des Triethylgallium (TEGa) wurde zwischen 0 und $19.8 \mu\text{mol}/\text{min}$ (0 – 80 sccm) variiert.

Beim Betrachten der ω -Halbwertsbreiten in Abb. 3.28 ist eine deutliche Verschlechterung der GaN Qualität mit steigendem Ga-Gehalt in der Keimschicht zu erkennen. Außerdem zeigen die Halbwertsbreiten beider Reflexe (0002) und ($10\bar{1}0$) den gleichen Verlauf, was darauf hindeutet, dass der entsprechende Ga Gehalt der AlGaIn Keimschicht gleichermaßen die Bildung der Stufen- als auch die Schraubenversetzungen beeinflusst.

Unmittelbar nach der AlGaIn Keimschicht folgt eine reine HT-AlN Schicht. Auch in dieser

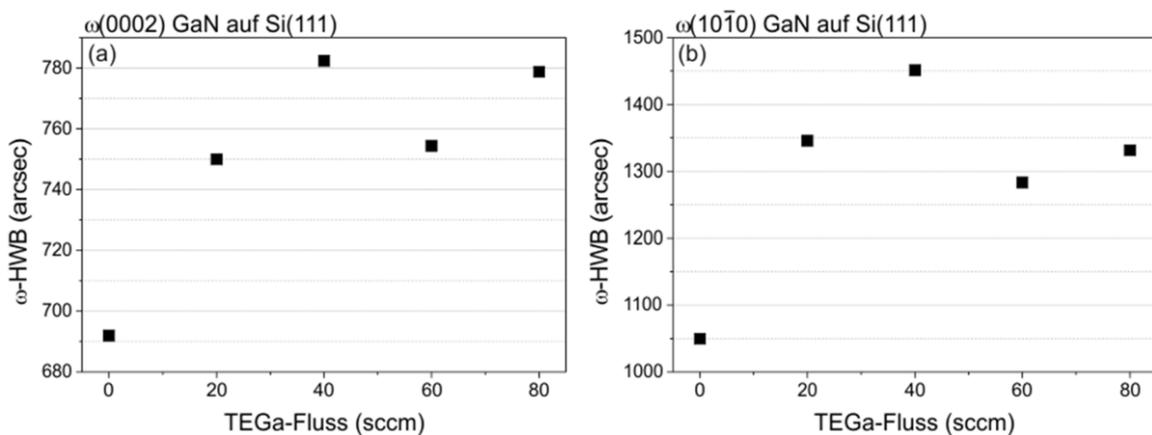


Abb. 3.28: Einfluss der Ga-Zugabe in die AlGaIn Keimschicht die ω -Halbwertsbreiten des symmetrischen (0002) (a) und des in der Oberflächenebene liegenden ($10\bar{1}0$) GaN Reflexes (b).

Schicht hängt die Bildung der Schraubenversetzungen vom Ga-Gehalt in der Keimschicht ab, siehe Abb. 3.29. Beim Übergang vom AlN zur GaN Schicht werden auch hier wieder 30 Prozent der Schraubenversetzungen reduziert, wie der Vergleich der symmetrischen ω -Halbwertsbreiten aus Abb. 3.28 (a) und Abb. 3.29 (a) beweist.

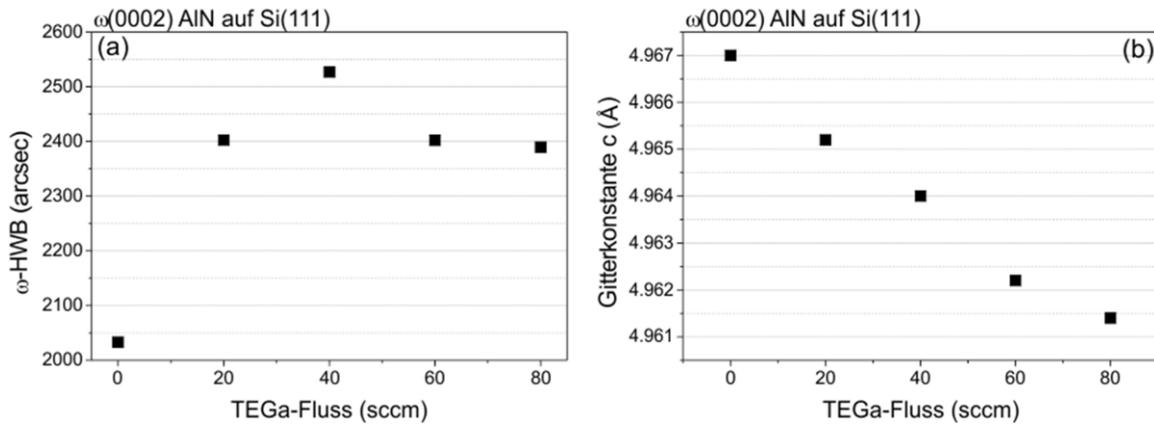


Abb. 3.29: Einfluss der Ga-Zugabe in die LT-AlGaN Keimschicht auf die ω -Halbwertsbreiten des symmetrischen (0002) AlN Reflexes (a) und der c-Gitterkonstante des HT-AlN (b).

In welchem Verspannungszustand die HT-AlN Schicht auf die AlGaN Keimschicht aufwächst, ist bislang nicht bekannt. Abb. 3.29 (b) zeigt den Verlauf der AlN Gitterkonstanten mit sich verändernder AlGaN Komposition. Mit steigendem Ga-Gehalt in der Keimschicht verringert sich die Länge der AlN c-Achse. Daraus ist abzuleiten, dass die zugverspannte AlN Schicht entweder teilverspannt oder pseudomorph auf die Keimschicht aufwächst und sich das Gitter des AlN infolge des größer werdenden Basalgitters biaxial verzerrt.

Die AlGaN Keimschicht hat des Weiteren keinen signifikanten Einfluss auf die Oberflächemorphologie des GaN. Die Proben sind allesamt glatt und weisen nur einzelne Risse auf, sie-

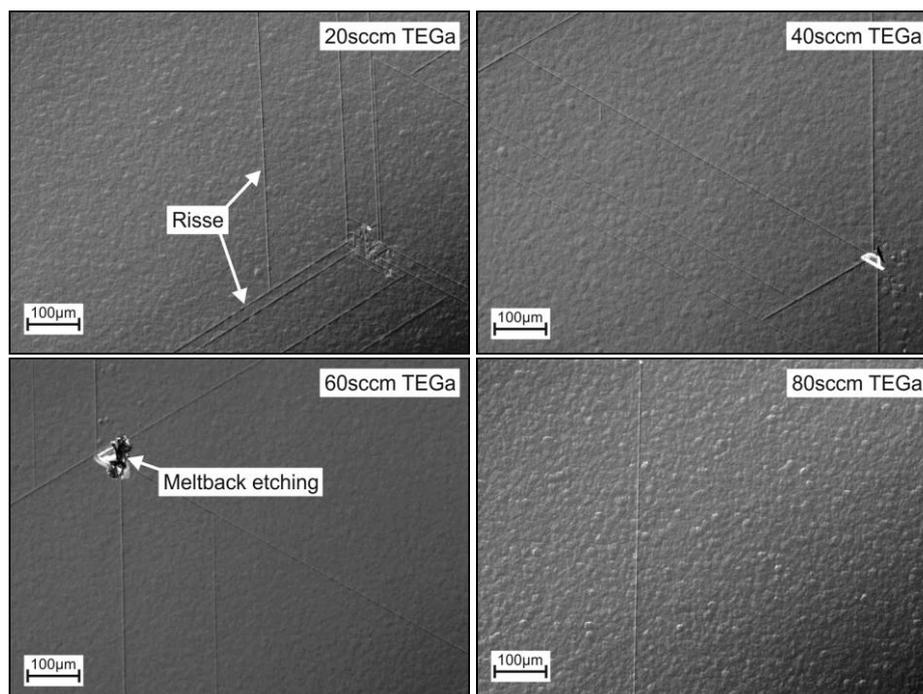


Abb. 3.30: Nomarski-Mikroskopieaufnahmen der GaN Oberfläche auf AlGaN Keimschichten mit unterschiedlichen Ga-Konzentrationen in der Keimschicht.

he Abb. 3.30. Meltback Etching ist sehr wenig vorhanden und nur an den Rissstellen zu beobachten. Die Strukturen mit LT-AlN Keimschichten aus Abschnitt 3.2.2 weisen gleiche Oberflächenmorphologien mit vergleichbaren Rissdichten und Meltback Etching Spuren auf. Die Zugabe von Ga in die Tieftemperaturkeimschicht ruft folglich keine zusätzliche und übermäßige Ätzreaktion des Ga mit dem Substrat hervor. Weiterhin schädigt eine AlGaN Keimschicht nicht die Oberflächenqualität des GaN, sondern liefert ähnliche Oberflächenmorphologien wie mit LT-AlN Keimschichten.

Einfluss der Metallkomposition während der Substratvorbenetzung:

Nach dem erfolgreichen Wachstum von AlGaN Keimschichten ohne die Strukturzerstörung durch eine ausgedehnte Meltback Etching Reaktion wurde nun die Komposition der metallischen Vorbehandlung des Substrates verändert. Anstelle der bisherigen, reinen Al-Benetzung wurde nun auch Ga mit $19.79 \mu\text{mol}/\text{min}$ (TEGa) mit in den Vorstrom eingelassen. Auch hier war die Abscheidetemperatur mit 675°C unterhalb der kritischen Temperatur, bei der das Meltback Etching einsetzen sollte ($\sim 700^\circ\text{C}$). Interessant ist nun, welchen Einfluss die Ga-Al Mischung auf die Gesamtstruktur im Vergleich zur identischen Struktur mit reiner Al-Benetzung hat. Die Fotografien in Abb. 3.31 belegen, dass beide Proben glatt und glänzend sind, wobei die Probe mit dem AlGa Vorbehandlung eine Vielzahl von Meltback Etching Spuren aufweist.

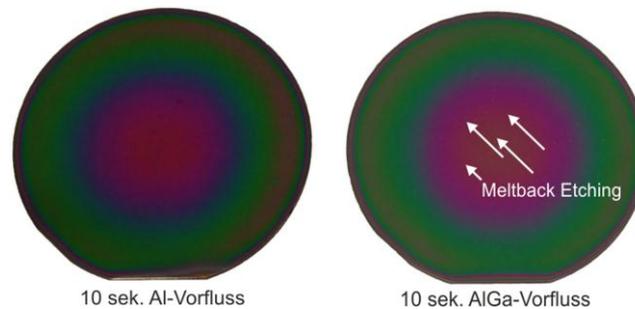


Abb. 3.31: Fotografischer Vergleich der GaN Teststruktur mit AlGaN Keimschicht mit 10 Sekunden Al-Vorfluss (links) und 10 Sekunden Al-Ga-Vorfluss (rechts) auf 2“ Si-Substrat.

Ein hochauflöserer Blick auf die GaN Oberflächen zeigt allerdings sehr deutlich, welchen negativen Einfluss die Ga-Zugabe in der Vorflussbehandlung hat. Die Oberfläche ist vollständig und vielfältig gerissen. An den Risskreuzungen bilden sich Meltback Etching Spuren. Vereinzelt finden sich große geätzte Areale, siehe Abb. 3.32 rechts.

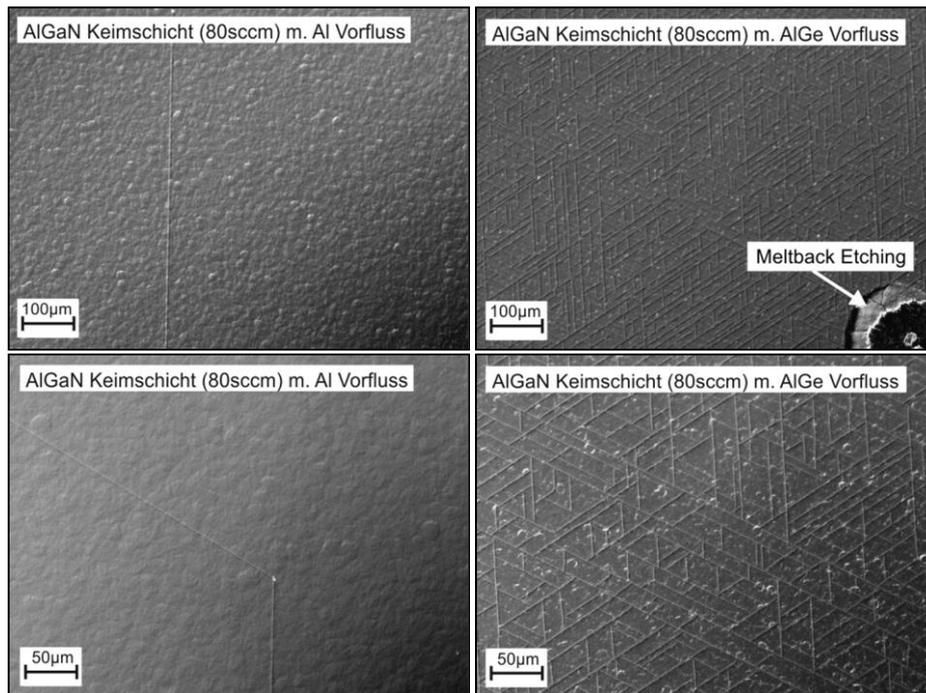


Abb. 3.32: Nomarski Mikroskopie von der GaN Teststrukturen mit AlGaIn Keimschichten und Al-Vorfluss (links) und AlGa-Vorfluss (rechts).

In der Röntgenstrukturanalyse wird noch deutlicher, wie stark die Ga-Zugabe in der metallischen Substratbenetzung die darauffolgende Kristallinität beeinträchtigt (Abb. 3.33). Im Vergleich zur reinen Aluminium Benetzung verursacht das GaAl-Gemisch eine drastische Verschlechterung der ω -Halbwertsbreiten um mehr als 56%. Das bedeutet, dass im Vergleich zur Struktur mit reiner Aluminium Vorbehandlung die Anzahl der Schrauben- und Stufenversetzungen um das Doppelte zunehmen. Diese Gegenüberstellung hebt hervor wie entscheidend der erste Schritt einer GaN auf Si Struktur ist. In diesem Fall verursachte die minimale Zugabe von nur 19.8 $\mu\text{mol}/\text{min}$ TEGa eine Qualitätsverschlechterung um 50% in der Kristallinität. Die Oberflächenaufnahmen belegen zusätzlich, dass auch die GaN Oberfläche und auch die gesamte Struktur durch die vielen Risse und Ätzungen infolge der initialen AlGa-Substratbenetzung zerstört ist. Nur eine geringe Abweichung von den

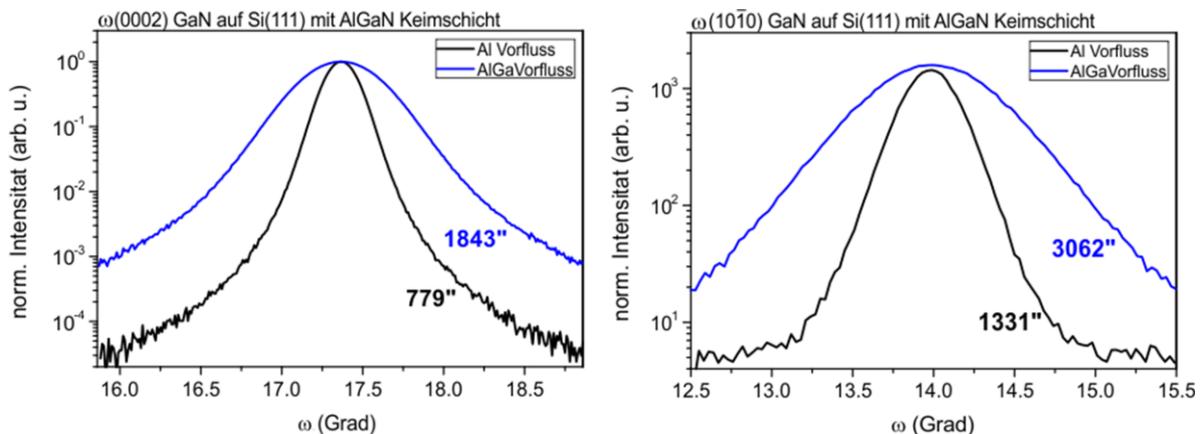


Abb. 3.33: Einfluss der veränderten initialen Metallbenetzung vor dem AlGaIn Keimschichtwachstum. Die schwarze Kurve zeigt die ω -Halbwertsbreite für die Struktur mit reiner Al-Benetzung. Die blaue Kurve zeigt die mit der gemischten Metallbenetzung aus Al und Ga (80sccm TEGa).

optimalen Wachstumsparametern kann die Qualität der Gesamtstruktur entscheiden.

Zuletzt werden noch die symmetrischen $\theta/2\theta$ -Messungen hinzugezogen, um die Ursache für die starke Verschlechterung der GaN Kristallinität zu ergründen (Abb. 3.34). Gemessen wurde über die Reflexe der gesamten Struktur, so dass sowohl die GaN, AlGaN und auch die AlN Anteile aufgenommen worden sind. Die Messung der Probe mit reiner Aluminium Substratbenetzung (schwarze Kurve) zeigt einen ausgeprägten scharfen GaN Reflex, welcher für die bessere Qualität verglichen zum breiteren GaN Reflex der Probe mit AlGa Benetzung (blaue Kurve) spricht. Zusätzlich ist in der schwarzen Kurve ein ausgeprägter AlN Reflex von der HT-AlN Schicht und ein schwächerer AlGaN Reflex der Keimschicht zu sehen. Die Reflexlage und -form des AlN deuten auf eine tensile Verspannung und eine gute Qualität der Schicht hin. Daraus lässt sich schlussfolgern, dass infolge der erfolgreichen 10 sekundigen Al-Benetzung eine gute AlGaN Keimschicht abgeschieden werden konnte, die ein verspanntes und hochwertiges Aufwachsen der folgenden HT-AlN und auch der GaN Schicht fördert. Die Mischbenetzung hingegen behinderte das Aufwachsen einer hochwertigen AlGaN Keimschicht, was am verbreiterten AlGaN Reflex in der blauen Kurve abzulesen ist. Die Beschaffenheit dieser Keimschicht unterschreitet vermutlich eine kritische Qualität, so dass das verspannte Aufwachsen der HT-AlN Schicht mit hinreichender Qualität nicht möglich ist und dieses stattdessen relaxiert. Aufgrund der misslungenen Bekeimung und der schwachen HT-AlN Qualität konnte folglich kein hochwertiges und defektarmes GaN erzielt werden.

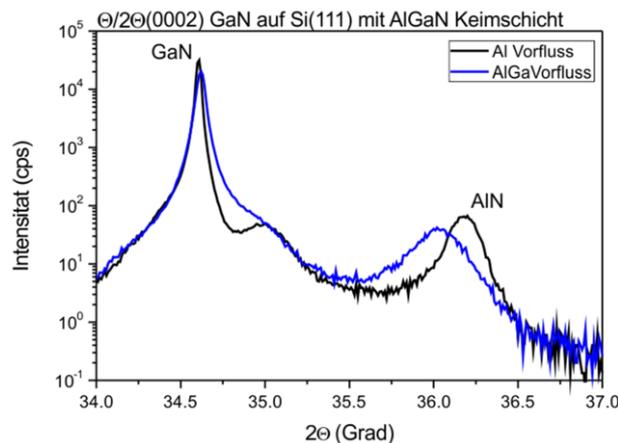


Abb. 3.34: Vergleich der $\theta/2\theta$ Messungen der beiden GaN Teststrukturen mit reinem Al Vorstrom (schwarze Kurve) und gemischtem AlGa Vorstrom (blaue Kurve).

AlInN Keimschicht

Nachdem nun der Einfluss der AlN und AlGaN Keimschichten auf die GaN Schichtqualität untersucht und bekannt ist, wird jetzt der Einfluss einer AlInN Keimschicht untersucht. Es gibt bisher nur wenige Untersuchungen zu In-haltigen Schichten am Wachstumsbeginn einer GaN Struktur. J. Wu et al. fügten nach der initialen dünnen AlN Bekeimung eine AlInGaN Schicht ein, um das darauffolgende GaN durch die feine Durchstimbarkeit des quaternären Gitters besser und kontrollierter kompressiv vorzuspannen und eine rissfreie Struktur nach dem Abkühlprozess zu garantieren [Wu05, Wu08].

Rahmatalla und Boota analysierten den Einfluss von AlInN Keimschichten auf GaN Schich-

ten auf Saphir Substraten unter Zuhilfenahme einer TiN Benetzungen vor dem Keimschichtabscheiden. Allerdings beobachteten sie stark fluktuierende Spannungen, eine schlechte Oberflächenmorphologie und eine hohe Störstellenkonzentration infolge der nach ihren Vermutungen zerfallenen AlInN Schicht [Rah08].

L. W. Wu und F. R. Chien patentierten ihre AlInN Keimschichten in GaN Strukturen auf Saphir, um mit der geeigneten Al-In Komposition die Defektdichte im gitterangepasst aufgewachsenen GaN erheblich zu reduzieren und die Lichtausbeute und Wellenlängen-uniformität der finalen LED Struktur zu verbessern [Wu07].

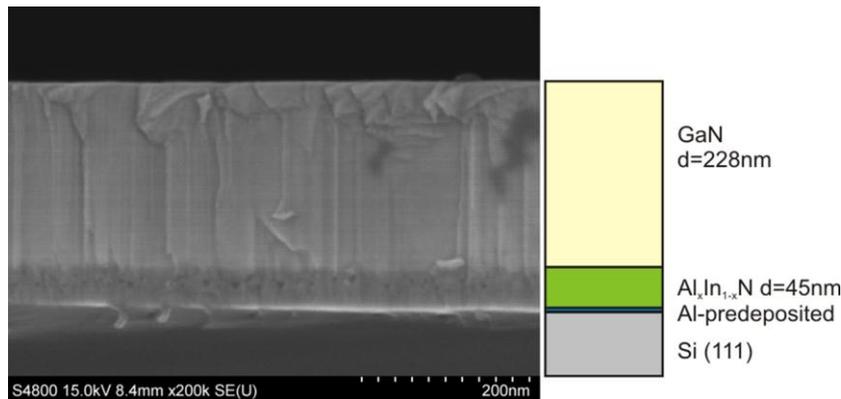


Abb. 3.35: FE-REM Bruchkantenaufnahme und schematischer Schichtaufbau der GaN Teststruktur mit AlInN Keimschicht.

Neben der besseren Gitterfehlanspassung mithilfe von AlInN Schichten auf Si Substraten soll zusätzlich die wesentlich bessere Oberflächenqualität vom AlInN dazu dienen die darauffolgenden Puffer- und GaN Schichten strukturell zu verbessern.

Der Aufbau der Teststrukturen ist der FE-REM Seitenkantenaufnahme und dem ergänzenden Schema in der Abb. 3.35 zu entnehmen. Die Keimschicht wurde bei 730°C abgeschieden.

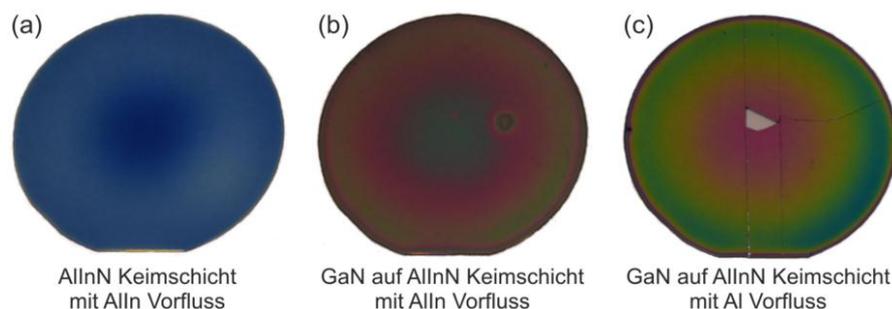


Abb. 3.36: Fotografien der Wafer mit AlInN Keimschicht. (a) AlInN Keimschicht mit AlIn Vorbehandlung, (b) GaN auf AlInN Keimschicht mit AlIn Vorbehandlung und (c) GaN auf AlInN Keimschicht mit reiner Al Vorbehandlung auf 2" Si-Substraten.

Es ist zu beachten, dass die hier präsentierten Resultate nicht optimierte Wachstumsexperimente sind, die auf der Rezeptgrundlage der zuvor optimierten Strukturen hergestellt wurden. Dennoch ist es bemerkenswert, dass von den insgesamt 3 hergestellten Proben eine Probe ein vorzeigbares Resultat mit glatter Oberfläche darstellt. In Abb. 3.36 sind die Fotografien der 3 Wachstumsversuche mit AlInN Keimschicht zu sehen. Begonnen mit der bloßen Keimschicht mit AlIn Vorströmung (a) über das Überwachen dieser Keimschicht mit einer dünnen GaN Schicht darauf (b) bis zur glatten GaN Probe auf der AlInN Keimschicht, allerdings mit rei-

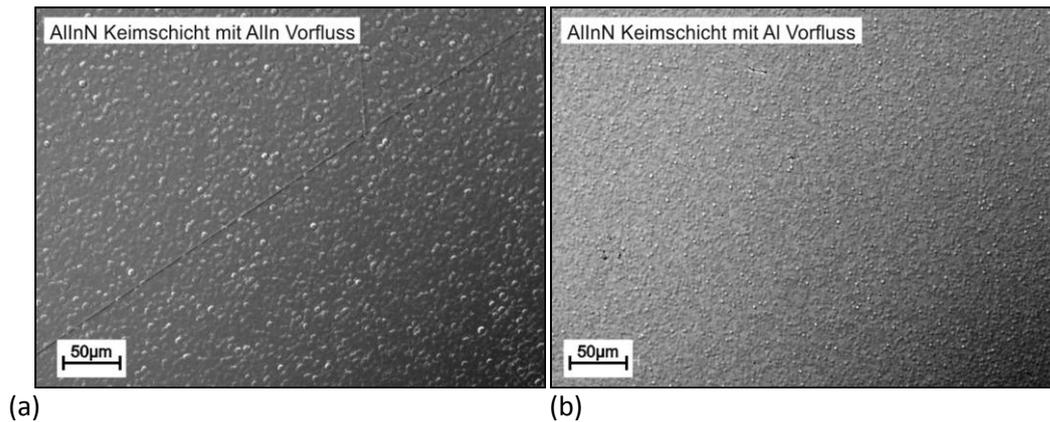


Abb. 3.37: Nomarski Aufnahmen von der GaN Oberfläche der beiden Teststrukturen mit AlInN Keimschicht und unterschiedlicher metallischer Vorbehandlung. Links: 10 sek. AlIn Vorfluss und rechts: reiner Al Vorfluss.

nem Al Vorfluss (10 sek.). Auch hier zeigt sich, dass die reine Al Substratbenetzung für eine gute Qualität der Struktur sorgt. Die Beimengung von In in den Vorfluss führt zur Aufrauung der Folgeschichten.

In den Nomarski Aufnahmen der beiden GaN Teststrukturen mit AlInN Keimschicht sieht man zusätzlich, dass die Probe mit der AlIn Vorbehandlung gerissen ist und eine schlechtere Oberfläche besitzt, Abb. 3.37 (a). Die Probe mit reiner Al Vorbehandlung ist nicht gerissen und besitzt eine leicht poröse Oberfläche. Beide Proben zeigen zudem keine Spur von Melt-back-Etching.

Die FE-REM Aufnahme der GaN Oberfläche der besseren Probe mit reiner Al Benetzung zeigt eine von vielen Pits durchsetzte Oberfläche, die von den durchstoßenden Linienversetzungen herrühren, Abb. 3.38. Nach nur 230 nm GaN Schichtdicke ist die Defektdichte im GaN noch sehr hoch ($\sim 10^{11} \text{ cm}^{-2}$) und die GaN Schicht gerade koalesziert.

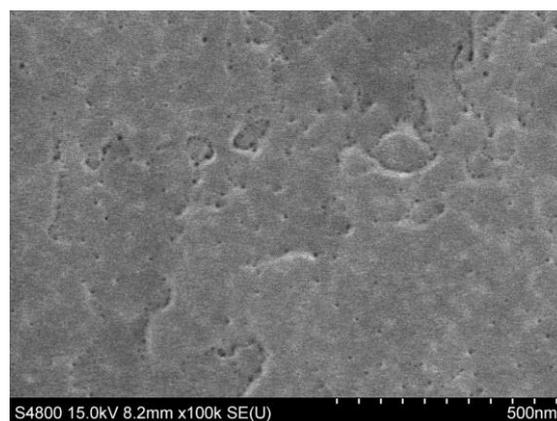


Abb. 3.38: Draufsicht FE-REM Aufnahme der GaN Struktur mit AlInN Keimschicht und initialer Al-Benetzung.

Die GaN Schicht wurde auf die AlInN Keimschicht unter nicht optimierten Wachstumsbedingungen aufgewachsen. Dennoch erreicht die GaN Kristallqualität bei einer so geringen Schichtdicke von nur 228 nm eine ω -Halbwertsbreite von 1605 arcsec im (0002) und 3263 arcsec im $(10\bar{1}0)$ Reflex, vgl. Abb. 3.39.

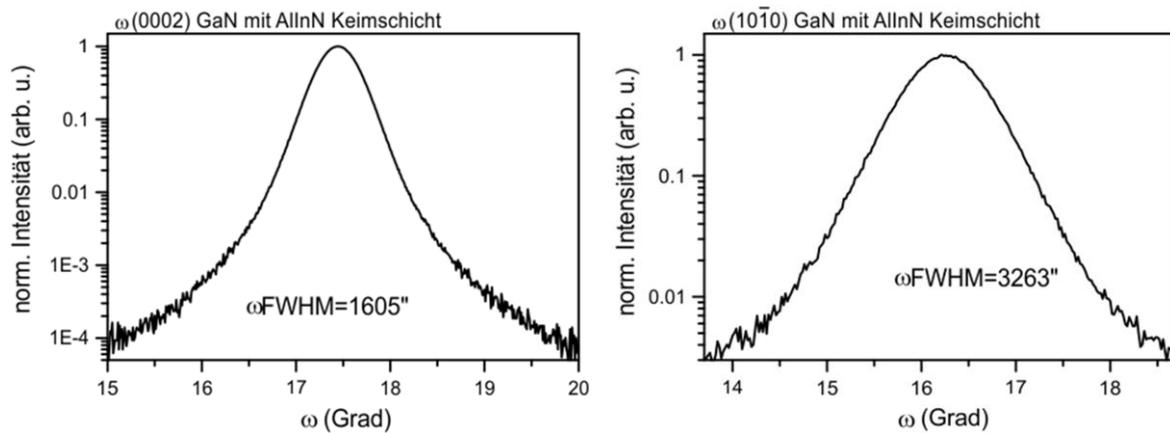


Abb. 3.39: ω -Scans von der GaN Teststruktur auf Si(111) mit AlInN Keimschicht und reinem Al Vorstrom. Die Halbwertsbreiten der ω -Kurven sind für die jeweiligen Reflexe mit angegeben.

Abschließend ist zu den ternären Keimschichten zu sagen, dass die AlGaIn Keimschichten nachweislich keinen Vorteil für die GaN Qualität bringen. Die AlInN Keimschichten allerdings zeigten schon bei nicht optimierten Wachstumsversuchen gute Resultate mit nahezu glatten GaN Oberflächen und riss- und ätzfreien Schichten. Sie bieten eine vielversprechende Grundlage für weitere Untersuchungen.

4. Defekt- und Spannungsreduktion durch Zwischenschichten im GaN

Aufbauend auf der Keimschichtoptimierung im vorherigen Kapitel wird in diesem Abschnitt die weitere Optimierung der GaN Basisstruktur bis zur kompletten Templatestruktur vorgestellt. Zunächst wird der Einfluss von LT-AlGaN Zwischenschichten bezüglich der Defekt- und Spannungsreduktion im GaN beleuchtet, welche im Uni-eigenen MOCVD Reaktor auf 2“ Si(111) Substraten gewachsen wurden. Weiterführend werden die Analysen an optimierten Zwischenschichten präsentiert, die im Rahmen des BMBF Projektes GaNonSi auf 100 mm Si(111) Substraten hergestellt wurden. Ziel des Projektes war es effiziente und kostengünstige InGaN-Lichtquellen auf Silizium-Substraten für die Allgemeinbeleuchtung zu entwickeln, die der auf Saphir mindestens ebenbürtig ist. Die Uni Magdeburg konzentrierte sich dabei auf die strukturelle Charakterisierung mittels der Röntgendiffraktometrie und die mikrooptische Charakterisierung mittels der Kathodolumineszenz und Photolumineszenz. Der Schwerpunkt der hier präsentierten Messungen liegt auf der röntgenographischen Charakterisierung. Einige der optischen und transmissionselektronischen Untersuchungen werden zur Ergänzung hinzugezogen.

4.1. Ausgangssituation zu GaN Pufferstrukturen auf Si(111)

Unabhängig vom verwendeten Heterosubstrat nimmt der GaN Kristall beim Wachstum keinen vollständig entspannten Zustand an. Aufgrund der zahlreichen Versetzungen, die sich infolge der Gitterfehlpassung zwischen Substrat und Epitaxieschicht bilden, wächst mit zunehmender GaN Schichtdicke die intrinsische Zugverspannung [Hea99, Fen02]. Während des Abkühlens von Prozess- auf Raumtemperatur addiert sich zur intrinsischen Spannung die noch wesentlich höhere thermische Spannungskomponente aufgrund der unterschiedlichen thermischen Ausdehnungskoeffizienten von 56% von Epitaxieschicht und Si Substrat [Rod05]. Bei Schichten, die dicker als ein 1 μm sind, kann die starke sich aufbauende tensile Verspannung zum Reißen der Schicht führen [Dad00]. Zusätzliches Dotieren mit beispielsweise Si für die n-Leitfähigkeit im GaN, führt zu einer weiteren Verstärkung der tensilen Verspannung (siehe auch Kapitel 5) und zu einem weiteren Herabsetzen der kritischen Rissdicke [Rom99, Dad07]. Um der überschüssigen Zugspannung entgegenzuwirken, werden in den GaN Schichtstapel spannungskompensierende Zwischenschichten eingefügt. Dadurch wird die darauffolgende GaN derart kompressiv vorgespannt, dass nach dem Abkühlen eine spannungsarme und rissfreie GaN Struktur entsteht. Als universelle Zwischenschicht für GaN Strukturen auf Silizium haben sich dünne Tieftemperatur (LT-) AlN Schichten etabliert [Kro02, Rei03, Bla02, Luo08, Kro03, Kim09]. Erstmals wandten Amano et al. LT-AlN Schichten in AlGaN Schichten auf Saphir zur Spannungskompensation an [Ama98]. Die dünnen AlN Schichten relaxieren bei tiefen Wachstumstemperaturen um ca. 500°C und können das darauffolgende GaN kompressiv vorspannen, wenn dieses pseudomorph oder nur teilrelaxiert auf dem AlN aufwächst. Dadgar et al. übertrugen diese Technologie für das GaN Wachstum auf Silizium Substraten und erzielten damit eine maximale rissfreie GaN Schichtdicke von 14.3 μm [Dad00, Dad11]. Zusätzlich verbessern die LT-AlN Zwischenschichten

auch die Oberflächenmorphologie und die Kristallqualität der GaN Schichten durch die Reduktion der Linienversetzungen, da die Zwischenschichten gleichzeitig als Defektfilter wirken können [Xue10, Ama98, Con05, Fel01, Kim01].

Um zu einer vollständigen, einige μm dicken GaN Struktur auf Si zu gelangen, müssen dünne Zwischenschichten eingefügt werden. Ein wesentlicher Bestandteil der Strukturverbesserung ist die Optimierung der Zwischenschichten für eine maximale Kompression und Reduktion der Defekte, wobei eine minimale Anzahl an Zwischenschichten verwendet werden sollte, damit die vertikale Leitfähigkeit minimal beeinträchtigt wird. Im Idealfall würden die Bauelemente frei von Zwischenschichten realisiert werden.

Bei Halbleiterbauelementen, wie beispielsweise LEDs, liegen die üblichen GaN Pufferdicken zwischen 2-7 μm und Dotierungen im mittleren 10^{18} cm^{-2} Bereich. Die hohe Strukturdicke ist zum einen erforderlich, weil die GaN auf Si LEDs aufgrund der hohen Absorption des Si Substrates (zwischen 60-70%) im sichtbaren Spektralbereich als Dünnschicht-LEDs gefertigt werden, um hohe Effizienzen zu ermöglichen. Dazu wird die LED Struktur zunächst umgedreht und mit der p-Seite auf ein neues leitfähiges Trägersubstrat mit einem hochreflektierenden Ag-Lot gelötet (p-side down). Anschließend wird in einem 2-stufigen Ätzprozess zunächst das Si-Epitaxiesubstrat nasschemisch entfernt, und anschließend in einem weiteren Ätzprozess mit erhitzter KOH der untere und defektreiche Teil des GaN Unterbaus entfernt. Bei dieser zweiten Ätzbehandlung wird der GaN Unterbau stark beschädigt, weshalb unbedingt genügend GaN Volumenmaterial vorhanden sein muss. Zum anderen darf die Zahl der Linienversetzungen in der aktiven Schicht nicht höher als $5 \cdot 10^8 \text{ cm}^{-2}$ sein, da eine hohe TD-Dichte die Effizienz der Leuchtdiode vornehmlich durch nichtstrahlende Rekombinationen an Versetzungen limitiert [Ros97, Sug98]. Zusätzlich wirken Linienversetzungen als geladene Streuzentren, die die Ladungsträgermobilität und somit die homogene Stromverteilung im Bauteil einschränken [Wei98]. Wird eine LED in Sperrrichtung betrieben, verursachen hohe Versetzungsdichten einen erhöhten Leckstrom [Koz98]. Außerdem dienen sie als Diffusionspfad für den p-Dotanten Mg, was ebenfalls zu einer geringeren Effizienz des Bauteils führt [Kur98]. Welchen drastischen Einfluss die Versetzungsdichte auf die interne Quanteneffizienz einer GaN LED haben kann, zeigen die Untersuchungen von Dai et al., in denen die IQE einer defektreicheren LED mit $1.2 \cdot 10^9 \text{ cm}^{-2}$ 30% beträgt. Eine Reduktion der Versetzungsdichte auf $5.3 \cdot 10^8 \text{ cm}^{-2}$ erhöht die IQE bereits auf 55% [Dai09]. Für hocheffiziente LEDs sind folglich Versetzungsdichten im Bereich 10^8 cm^{-2} erforderlich, was nur durch eine hinreichend dick gewachsene GaN Pufferstruktur mit optimierten defekt- und spannungsreduzierenden Zwischenschichten zu erreichen ist, denn mit dicker werdenden GaN Schichten knicken die gemischten Versetzungen ((a+c)-Typ Versetzungen) ab und annihilieren, wodurch sich die Kristallqualität verbessert [Mor09, Rag05], siehe auch Kapitel 2.1.2.

4.2. Grundlegendes zu Zwischenschichten in GaN Strukturen

Die Verwendung klassischer LT-AlN Zwischenschichten ist für das GaN auf Si Wachstum mittlerweile bekannt und etabliert. Viele Arbeitsgruppen verwenden bereits reine AlN Zwischenschichten für ihre GaN Strukturen [Dad00, Fra11, Liu07, Con05, Xia09, Kim09, Rag05, Luo11]. Bei diesen „klassischen“ LT-AlN Zwischenschichten werden an der unteren Grenzfläche eine Vielzahl von Anpassungsversetzungen durch die Relaxation des AlN erzeugt. Das Entstehen von Anpassungsversetzungen an der unteren Grenzfläche indiziert, dass die Zwischenschicht mit einer vom GaN verschiedenen in-plane Gitterkonstanten aufwächst, d.h. relaxiert oder teilrelaxiert zum darunterliegenden GaN wächst. An der oberen Grenzfläche wächst das darauffolgende GaN idealerweise vollverspannt zum relaxierten AlN und es entstehen idealerweise nur wenige bis keine Anpassungsversetzungen. Dadurch werden zwei aufeinanderfolgende GaN Schichten entkoppelt. Das Modell der relaxierten LT-AlN Zwischenschicht zeigt Abb. 4.1.

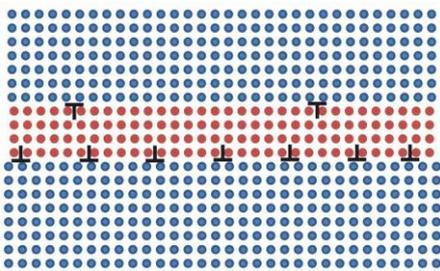


Abb. 4.1: Modell der relaxierten LT-AlN Zwischenschicht in einer GaN Matrix. Die vermehrten Anpassungsversetzungen an der unteren Grenzfläche werden durch die Relaxation des AlN gebildet. Anpassungsversetzungen an der oberen Grenzfläche entstehen durch das pseudomorphe GaN zum AlN nur noch wenige.

Allerdings haben reine AlN Schichten den Nachteil, dass sie zu einer hohen Anpassungsversetzungsdichte an der oberen AlN/GaN Grenzfläche führen. Dadurch wird zum einen die GaN Qualität infolge der aus den Anpassungsversetzungen resultierenden Linienversetzungen nicht verbessert und zum anderen werden die GaN Schichten nicht genügend entkoppelt. Reiher et al. zeigten schon 2003, dass der Grad der Spannungsrelaxation im GaN nicht nur von der Wachstumstemperatur der AlN Zwischenschicht abhängt, sondern auch von der Beimengung von Gallium [Rei03]. Für die Optimierung der tensilen Spannungskompensation und gleichzeitigen Defektreduktion im GaN Schichtstapel werden im Folgenden AlGaN Zwischenschichten mit geringem Ga-Anteil systematisch bezüglich Wachstumstemperatur und Wachstumszeit untersucht. Ebenfalls wurde die ideale Dicke der unteren GaN Schicht bestimmt, bevor eine Zwischenschicht eingefügt werden kann, damit die darauffolgende GaN Schicht die bestmögliche Qualität erreicht. Die Proben wurden in einem AIXTRON 200/4-RS Reaktor auf 2“ Si(111) gewachsen.

Dickenvariation der unteren GaN Schicht

Im vorherigen Abschnitt wurde der Einfluss der Keimschicht auf das Koaleszenzverhalten und die Kristallqualität der GaN Schicht untersucht. Dabei schnitten die LT-AlN Keimschichten als die beste Keimschichtoption ab. Deshalb wurden für die Optimierung der Zwischenschichten ebenfalls LT-AlN Keimschichten verwendet, die bei 720°C mit einer vorangehenden 12 sekundigen Al-Substratbenetzung abgeschieden wurden und nachfolgend 8 min ausgeheizt wurden. Die darauffolgende HT-AlN Schicht wurde etwa 200 nm dick gewachsen. Dann folgt eine dicke GaN Schicht, die von einer LT-AlN Zwischenschicht unterbrochen ist,

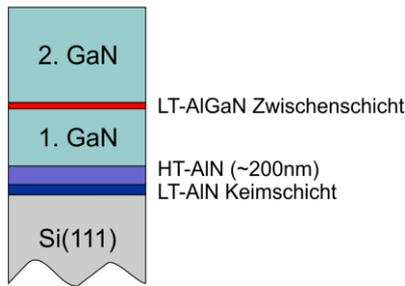


Abb. 4.2: Schematischer Aufbau der GaN Teststruktur auf Si (111) für die Optimierung der LT-AlN Zwischenschichten.

siehe Abb. 4.2. Die obere GaN Schicht ist bei der Variation der unteren GaN Schichtdicke 820 nm dick. Zunächst wurde die AlGaN Zwischenschicht bei 830°C für 75 sek. mit einem TEGa-Fluss von 2.5 $\mu\text{mol}/\text{min}$ (10 sccm) abgeschieden. Bevor jedoch die erste LT-AlGaN Zwischenschicht in den GaN Stapel eingefügt werden kann, muss das darunterliegende GaN vollständig koalesziert sein. Zunächst wächst das GaN kompressiv auf dem AlN auf, welches eine kleinere basale Gitterkonstante besitzt und zum Teil an das überwachsende GaN überträgt. Die Vielzahl von Linienversetzungen, bestehend aus Stufen-, Schrauben- und gemischten Versetzungen, klettern und annihilieren teilweise mit zunehmender GaN Schichtdicke [Mor09, Dad03]. Dadurch wird die anfänglich aufgebaute Druckspannung in den ersten 100 nm wieder abgebaut. Durch weiteres Versetzungsklettern wird zusätzliche Zugspannung aufgebaut [Rag05]. Der weiter mit der Schichtdicke zunehmende Zug soll mit dem Einfügen der Zwischenschichten gehemmt werden. Ist der Aufbau der tensilen Verspannung durch zu hohe Schichtdicke jedoch zu weit vorangeschritten, erreicht eine Zwischenschicht keine ausreichende Spannungskompensation mehr und die GaN Struktur reißt nach dem Abkühlen, wie es die GaN Oberfläche in Abb. 4.3 (a) verdeutlicht. Diese untere GaN Schicht überschreitet mit 673 nm schon die kritische Zugspannung, die die verwendete Zwischenschicht noch kompensieren kann. Ist die untere GaN Schicht allerdings noch nicht vollständig koalesziert, bildet die darauf abgeschiedene Zwischenschicht keine geschlossene und planare Schicht, sondern fügt sich vielmehr in die Inselzwischenräume ein. Dadurch entsteht eine unregelmäßige und raue Grenzfläche, die das obere GaN nicht mehr homogen kompressiv vorspannen kann, was außerdem zum Reißen der Schicht führt [Kim10a]. Ebenfalls zur Rissbildung kommt es, wenn das untere GaN zwar koalesziert ist, sich aber aufgrund des Defektkletterns mit wachsender Schichtdicke noch keine stabile Subkörnerstruktur mit entsprechendem a-Typ Versetzungsnetzwerk (Mikrostruktur) ausgebildet hat. Dann ist diese Mikrostruktur noch nicht vollständig ausgebildet und die eingefügte Zwischenschicht unterbricht diese Entwicklung, was sich wiederum ungünstig auf den Spannungsverlauf in der darauffolgenden zweiten GaN Schicht auswirkt [Rag05], wie es die gerissene GaN Oberfläche der Teststruktur mit nur 344 nm unterer GaN Dicke in Abb. 4.3 (c) zeigt. Mit 515 nm ist die Mikrostruktur des unteren GaN vollständig entwickelt und die dünne AlN Schicht

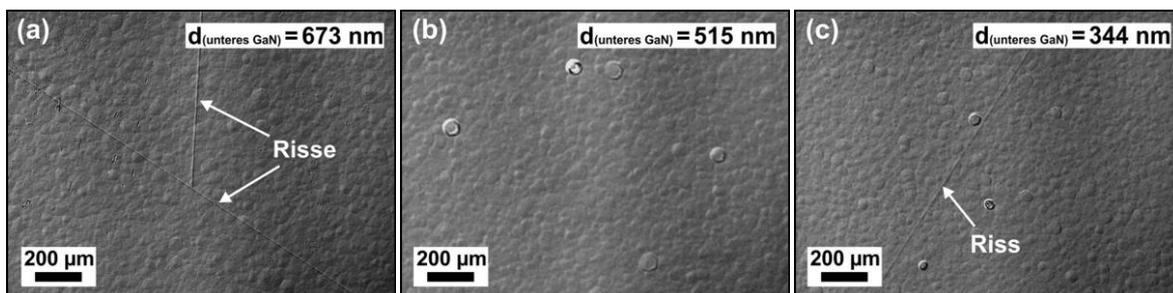


Abb. 4.3: Nomarski Aufnahmen der GaN Oberflächen, welche mithilfe von spannungskompensierenden LT-AlN Zwischenschichten kompressiv vorgespannt wurden. Die darunterliegende GaN Schichtdicke wurde zwischen 344 nm (c) und 673 nm (a) variiert. Mit einer unteren GaN Dicke von 515 nm (b) wird eine rissfreie Struktur erreicht.

spannt das darauffolgende GaN ausreichend kompressiv vor, so dass schließlich nach dem Abkühlen eine rissfreie Struktur entsteht, Abb. 4.3 (b).

Die in-situ Krümmungsmessung in Abb. 4.4 verdeutlicht anhand der stark fallenden Krümmungskurve die starke kompressive Spannungswirkung der nur etwa 15 nm dünnen Zwischenschicht auf die darauffolgende GaN Schicht. Das schwach kompressiv verspannte untere GaN besitzt mit 515 nm Dicke bereits eine vollständig ausgebildeten Mikrostruktur, was an dem konstanten Kurvenanstieg der Krümmung zu erkennen ist. Bevor die Zwischenschicht abgeschieden wird, wird die Prozesstemperatur auf die Bedingungen für relaxierendes AlN von 830°C gesenkt. Nach dem AlN Wachstum wird die Temperatur wieder auf die Bedingungen für GaN (1035°C) angehoben. Doch bevor wieder GaN abgeschieden wird, wird die Struktur für wenige Minuten auf hoher Temperatur gehalten, um die adsorbierten Al und N Oberflächenatome zu ordnen und zu stabilisieren. Die Zeitfenster um die LT-AlN Abscheidung verdeutlichen zusätzlich, wie stark sich die Krümmung der Probe durch die Temperaturänderungen für den Wechsel der Wachstumsbedingungen ändert, welche als graue Kurve in Abb. 4.4 zu sehen ist.

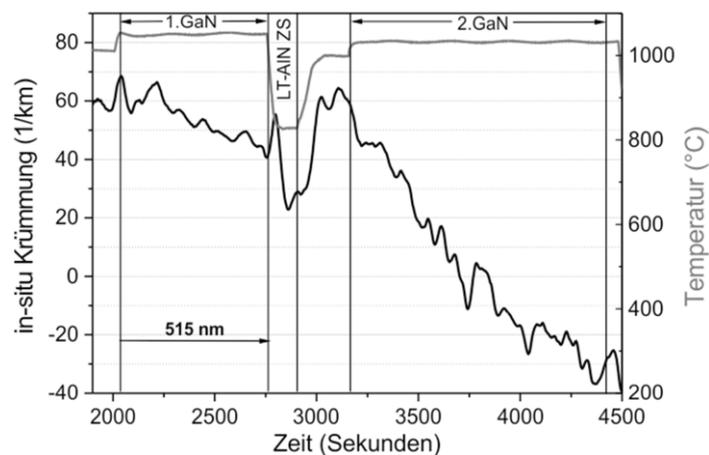


Abb. 4.4: In-situ Krümmungsmessung der rissfreien Teststruktur mit optimaler unterer GaN Dicke von 515 nm.

Mithilfe der Röntgendiffraktometrie im streifenden Einfall wurde die Verzerrung bzw. die Verspannung des oberflächennahen GaN der Teststrukturen bestimmt (Abb. 4.5). Ist die untere GaN Schicht zu dünn oder zu dick, erzeugt die eingefügte Zwischenschicht keine ausreichende Druckspannung. Wie im oberen Abschnitt bereits erläutert, ist die Mikrostruktur samt des Versetzungsnetzwerks bei zu geringen GaN Unterbauten nicht vollständig ausgebildet und führt zum Fortlaufen der Versetzungen in der GaN Folgeschicht, welche mit wachsender Schichtdicke abknicken und weitere Zugspannung aufbauen. Je unvollständiger die Mikrostruktur der GaN Basis ausgebildet ist, desto weniger Druck übt die Zwischenschicht auf das nachfolgende System aus. Bei zu dicken GaN Unterbauten ist die tensile Verspannung bereits so stark, dass der durch die Zwischenschicht im nachfolgenden GaN aufgebaute Druck nur noch einen kleinen Teil kompensieren kann. Die Verzerrungen oberhalb der optimalen 515 nm steigen daher mit dicker werdenden GaN Unterbauten weiter an.

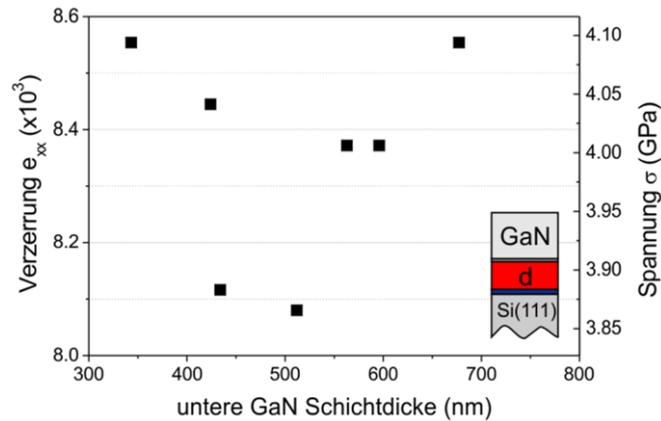


Abb. 4.5: Verformung bzw. Spannung der GaN Deckschicht in Abhängigkeit von der unteren GaN Schichtdicke.

Die ω -Halbwertsbreiten für den symmetrischen (0002) GaN Reflex (Abb. 4.6 a) und für den (10 $\bar{1}$ 0) GaN Reflex im streifenden Einfall (Abb. 4.6 b) zeigen, wie sich die Qualität der oberen GaN Deckschicht mit variierender unterer GaN Dicke verhält. Betrachtet man die ω -Halbwertsbreiten als Maß für die Defektdichte der Linienversetzungen, wird bei dünneren, unteren GaN Dicken die Defektannihilation durch das zu frühe Einfügen der Zwischenschicht unterbunden und zahlreiche Versetzungen setzen sich in der darauffolgenden Schicht fort. Je dünner die untere GaN Schichtdicke ist, desto mehr Versetzungen werden an ihrer Auslöschung gehindert und setzen sich in der Folgeschicht fort. Wird die Zwischenschicht zu spät eingefügt, d. h. auf GaN Schichten, deren Verspannungszustand eine zu kompensierende kritische Dicke überschritten hat, nimmt die Kristallqualität ebenfalls wieder ab und Tilt und Twist steigen an. Dieser Effekt stellt allerdings einen Widerspruch dar. Man würde davon ausgehen, dass sich mit dem Einfügen der Zwischenschicht auf dicken Templates die Qualität nicht ändert und Twist und Tilt eine Sättigung erreichen. Auch Kim et al. beobachten mit weiter steigenden GaN Unterbaudicken eine Verschlechterung der Kristallqualität und versuchen diesen Effekt anhand eines Modells von Hýtch et al. zu erklären, in dem die Relaxation hoher Kristallspannungen zum einen in Form von Mikrorissbildung, und zum anderen durch die

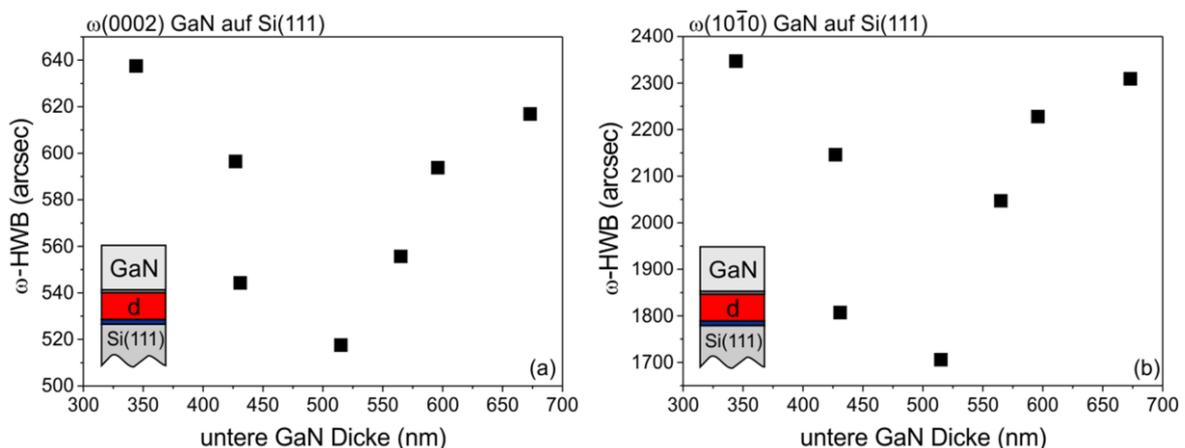


Abb. 4.6: Röntgenhalbwertbreiten für den symmetrischen (0002) und für den (10 $\bar{1}$ 0) GaN Reflex im streifenden Einfall in Abhängigkeit von verschiedenen unteren GaN Dicken. Eine untere GaN Dicke von 515 nm führt zur besten GaN Qualität der überwachsenen oberen Schicht. Alle Strukturen mit unteren GaN Dicken zwischen 400 und 600 nm sind risfrei.

Bildung neuer Linienversetzungen geschehen soll [Kim10, Hýt98]. Allerdings widerspricht dieses Modell dem Verhalten von durchgewachsenem GaN ohne Zwischenschicht, in dem sich ebenfalls hohe tensile Verspannung mit wachsender Schichtdicke aufbaut, die Kristallqualität aber bei Überschreiten der kritischen Rissdicke sich nicht verschlechtert. Das Ansteigen der Halbwertsbreiten mit weiter steigender unterer GaN Schichtdicke (>515 nm) ist daher nicht ohne weitere Untersuchungen erklärbar. Die Variation der unteren GaN Schichtdicke ergab des Weiteren, dass alle Strukturen mit Unterbaudicken zwischen 400-600 nm rissfrei waren.

Da jedoch die Defektdichte mit wachsender Unterbaudicke bzw. mit steigender basaler Verzerrung (tensiler Verspannung) ansteigt, muss die Lage der Zwischenschicht unmittelbar mit der basalen Gitterkonstante des darunterliegenden GaN korrelieren. Abb. 4.7 illustriert ein Modell, wie sich die Versetzungen im Kristallsystem, abhängig von der Lage der Zwischenschichteinbaus, verhält. Danach muss die GaN Gitterkonstante auf die darauf abgeschiedene relaxierte AlGaN Zwischenschicht abgestimmt werden, damit keine neuen Anpassungsversetzungen an der oberen Zwischenschichtgrenzfläche entstehen können. Bei der optimierten GaN Unterbaudicke ist das Verhältnis zwischen unterer und darauffolgender a-Gitterkonstante so abgestimmt, dass die einlaufenden Linienversetzungen geblockt werden und an der unteren Grenzfläche durch die Gitterfehlpassung zahlreiche Anpassungsversetzungen gebildet werden (gelbe Markierungen). Das darauffolgende GaN wächst gitterangepasst, weshalb sich an der oberen Grenzfläche keine bzw. kaum Anpassungsversetzungen bilden. Ist das Verhältnis der Gitterkonstanten mit stärker gezerrtem GaN Gitter zu groß, kann das AlN durch die Überzahl von Anpassungsversetzungen nicht „ungestört“ wachsen. Das AlN wächst dann 3-D artig und rau auf. An der oberen Grenzfläche entstehen deswegen neue Anpassungs- und Linienversetzungen, die zu einer Verschlechterung von Twist und Tilt im darauffolgenden GaN führen.

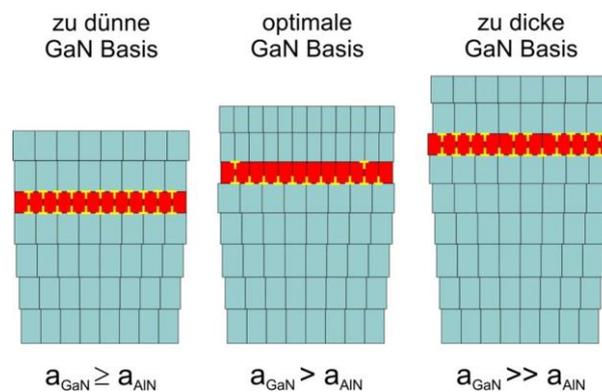


Abb. 4.7: Modell zur Veranschaulichung verschiedener Zwischenschichtpositionen in Abhängigkeit von der darunterliegenden basalen Gitterkonstante a .

Für die Optimierung der spannungskompensierenden Zwischenschicht ist die Dicke des darunterliegenden GaN ein essentieller Parameter. Dabei muss das Verhältnis zwischen den aufeinanderfolgenden basalen Gitterkonstanten auf ein Optimum abgestimmt werden. Die Zwischenschicht kann auch bei größeren GaN a Gitterkonstanten eingefügt werden, solange das Verhältnis der Gitterparameter zueinander fest bleibt, beispielsweise durch die Änderung

der Komposition einer eingefügten AlGaIn Zwischenschicht, wie es in Abschnitt 4.3 erläutert wird.

Einfluss der Zwischenschichtdicke

Nachdem die optimale untere GaN Schichtdicke für die verwendete AlGaIn-Zwischenschicht bestimmt wurde, wird nun der Einfluss der Zwischenschicht bezüglich der Wachstumstemperatur und der Schichtdicke untersucht. Die in-situ Krümmungskurven in Abb. 4.8 veranschaulichen, dass die ideale Zwischenschichtdicke bei einer Abscheidezeit von 75 sek. erreicht ist. Bei zu dünnen oder zu dicken Zwischenschichten wird das GaN weniger stark kompressiv vorgespannt.

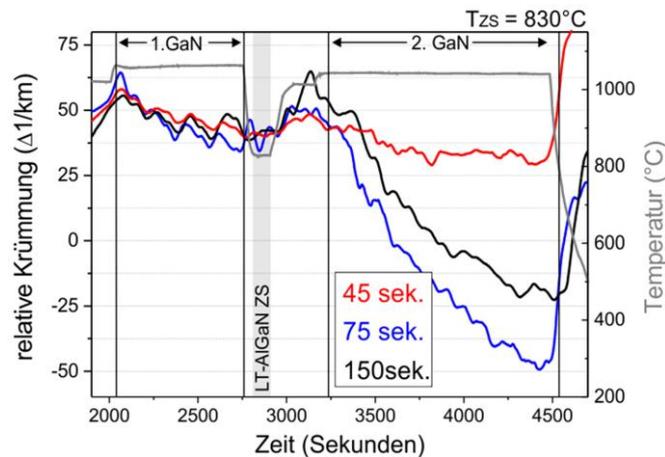


Abb. 4.8: In-situ Krümmungskurven der GaN Teststrukturen mit verschiedenen dicken LT-AlGaIn Zwischenschichten.

Die basale Gitterverzerrung bzw. GaN-Schichtspannung, welche mit Hilfe der Röntgendiffraktometrie im streifenden Einfall bestimmt wurde, zeigt ein deutliches Spannungsminimum der Deckschicht bei einer Abscheidedauer der Zwischenschicht von 75 sek. (siehe Abb. 4.9), was einer Dicke von etwa 10 nm entspricht. Krost et al. beobachten ebenfalls eine maximale kompressive Verspannung durch Einfügen klassischer LT-AlN Zwischenschichten bei einer Zwischenschichtdicke von 10 nm [Kro03].

Alle geringeren oder höheren Abscheidezeiten führen zu einer höheren Verspannung. Eine Erklärung dafür ist, dass eine zu geringe Abscheidezeit noch keine geschlossene Zwischenschicht bildet oder die Relaxation der Zwischenschicht an der unteren Grenzfläche nicht ausreichend ist. Wird das GaN auf einer nicht geschlossenen Zwischenschicht aufgewachsen, können die darunterliegenden Versetzungen nicht gefiltert werden (abknicken und annihilieren). Sie laufen in der Folgeschicht weiter. Eine detaillierte TEM-Analyse an verschiedenen dicken LT-AlN Zwischenschichten zeigte zudem, dass dünne AlN Schichten raue Übergänge zum GaN besitzen und an den Grenzflächen kein Netzwerk von Anpassungsversetzungen gebildet wird. Bei 4 nm Zwischenschichtdicke ist die Spannungsänderung des auf die Zwischenschicht folgenden GaN bereits nahezu Null [Kro03].

Das Zunehmen der tensilen Verspannung bei Übersteigen die optimalen Zwischenschichtdicke hat seine Ursache in einer höheren Anzahl von Versetzungen. Nach dem Zwischenschichtwachstum wird diese für etwa 2 min bei 1015°C ausgeheizt, um eine hohe c-Achsenorientierung zu erhalten. Ist die Zwischenschicht zu dick, reicht die Ausheizzeit nicht

aus und es bleiben teilweise polykristalline Anteile in der Zwischenschicht, die das Koaleszenzverhalten der Folgeschicht beeinflussen [Con05]. Das Überwachsen einer zu dicken Zwischenschicht mit unzureichendem Ausheizprozess führt deshalb ebenfalls zu einer gesteigerten Anzahl von Versetzungen, die die tensile GaN Schichtspannung verstärken.

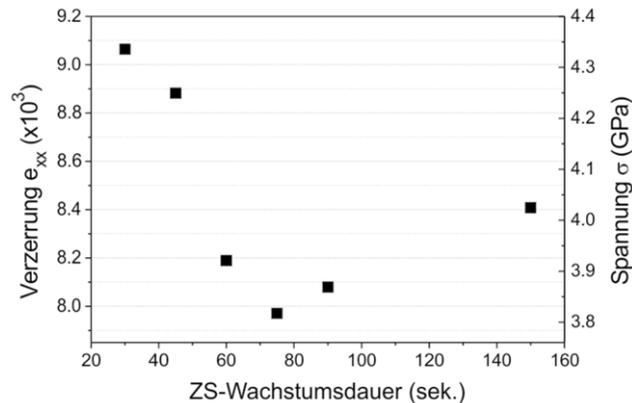


Abb. 4.9 Einfluss der Wachstumsdauer der LT-AlGaIn Zwischenschicht auf die Verzerrung bzw. Verspannung der GaN Deckschicht.

Diese Modelle werden zusätzlich durch die ω -Halbwertsbreiten zur Bestimmung des Tilts (Abb. 4.10 a) und Twists (Abb. 4.10 b) bestätigt. Sowohl c-Typ Versetzungen (Tilt) als auch a-Typ Versetzungen (Twist) werden mit zu geringer und zu hoher Zwischenschichtdicke verstärkt gebildet. Jedoch zeigt sich hier eine optimale GaN Kristallqualität bei einer Zwischenschicht, welche bei 60 sek. abgeschieden wurde. Die Zwischenschichtdicke bei dieser Abscheidendauer ist gerade optimal, um die unteren Versetzungen effizient zu blockieren und beim Überwachsen der GaN Deckschicht möglichst wenig neue zu generieren.

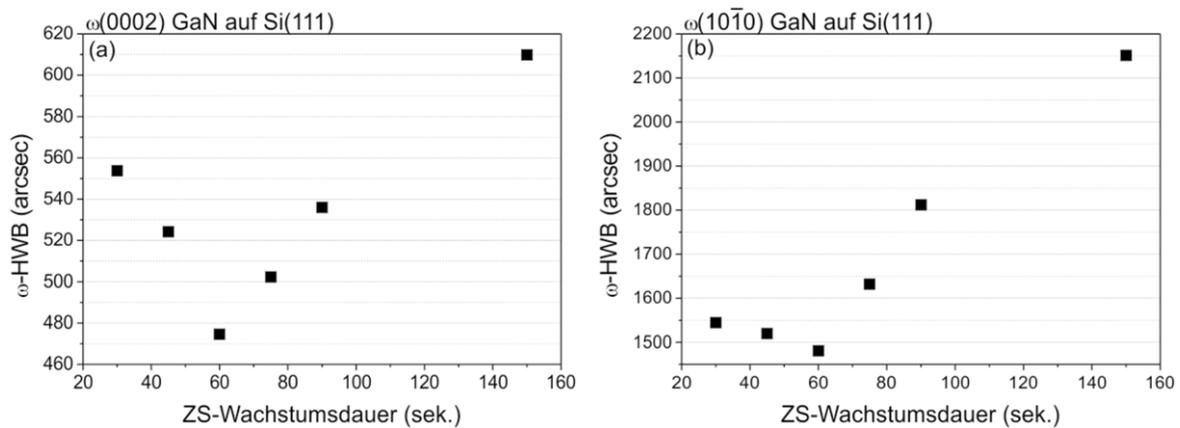


Abb. 4.10: Einfluss der Wachstumstemperatur der AlGaIn Zwischenschicht auf die ω -Halbwertsbreiten des (a) symmetrischen (0002) und (b) des in der Oberflächenebene liegenden (10 $\bar{1}$ 0) Reflexes der GaN Deckschicht.

Bei Betrachtung der GaN Oberflächenmorphologie mit Hilfe der Nomarski Mikroskopie in Abb. 4.11 ist lediglich ein geringer Einfluss der Zwischenschichtdicke auf die Oberflächenqualität zu verzeichnen. Alle Strukturen sind rissfrei und besitzen eine glatte Oberfläche. Die Probe, deren Zwischenschicht bei 75 sek. gewachsen wurde, besitzt die glatteste Oberfläche.

Die Oberflächen mit dünnerer (45 sek.) und dickerer (150 sek.) Zwischenschicht weisen eine leichte Rauigkeit auf.

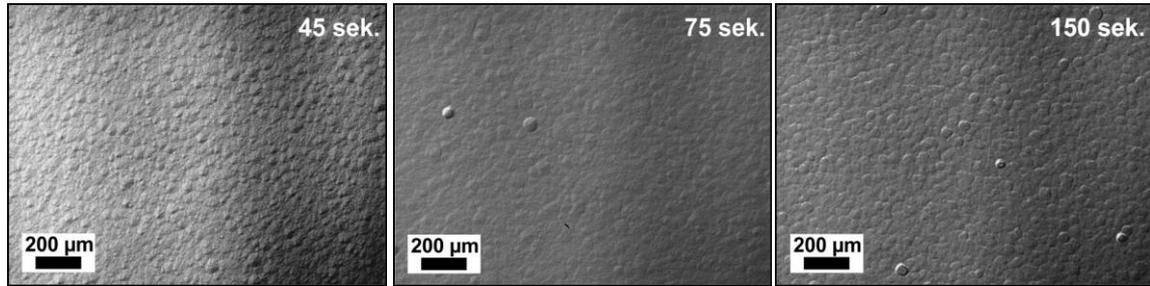


Abb. 4.11: Nomarski Aufnahmen der GaN Deckschichtoberfläche in Abhängigkeit von der Wachstumsdauer der eingefügten LT-AlGaN Zwischenschicht.

Einfluss der Wachstumstemperatur

Aufgrund der Tatsache, dass die Zwischenschichten primär zur Spannungskompensation in die GaN Schicht eingefügt werden, wird in den folgenden Wachstumsexperimenten die Zwischenschicht für 75 sek. abgeschieden, mit der eine minimale tensile Verspannung der Deckschicht erzielt werden konnte.

Die Wachstumstemperatur bestimmt den Verspannungsgrad der Zwischenschicht, wobei geringere Temperaturen zur Relaxation und hohe Temperaturen zu einem pseudomorphen Wachstum führen. Dies stellen die in-situ Krümmungsmessungen in Abb. 4.12 in Abhängigkeit verschiedener Abscheidetemperaturen dar. Bei den Temperaturen zwischen 860°C und 885°C wächst die AlGaN Zwischenschicht teilrelaxiert auf, dadurch wird das darauffolgende GaN nur schwach kompressiv vorgespannt. Erst bei Temperaturen von 830°C und niedriger relaxiert die dünne AlGaN Schicht und erzielt ein stark kompressiv vorgespanntes GaN, welches nach dem Abkühlprozess einen flachen Wafer mit Krümmung 0 km^{-1} hinterlässt. Die Krümmungskurven für die Zwischenschichttemperaturen zwischen 750°C und 830°C erzielten den identischen Verspannungszustand in der GaN Deckschicht (hier nicht gezeigt). Aus diesem Grund wurde die Temperatur nicht tiefer als 750°C eingestellt.

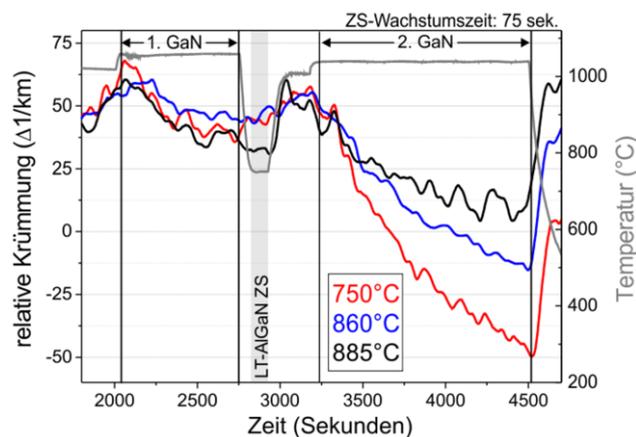


Abb. 4.12: In-situ Krümmungskurven der GaN Teststrukturen mit jeweils einer, bei verschiedenen Temperaturen abgeschiedenen AlGaN Zwischenschichten.

Das Temperaturfenster, in dem die relaxierten AlGaN Zwischenschichten gewachsen werden können, ist mit mehr als $\Delta T_{ZS}=80^\circ\text{C}$ ($750\text{-}830^\circ\text{C}$) sehr breit. Der Einfluss der relaxierten Zwischenschichten innerhalb dieses Temperaturbereichs auf die GaN Kristallqualität ist daher als gleichbleibend zu erwarten und nur von den Reaktorschwankungen bestimmt, siehe Abb. 4.13. Weil die Wachstumsexperimente gerade in dem Temperaturfenster der AlGaN Relaxation durchgeführt wurden, kann aus den ω -Halbwertsbreiten in Abb. 4.13 (a) und (b) keine konkrete Abscheidetemperatur für eine optimale GaN Kristallqualität abgeleitet werden.

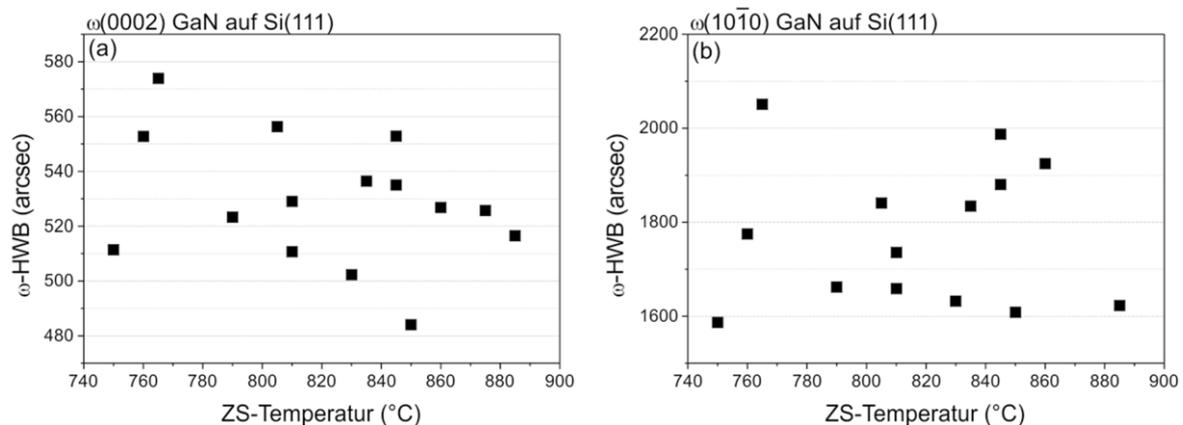


Abb. 4.13: Einfluss der Wachstumstemperatur der AlGaN Zwischenschicht auf die ω -Halbwertsbreiten des (a) symmetrischen (0002) und (b) des in der Oberflächenebene liegenden (10 $\bar{1}0$) Reflexes der GaN Deckschicht.

Vergleicht man nun die Qualität der GaN Struktur mit 1340 nm Dicke basierend auf der dicken- und temperaturoptimierten Zwischenschicht von 475 arcsec (Tilt) und 1450 arcsec (Twist) mit der Qualität der GaN Basisschicht, welche auf der optimierten LT-AlN Keimschicht einen Tilt von 692 arcsec und einem Twist von 1050 arcsec erzielte, stellt sich heraus, dass durch das Einfügen der AlGaN Zwischenschicht zwar die Zahl der c-Typ Defekte sinkt, aber die a-Typ Defekte zunehmen. Um die Bildung der Versetzungen zu unterbinden und gleichzeitig eine optimale Spannungskompensation zu erreichen, können Gradienten in der AlGaN Zwischenschichten zu hervorragenden Kristallqualitäten führen, wie die folgenden Abschnitte zeigen.

4.3. Funktionsweise von Gradienten in ternären Zwischenschichten

Im Rahmen des BMBF-Projektes GaNonSi wurde die Optimierung einer GaN Templatestruktur (oder auch Pufferstruktur) bezüglich Verspannung und Defektdichte für das darauffolgende Überwachsen mit der aktiven Schicht fokussiert. Die Proben wurden auf 100 mm Si(111) Substraten mittels des MOCVD Verfahrens in zwei verschiedenen Reaktortypen hergestellt. Die Proben vom Probentyp a sind in einem Einzelscheiben Showerhead Reaktor gewachsen worden. Die Proben vom Probentyp b sind in einem Showerhead-artigen Multiwaferreaktor mit hoher Suszeptordrehgeschwindigkeit hergestellt worden. Der prinzipielle Probenaufbau beider Probentypen ist in Abb. 4.14 dargestellt. Diese Probenstruktur dient der einfachen Optimierung des Herstellungsprozesses, ohne eine zeit- und kostenaufwendige LED-Struktur wachsen zu müssen. Für das erfolgreiche Wachstum letzterer ist eine rissfreie Schichtdicke für die elektronischen Bauelementschichten von ca. 2 μm notwendig. In den hier untersuchten

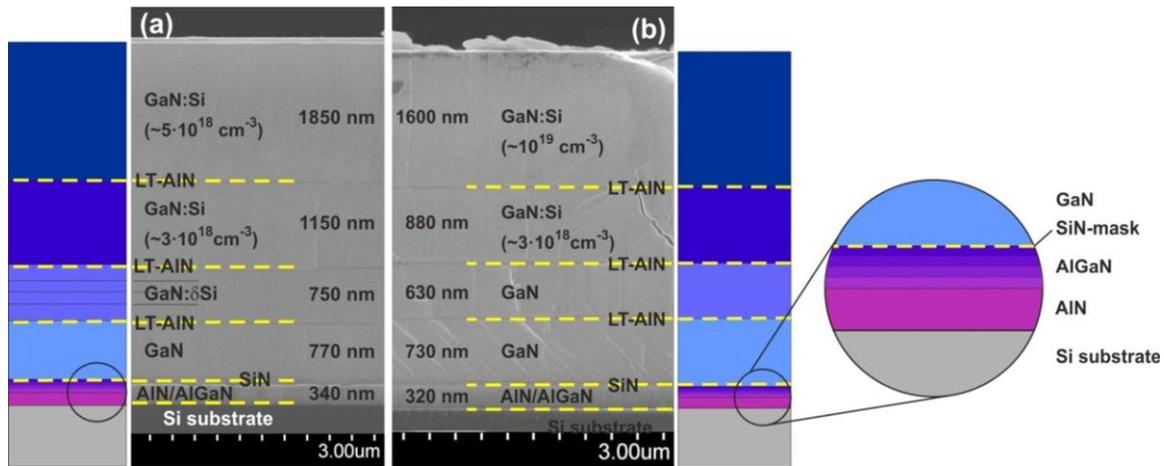


Abb. 4.14: Probenaufbau der optimierten GaN Templatestrukturen vom Probentyp (a) und vom Probentyp (b).

Proben wird die eigentliche elektronische Bauelementstruktur durch eine hoch siliziumdotierte Abschlusschicht simuliert.

4.3.1. Verschiedene AlGaN Zwischenschichtansätze

Zur Findung einer geeigneten Zwischenschicht für GaN auf großflächigen Si-Substraten von 100 mm wurden zunächst mehrere Ansätze untersucht. Dabei kamen ternäre AlGaN Zwischenschichten zum Einsatz, welche unter Hochtemperatur- und auch unter Niedertemperaturbedingungen, sowie mit und ohne Gradienten hergestellt wurden.

Zunächst wurde für die Entwicklung und Optimierung der GaN Templatestrukturen der Einfluss der Temperaturbedingungen (HT- oder LT) auf den Relaxationsgrad der ternären AlGaN Zwischenschichten untersucht. Dabei wurden erhebliche Unterschiede im Wachstumsmodus, aber weniger im Relaxationsgrad festgestellt. Während LT-AlGaN Schichten in einem 3-D Inselwachstum (Stranski-Krastanov) aufwachsen und ein dichtes Netzwerk von Anpassungsversetzungen an der unteren Grenzfläche bilden, wächst die HT-AlGaN Schicht im 2-D Wachstumsmodus (F.-van-der-Merwe) mit einer geringeren Zahl von Anpassungsversetzungen auf. Wie das Versetzungsnetzwerk bei beiden Zwischschichttypen (LT-AlGaN und HT-AlGaN) ausgebildet ist, zeigen die Bruchkanten Hellfeld-TEM Aufnahmen in Abb. 4.15. Beide Aufnahmen wurden an Teststrukturen angefertigt, bestehend aus einer unteren dicken GaN Schicht (ca. 1 μm) und der darauf gewachsenen Zwischenschicht. Die LT-AlGaN Schicht ist ca. 60 nm dick und besitzt in den unteren 15 nm einen Aluminiumgradienten, der zur Folge hat, dass sich die Anpassungsversetzungen nicht in einer Linie an der Grenzfläche ordnen, sondern höhenverteilt entlang des Gradienten liegen (rot markiert). Die LT-AlGaN Schicht ist nicht überwachsen, weshalb an der oberen Grenzfläche keine Anpassungsversetzungen sichtbar sind. Die nur 35 nm dicke HT-AlGaN Schicht besitzt keinen Gradienten und entsprechend in einer Linie angeordnete Anpassungsversetzungen. Zusätzlich wurde diese Schicht mit einer dünnen GaN Deckschicht (5 nm) überwachsen.

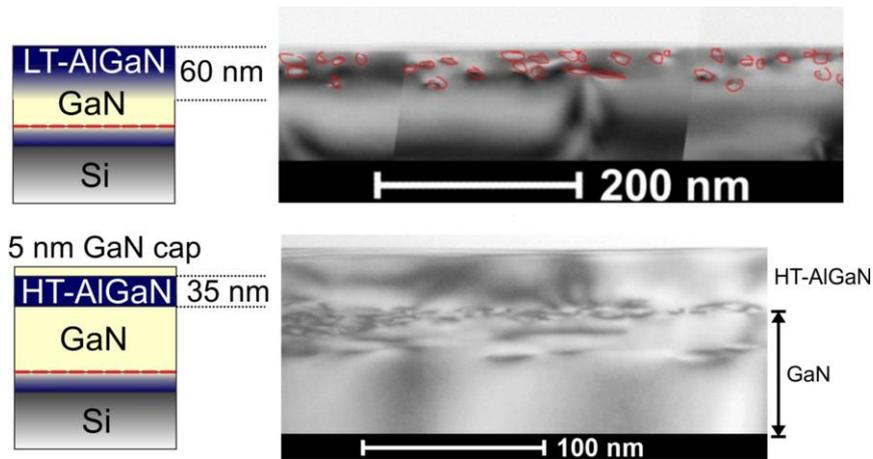


Abb. 4.15: Hellfeld-TEM Aufnahme an der Bruchkanten der Teststrukturen vom Probenotyp b mit LT-AlGaN Zwischenschicht inklusive unterem Al-Gradienten (oben) und HT-AlGaN Zwischenschicht (unten).

Auch hier sind keine Anpassungsversetzungen an der oberen Grenzschicht erkennbar, da die Deckschicht 3-D-artig überwuchs und nach 5 nm noch nicht koalesziert ist, was aus weiteren TEM Analysen ersichtlich wurde.

Um die Struktur der Zwischenschichten mittels der Röntgendiffraktometrie sichtbar zu machen, ist die Messung einer reziproken Gitterkarte (reciprocal space map - RSM) an einem asymmetrischen GaN Reflex sinnvoll. Bei der Messung am asymmetrischen $(11\bar{2}4)$ GaN Reflex werden sowohl Informationen über die Gitterparameter der Basalflächen des c-achsenorientierten Wurtzitkristalls gewonnen, als auch über die Prismenflächen. Daraus lassen sich zusätzlich Aussagen über die Komposition und den Verspannungszustand bzw. den Relaxationsgrad einzelner Schichten und Schichtanteile in der Gesamtstruktur treffen (siehe Abschnitt 2.3.2). Die Messung einer solchen reziproken Gitterkarte ist allerdings ein integrales Verfahren, d.h. die auftauchenden Reflexe können nicht direkt einer Lage in der Gesamtstruktur zugeordnet werden. Ist der Aufbau der gemessenen Struktur bekannt, erfolgt die Zuordnung der Reflexe folglich aus Plausibilitätsüberlegungen. In diesem Fall wurde eine breite Variation von Teststrukturen untersucht, die die eindeutige Zuordnung der Reflexe zu-

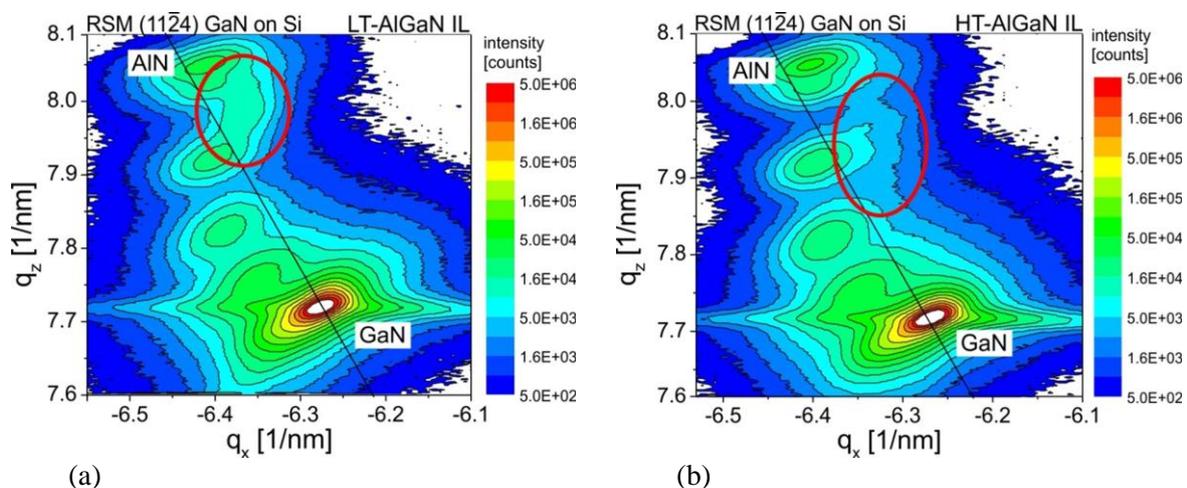


Abb. 4.16: Asymmetrischer RSM der GaN Teststrukturen vom Probenotyp b mit 60 nm dicker LT-AlGaN Zwischenschicht und unterem AlGaN Gradienten (a) und 35 nm HT-AlGaN Zwischenschicht (b).

lässt. Die asymmetrischen RSMs zu den LT- und HT-AlGaN Zwischenschichten sind in Abb. 4.16 dargestellt.

Betrachtet man die Intensität entlang der Relaxationsgeraden, besitzen alle Reflexe, die sich auf dieser Geraden befinden, freie und unverspannte Gitterkonstanten und entsprechen, abhängig von der Lage auf der Geraden, einer bestimmten AlGaN Komposition. Der intensive GaN Reflex liegt auf der Relaxationsgeraden und nimmt demzufolge seine natürliche, unverspannte Gitterkonstante an. Die Reflexe des 4-stufigen AlGaN Puffers liegen links von der Geraden und sind kompressiv verspannt. Genauer verspannen die Pufferschichten mit zunehmendem Galliumgehalt immer stärker kompressiv, erkennbar an dem größer werdenden Abstand links zur Relaxationsgeraden. In die andere Richtung der Relaxationsgeraden verhält es sich ebenso, allerdings sind die Gitter dann tensil verspannt. Die rot eingekreisten Intensitäten markieren das Signal der Zwischenschicht. Beide Schichten sind teilrelaxiert und ihre Signale liegen in unterschiedlichen Höhen zur Relaxationsgeraden, d.h. sie besitzen folglich nicht dieselbe AlGaN Komposition. Die LT-AlGaN Schicht ist mit ca. 81% leicht aluminiumhaltiger als die HT-AlGaN Schicht, welche nur ca. 70% Aluminium besitzt. Die LT-AlGaN Schicht besitzt einen unteren Al-Gradienten, was die Verlängerung des Signals erklärt. Aus der TEM Analyse ist bekannt, dass die LT AlGaN Schicht Kompositionsfluktuationen aufweist, was diesen Effekt noch verstärkt. Der Relaxationsgrad der beiden Zwischenschichttypen lässt sich mithilfe der Beziehung:

$$r = \frac{a_f^{mess} - a_{Substrat}^{mess}}{a_f^{relax} - a_{Substrat}^{mess}} = \frac{\frac{1}{q_{x,f}^{mess}} - \frac{1}{q_{x,Substrat}^{mess}}}{\frac{1}{q_{x,f}^{relax}} - \frac{1}{q_{x,Substrat}^{mess}}} \quad (4.1)$$

bestimmen. Die LT-AlGaN Schicht ist bezüglich des darunterliegenden GaN um 75% ($\pm 20\%$) relaxiert, die HT-AlGaN Schicht nur etwa 50% ($\pm 20\%$).

In der TEM Analyse wird der Relaxationsgrad aus dem mittleren Abstand der Anpassungsversetzungen bestimmt. Für die LT-AlGaN Schicht beträgt dieser 92% ($\pm 20\%$) und für die HT-AlGaN Schicht 82% ($\pm 20\%$).

Wird die HT-AlGaN Schicht mit dickem GaN ($\sim 1.5 \mu\text{m}$) überwachsen, entstehen auch an der oberen Grenzfläche Anpassungsversetzungen. Die Koaleszenz des überwachsenden GaN ist folglich ein zwingendes Kriterium zur Bildung von Anpassungsversetzungen, da sich vorwiegend mit dem Verbinden der GaN Wachstumsinseln Spannungsfelder in der Basalebene ausbilden. Die Dichte der oberen Anpassungsversetzungen ist gemäß dem Modell der klassischen LT-AlN Zwischenschicht nach Abb. 4.1 wesentlich geringer als die der unteren Grenzfläche (Abb. 4.17). Das auf die HT-AlGaN Schicht folgende GaN ist kompressiv vorgespannt

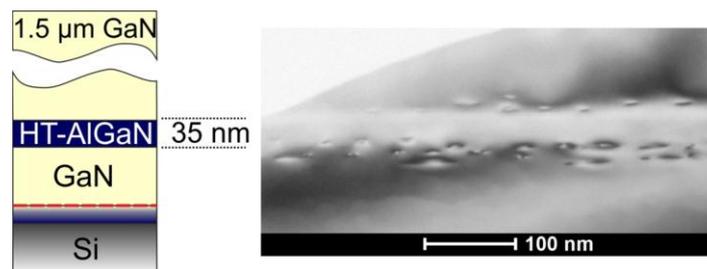


Abb. 4.17: Hellfeld cross-section TEM Aufnahme der HT-AlGaN Zwischenschicht in einer dicken GaN Matrix.

und vom darunterliegenden GaN entkoppelt, was zusätzlich mithilfe von symmetrischen $\theta/2\theta$ -Messungen anhand der Reflexaufspaltung nachgewiesen wurde ($c_{\text{unteres GaN}} = 5.1884 \text{ \AA}$, $c_{\text{oberes GaN}} = 5.1824 \text{ \AA}$).

Die Oberflächen der HT- und LT-AlGaN Teststrukturen wurden zusätzlich mittels AFM untersucht. Beide Schichten sind gerissen und weisen ein dichtes Rissnetzwerk auf. Bei der mit dickem GaN überwachsenen HT-AlGaN Schicht zeigt die HRTEM Analyse überwachsene Risse, die darauf hindeuten, dass zumindest die HT-Zwischenschichten schon während des Wachstums reißen. Von überwachsener HT-Zwischenschicht wurde ebenfalls eine asymmetrische reziproke Gitterkarte aufgenommen und der einfachen HT-AlGaN Teststruktur gegenübergestellt (Abb. 4.18). Beide Proben, sowohl die dünn mit GaN bedeckte als auch die mit dickem GaN überwachsene HT-AlGaN Zwischenschicht zeigen dieselbe Reflexlage der Zwischenschichten. Die Zwischenschichten sind infolge des Reißens (teil)relaxiert, was die Reflexposition im RSM bestätigt. Al-Konzentration und Relaxationsgrad sind bei beiden Proben vergleichbar.

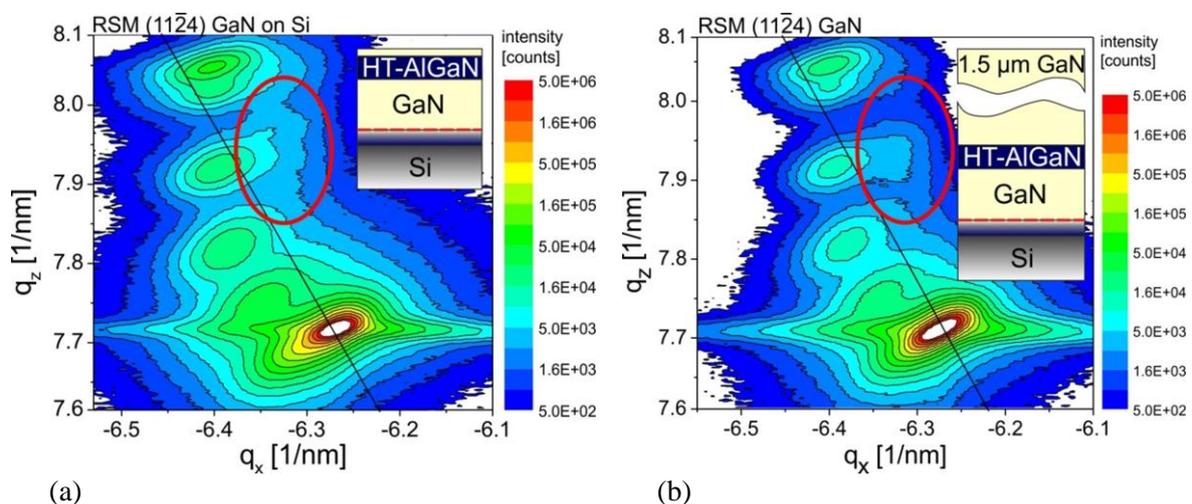


Abb. 4.18: Vergleich der asymmetrischen RSMs ($1\bar{1}\bar{2}4$) der GaN Teststruktur vom Probentyp b mit dünner HT-AlGaN Zwischenschicht (a) mit 5 nm dünnem GaN überwachsen und (b) mit 1.5 μm dickem GaN überwachsen.

Der Vergleich der Konzepte zeigt, dass Zwischenschichten mit abrupten Grenzflächen nahezu eine Linienanordnung der Anpassungsversetzungen aufweisen. Ein gradueller Übergang zur Zwischenschicht führt zu einer breiten Höhenverteilung der Anpassungsversetzungen. LT-AlGaN Zwischenschichten relaxieren mit 80% Relaxationsgrad stärker als die HT-AlGaN Schichten (70%). Anders als bei den reinen HT-AlN Zwischenschichten (teil)relaxieren auch die HT-AlGaN Schichten. Für die Weiterentwicklung der Zwischenschichten für eine GaN Templatestruktur werden die gradierten LT-AlGaN Schichten weiter verwendet und untersucht.

4.3.2. Doppelgradierte LT-AlGaN Zwischenschichten

Die finalen GaN Templatestrukturen besitzen insgesamt drei Zwischenschichten (vgl. Abb. 4.14), wobei die unterschiedlichen Zwischenschichttypen für die etwa 4.4 μm dicken GaN Unterbauten optimiert wurden. Die Zwischenschichten vom Probentyp b besitzen einen Al-

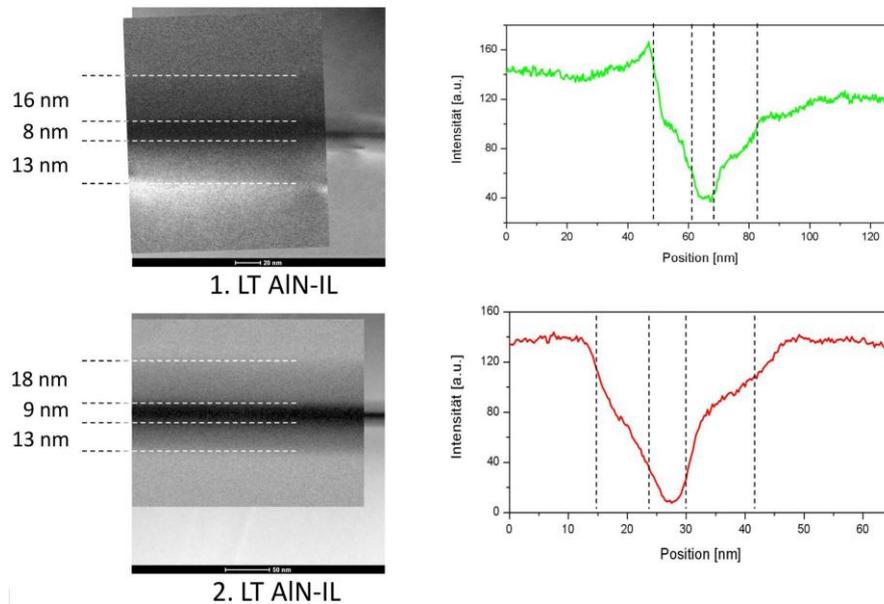


Abb. 4.19: Konzentrationsprofil der AlGaIn Zwischenschichten zu erkennen in den z-Kontrast TEM Aufnahmen (links) und dem z-Kontrast Linienausschnitt (rechts)[IKZ10].

GaN Doppelgradienten, wobei eine untere und eine obere gradierte AlGaIn Schicht eine hochaluminiumhaltige Kernschicht mit etwa 65-70% Aluminium einschließen. Das Konzentrationsprofil der ersten und zweiten doppelgradienten Zwischenschichten ist in den z-Kontrastaufnahmen in Abb. 4.19 dargestellt. Der untere Gradient ist mit etwa 13 nm etwas dünner als der obere Gradient (ca. 18 nm). Die Kernschicht ist nur etwa 8 nm dick. Die zugehörige Linienmessung (Abb. 4.19 rechts) der z-Kontrastaufnahmen zeigt den relativen Verlauf der Aluminiumkonzentration entlang der Zwischenschicht. Darin ist deutlich zu erkennen, dass die Gradienten unterschiedliche Anstiege enthalten, entsprechend ihrer Position. Die untere Schicht besitzt einen stärkeren Gradienten, als die obere.

Wie schon im vorherigen Abschnitt gezeigt, hat auch hier der untere AlGaIn-Gradient zur Folge, dass sich die Spannungsfelder in verschiedenen Lagen des Gradienten aufbauen, so dass die entstehenden Anpassungsversetzungen nicht exakt in einer Grenzfläche liegen, sondern entlang des Gradienten höhenverteilt sind, siehe Abb. 4.20. Die roten Markierungen in TEM-Aufnahme (a) kreisen die Anpassungsversetzungen der unteren Grenzschicht ein, die blauen die der oberen, die zusätzlich ein Indiz und ein Maß für die Relaxation sind. In der

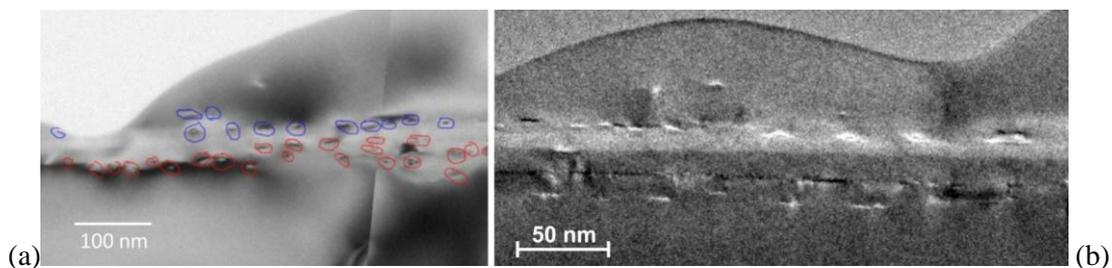


Abb. 4.20: TEM-Analyse der doppelgradienten Zwischenschicht vom Probenotyp b mit verschiedenen dichten Anpassungsversetzungen oberhalb und unterhalb der Zwischenschicht. Im linken TEM Bild sind die oberen (blau) und unteren (rot) Anpassungsversetzungen markiert, wobei die unteren Defekte durch den Gradienten in der Höhe verteilt liegen. In der TEM Aufnahme rechts liegen die unteren Anpassungsversetzungen teilweise schon im darunterliegenden GaN [IKZ11].

HRTEM Aufnahme (b) ist zusätzlich der z-Kontrast der Zwischenschicht schwach erkennbar. Eine statistische TEM Analyse ergab zudem, dass es keine vollverspannten Bereiche im unteren Gradienten gibt. Es taucht in jeder untersuchten Struktur ein dichtes Netz von Anpassungsversetzungen an der unteren Zwischenschichtgrenzfläche auf, die die Relaxation der AlGaN Schicht belegen.

Die Anpassungsversetzungen bilden sich nicht nur im unteren Gradienten, sondern einige wenige schon im darunterliegenden GaN. D.h. schon vor dem Beginn der unteren gradierten Schicht entstehen auch im GaN starke Spannungsfelder, die zur Bildung von Anpassungsversetzungen führen. Die TEM Bilder in Abb. 4.20 zeigen wesentlich weniger obere Anpassungsversetzungen verglichen zu den unteren, was bedeutet, dass das nachfolgende GaN (nahezu) die Gitterkonstante der Zwischenschicht annimmt und dadurch kompressiv vorgespannt und von der unetren GaN Schicht entkoppelt ist, wie es in dem Modell der klassischen LT-AlN Zwischenschichten in Abb. 4.1 veranschaulicht ist.

Die doppelgradienten Zwischenschichten funktionieren neben der Spannungskompensation zusätzlich als Filter für threading dislocations ((a+c)-Typ, c-Typ und a-Typ). In den TEM Aufnahmen in Abb. 4.21 ist genau zu erkennen, dass die Versetzungen in die Zwischenschicht einlaufen und schon kurz zuvor im GaN abknicken (Pfeile). Die Spannung, die im GaN unmittelbar unter der AlGaN Schicht aufgebaut wird, führt zum Abknicken der Versetzungslinien, wie es bereits in [Rom03] beschrieben ist. Im nachfolgenden GaN tauchen die Linienversetzungen nicht mehr auf; da sie durch das Spannungsfeld der unteren Zwischenschichtgrenzfläche abknickten und mit einer anderen Versetzung mit entgegengesetztem Burgers-Vektor annihilierten. Auch diese TEM Aufnahmen zeigen eine unterschiedliche Dichte der oberen und unteren Zwischenschichtübergänge, was in Summe zu einer stärkeren Kompression im darauffolgenden GaN führt, welches leicht teilrelaxiert mit nur wenigen oberen

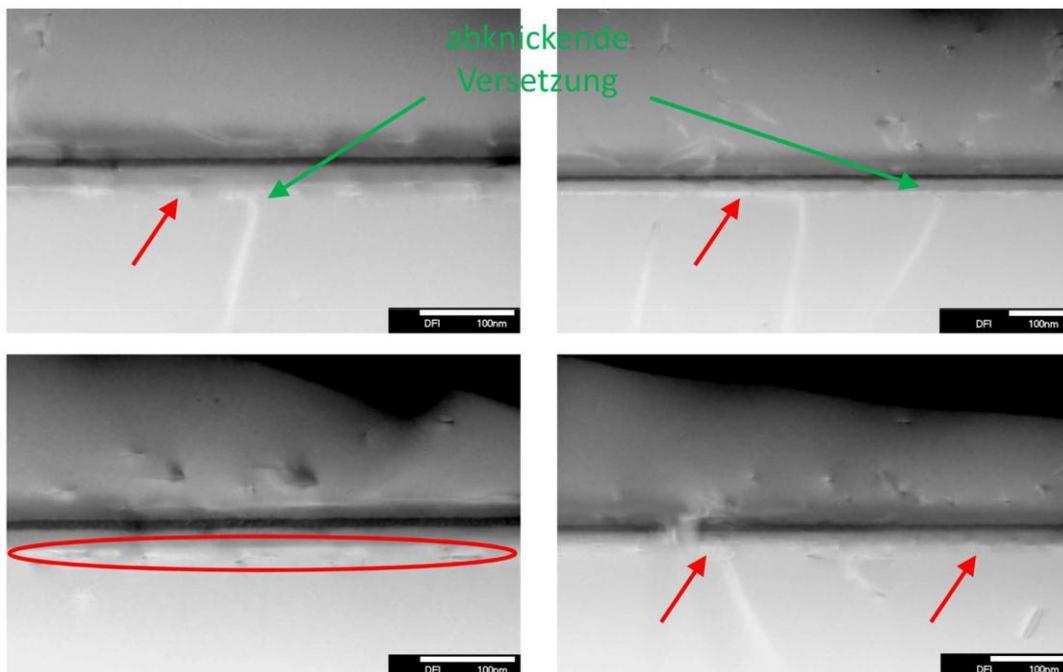


Abb. 4.21: TEM Aufnahme der ersten und zweiten Zwischenschicht in einem GaN Template vom Probentyp b. Die roten Pfeile markieren die Anpassungsversetzungen am unteren Grenzübergang von GaN zu AlGaN. Die grünen Pfeile zeigen die abknickenden Linienversetzungen durch das an der unteren Grenzfläche GaN/AlGaN aufgebaute Spannungsfeld [IKZ11].

Anpassungsversetzungen auf der Zwischenschicht aufwächst. Die doppelgradierten Zwischenschichten scheinen laut den TEM-Aufnahmen zunächst genauso zu funktionieren, wie reine LT-AlN Zwischenschichten.

Um die genaue Funktionsweise der doppelgradierten AlGaN Zwischenschichten zu verstehen, wird das Modell in Abb. 4.22 zu Hilfe gezogen, welches aufbauend auf den detaillierten Röntgenuntersuchungen entwickelt wurde. Die Zwischenschicht ist dabei durch alle eingezeichneten Al-Atome (rot) gekennzeichnet. Die doppelgradierte Schicht besteht aus zwei Spannungsanteilen. Der untere AlGaN Gradient relaxiert mit zunehmender Dicke und nimmt nach oben hin mit zunehmenden Al-Gehalt eine kleinere a-Gitterkonstante an.

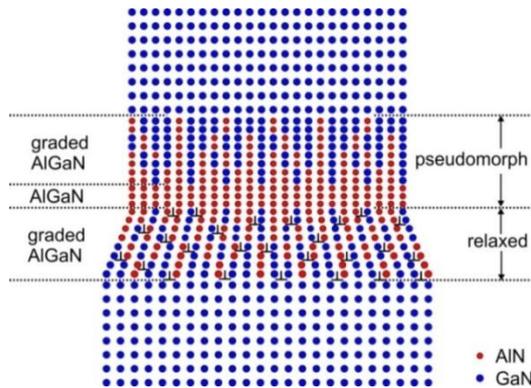


Abb. 4.22: Modell des partiellen Relaxierens. Die Zwischenschichten bestehen aus einem unteren AlGaN Schichtgradienten, welcher relaxiert und einem oberem Schichtsystem (AlGaN Kernschicht + oberer AlGaN Schichtgradient), welcher vollverspannt auf dem relaxierten Anteil wächst.

Die darauffolgende AlGaN Kernschicht und der obere Gradient wachsen pseudomorph zum unteren Gradienten und nehmen die a-Gitterkonstante der oberen Grenzfläche des unteren AlGaN-Gradienten an. Im relaxierten Zwischenschichtbereich entstehen die vielen Anpassungsversetzungen, die aufgrund des AlGaN Gradienten nicht in einer scharfen Grenzfläche liegen, sondern über die Höhe des gesamten unteren Schichtgradienten verteilt sind. Der darauffolgende pseudomorphe Anteil, besteht aus einer etwa 8 nm dünnen stark aluminiumhaltigen AlGaN Kernschicht und dem etwa 16 nm dicken oberen Gradienten. Die gesamte Zwischenschicht ist demzufolge nur partiell relaxiert. Die darauffolgende GaN Schicht wächst idealerweise pseudomorph zu der partiell relaxierten Zwischenschicht. Die TEM Aufnahmen zeigten zwar, dass das obere GaN leicht relaxiert, da an der AlGaN/GaN Grenzfläche einige wenige Anpassungsversetzungen auftauchen. Allerdings ist der Relaxationsgrad sehr gering

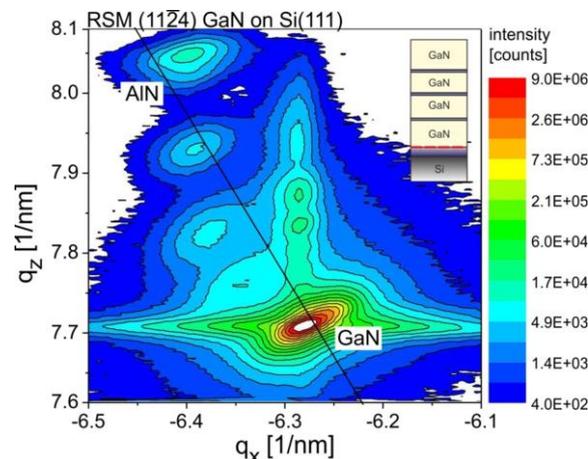


Abb. 4.23: Asymmetrischer RSM einer vollständigen GaN Template Struktur mit 3 doppelgradierten AlGaN Zwischenschichten. Diese Probe ist vom Probentyp b und wurde am asymmetrischen $(11\bar{2}4)$ GaN Reflex gemessen.

und die kompressiv vorspannende Funktion der partiell relaxierten Zwischenschichten vollständig gegeben. Dieser Mechanismus setzt sich für alle weiteren Zwischenschichten fort.

Bei der Betrachtung der reziproken Gitterkarte der GaN Templatestrukturen mit den doppelgradierten Zwischenschichten (Abb. 4.23) ist der Anteil der Zwischenschichten zwar deutlich von der restlichen Pufferstruktur separierbar, allerdings lässt sich die partielle Relaxation nicht anhand dieser durchgewachsenen Schichtstruktur nachweisen.

Das Signal, welches von den Zwischenschichten herührt, liegt auf der q_x -Position relativ zum GaN Reflex und ist zudem noch aufgrund der graduellen Al-Verteilung entlang q_z langgezogen. Weil die Gitterkarte das aufsummierte Signal aller Schichtanteile zeigt, lässt der RSM zunächst vermuten, dass AlGaN Gitter dieselbe basale Ordnung annimmt, wie die GaN Schichten.

Um die Spannungsanteile der doppelgradierten Zwischenschichten aus dem Röntgensignal zu separieren, wurde die Struktur mithilfe des Trockenätzverfahrens stückweise um jeweils eine GaN- und eine Zwischenschicht reduziert. Betrachtet man nun die asymmetrischen RSMs in Abb. 4.24, bleiben die Schwerpunkte der senkrechten pseudomorphen Reflexe mit abnehmender Zwischenschichtzahl bei einem festen q_x Wert von -6.31 nm^{-1} . Gleichzeitig schiebt und verschmälert sich das GaN Signal mit abnehmender Schichtenanzahl infolge der geringeren Beugungsintensität. Diese mit abnehmenden Schichtanteilen gemessenen RSMs zeigen deutlich, dass die AlGaN Zwischenschichten in jeder Position dieselbe partiell relaxierte AlGaN Gitterstruktur nach dem Modell in Abb. 4.22 annehmen, und das GaN auf jede Zwischenschicht pseudomorph aufwächst. Ein leichter q_x -Versatz der AlGaN-Zwischenschichtsignallage ist nach jedem tzschrift zu erkennen und ist eine Folge einer leicht veränderten Al-Konzentration im unteren Zwischenschichtgradienten. Durch die Al-Konzentration in der Kernschicht wird auch die Vorspannung des darauffolgenden GaN maßgeblich beeinflusst.

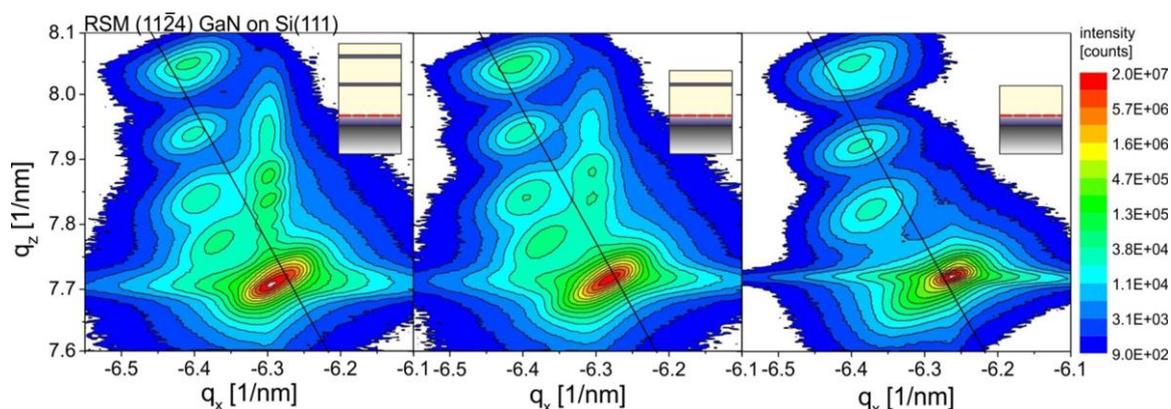


Abb. 4.24: Asymmetrischer RSM der GaN Templatestruktur mit (links) zwei und (mitte) nur einer doppelt gradierten AlGaN Zwischenschichten. Rechts besitzt die Struktur nur eine GaN Schicht und keine Zwischenschicht. Die Proben wurden am asymmetrischen $(11\bar{2}4)$ GaN Reflex gemessen.

Bei einem der Rückätzexperimente ätzte die gesamte GaN Templatestruktur soweit und anisotrop herunter, dass neben der unteren GaN Schicht auch noch wenige Stellen der Zwischenschicht erhalten blieben, wie es die FE-REM Bruchkantenbilder aus verschiedenen Fokustiefen in Abb. 4.25 (a) zeigen. Diese Probe ist beispielhaft, um die Entkopplung der ersten Zwischenschicht von der ersten GaN Schicht zu veranschaulichen. Denn das Signal der

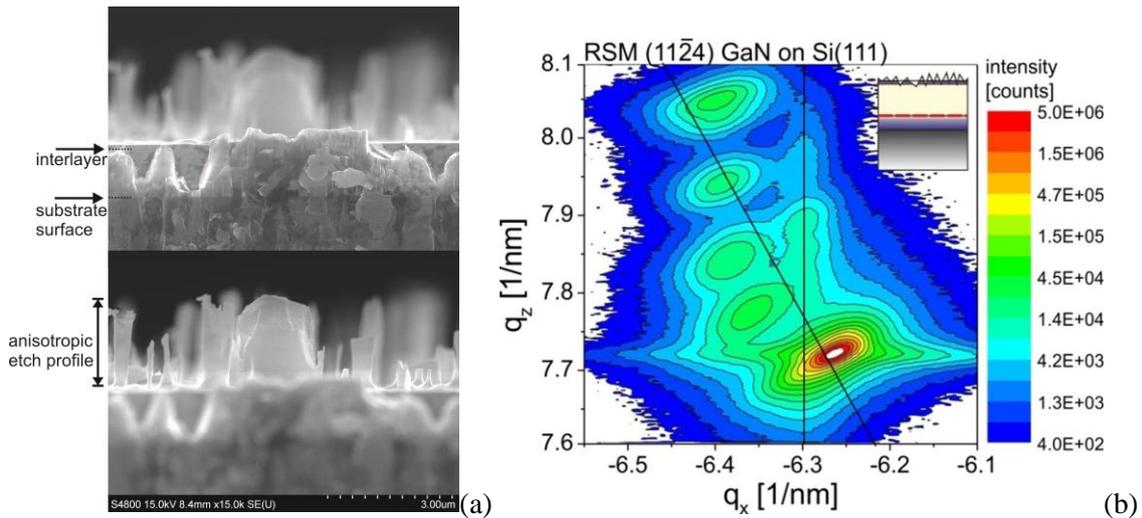


Abb. 4.25: (a) FE-REM Aufnahmen der anisotrop trockengetätzten Probe vom Probenotyp b, bei der nicht nur die erste GaN Schicht übriggeblieben ist, sondern auch einige Artefakte der doppelgradienten Zwischenschicht und (b) der dazugehörige asymmetrische RSM. Die senkrechte schwarze Linie markiert den Schwerpunkt des Zwischenschichtsignals, die Schemazeichnung zeigt den Strukturaufbau.

partiell erhaltenen Zwischenschichtfragmente liegt auf einer anderen q_x -Position als das darunterliegende GaN, welches folglich ein vom AlGaN abweichendes basales Gitter besitzt. Die senkrechte schwarze Linie markiert den Schwerpunkt des Zwischenschichtsignals, welches eindeutig nicht pseudomorph zum darunterliegenden GaN ist. Die a -Gitterkonstante der Zwischenschicht ist mit ca. 3.175 nm erheblich kleiner als das tensil verspannte GaN, dessen a -Gitterkonstante bei ~ 3.194 nm liegt.

Anhand des asymmetrischen RSMs an diesen Zwischenschichtfragmenten enthaltenen Struktur kann anschaulich das Modell der partiell relaxierten Zwischenschichten angewandt werden, siehe Abb. 4.26. Die einzelnen Anteile der doppelgradienten Zwischenschicht sind farblich den Reflexen im RSM zugeordnet. Es ist zu berücksichtigen, dass die Zuordnung der Reflexe vor allem die Zuordnung des relaxierten AlGaN Bereichs aufgrund der Überlagerung der Intensitäten aller Strukturanteile grob und nicht exakt ist.

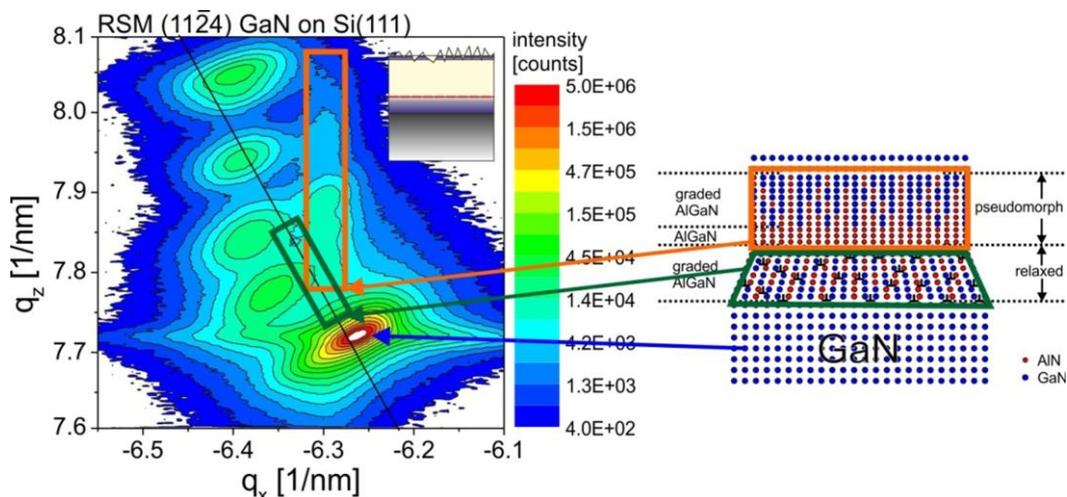


Abb. 4.26: Zuordnung der Teilbereiche (relaxiert und pseudomorph) der doppelgradienten Zwischenschicht zu den Intensitäten im asymmetrischen RSM der getätzten Probe vom Probenotyp b mit Zwischenschichtartefakten nach anisotropem Ätzen.

Um auszuschließen, dass durch das Ätzen der Struktur Relaxationseffekte der stark aufgerauten Oberfläche zu einem Verschieben der Intensitäten im RSM geführt haben, wird der symmetrische $\Theta/2\Theta$ -Scan am (0002) GaN Reflex zum RSM von der vollständigen Schichtstruktur hinzugezogen (Abb. 4.27). Im symmetrischen $\Theta/2\Theta$ -Scan wird die Aufspaltung des GaN Reflexes durch die kompressiv vorspannenden und entkoppelnden Zwischenschichten sichtbar. Da der asymmetrische RSM eine Kombinationsmessung der a und c-Gitterkonstanten ist, dagegen der hinzugezogene symmetrische $\omega/2\Theta$ -(0002)-Scan lediglich Informationen über die c-Gitterkonstanten der Struktur enthält, ist die Einordnung des $\omega/2\Theta$ -Scans nur zur Veranschaulichung.

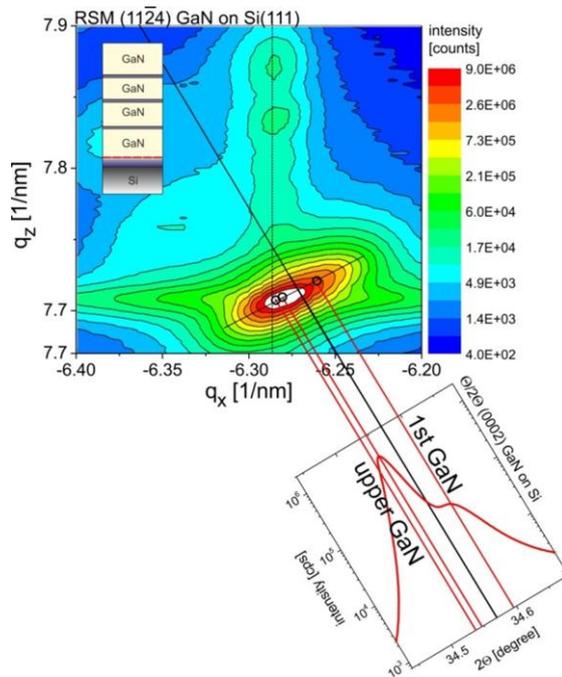


Abb. 4.27: Zuordnung der GaN Spannungsanteile aus dem symmetrischen Reflex zu den GaN Anteilen im asymmetrischen RSM der vollständigen GaN Template Struktur.

Ein senkrecht zur Relaxationsgeraden laufender Schnitt durch den intensiven GaN Reflex entspricht ungefähr der Spannungsverteilung in der symmetrischen Messung. Die eingezeichneten 2Θ -Positionen, die auf dieser Schnittgeraden liegen, bezeichnen die Maxima der verschiedenen Anteile im GaN Schichtstapel. Folgt man der gestrichelten senkrechten Linie, auf der die pseudomorphen Reflexe liegen, wird deutlich, dass der Reflex, der zum untersten GaN gehört (tensil verspannt), nicht auf einer Position mit dem Signal der Zwischenschichten liegt. Die Maxima der Reflexe aus den oberen GaN Schichten liegen nicht exakt, wie in dem oben beschriebenen Modell, auf der Linie des pseudomorphen Zwischenschichtsignals. Das liegt zum einen an der leichten Relaxation des aufwachsenden GaN (siehe TEM Aufnahme in Abb. 4.20) und zum anderen an der sich graduell mit der Schichtdicke

abbauenden kompressiven Verspannung. Weil die oberen GaN Schichten Si-dotiert sind, wird der Abbau der kompressiven Spannung noch verstärkt. Die genaue Analyse der einzelnen Verspannungszustände im gesamten GaN Schichtstapel und die Qualitätsentwicklung mithilfe optimierter Zwischenschichten werden im nächsten Abschnitt 4.3.3. detailliert behandelt.

Einfach gradierte LT-AlGaN Zwischenschichten

Die Proben vom Probenotyp a, die in dem Showerhead-Einzelwaferreaktor hergestellt wurden, besitzen ebenfalls einen AlGaN Gradienten in den Zwischenschichten, allerdings mit nur einem oberen Gradienten. Diese Zwischenschichten wurden ebenfalls mittels der TEM-Analyse charakterisiert, Abb. 4.28. Sowohl in der TEM z-Kontrastaufnahme der Zwischenschicht (Abb. 4.28 a) als auch in dem relativen Kompositionsprofil (Abb. 4.28 b) ist zu erkennen, dass der untere Übergang zur Zwischenschicht abrupt und der obere Übergang verschmiert ist bzw. die Aluminiumkonzentration nach oben hin kontinuierlich abnimmt. Dabei ist der obere Gradient mit nur 5-7 nm halb so dick, wie der des Probenotyps b.

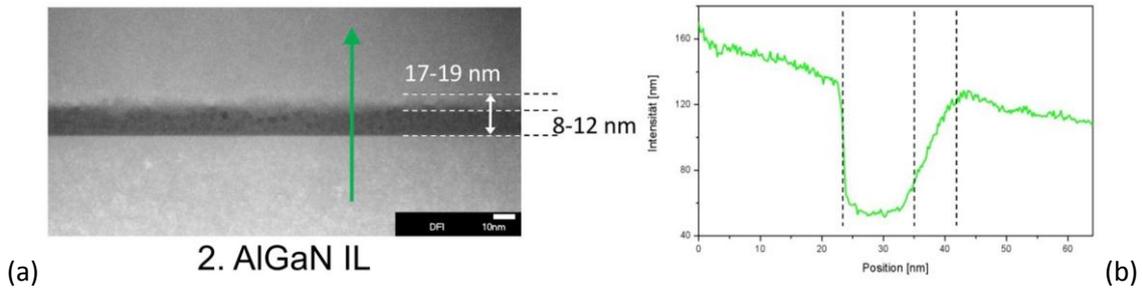


Abb. 4.28: TEM Aufnahme (z-Kontrast) der Zwischenschicht vom Probenotyp (a) mit dazugehörigem EDX-Lienscan (grüner Pfeil + Intensitätsprofil darunter) [IKZ10].

Die hochaufgelöste TEM Analyse ergab, dass die Zwischenschicht ab einer Dicke von 10 nm vom 2-D Wachstum zum 3-D Wachstum übergeht. Der obere Gradient ist folglich kein echter Gradient, sondern eine starke Rauigkeit der oberen Grenzfläche. An der unteren Grenzfläche entstehen Anpassungsversetzungen, die aufgrund des abrupten GaN/AlN Übergangs in einer Linie an der Grenzfläche liegen. Jedoch bildeten sich einige wenige Anpassungsversetzungen bereits vereinzelt im unteren GaN aufgrund erhöhter Spannungsfelder, die beim Wachsen der Zwischenschicht im unteren GaN entstehen (Abb. 4.29). Das Auftauchen vermehrter Anpassungsversetzungen im GaN kann außerdem ein Indiz dafür sein, dass die kritische GaN Schichtdicke bzw. tensile Schichtspannung erreicht ist, um eine kompressiv gegenwirkende Zwischenschicht einzufügen [Rag05].

Die Anzahl der Anpassungsversetzungen an der unteren Zwischenschichtgrenzfläche ist verglichen zu den doppelgradienten Zwischenschichten vom Probenotyp b gering. Auch an der oberen Grenzfläche tauchen nur vereinzelt Versetzungen auf und das darauffolgende GaN wächst kohärent weiter. Aus den $\omega/2\theta$ -Messungen wurde deutlich, dass die einfach gradierten LT-AlGaIn Zwischenschichten vom Probenotyp a vollverspannt sind und daher keine Entkopplung durch eine messbare Kompression auf das darauffolgende GaN ausüben. Die z-Kontrast Aufnahme über einen weiten Bereich zeigt eine Region der Zwischenschicht mit Anpassungsversetzungen an den Grenzflächen, aber auch eine Region, die weder an der oberen, noch an der untern Grenzfläche Versetzungen besitzt.

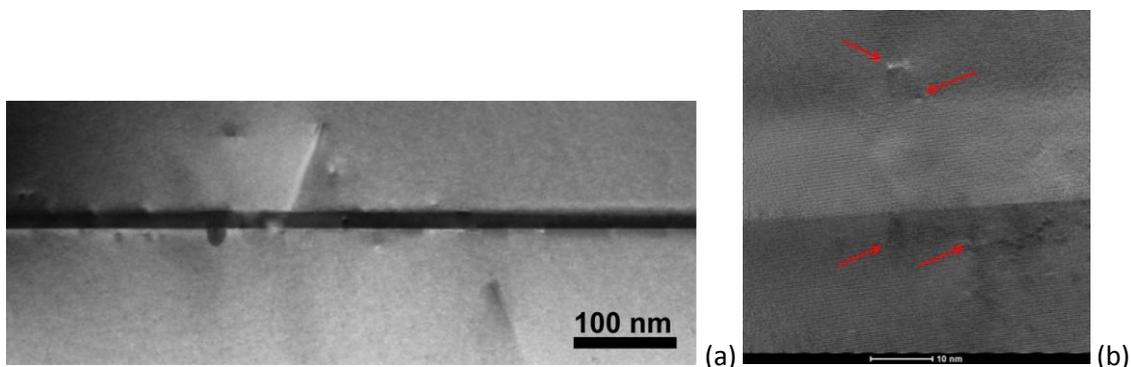


Abb. 4.29: z-Kontrast-Aufnahme (a) und HRTEM Aufnahme (b) der Probe vom Typ b mit oberem Zwischenschichtgradienten. Die roten Pfeile markieren Anpassungsversetzungen.

Im Vergleich der Zwischenschichten mit Einzelgradienten (Probenotyp a) und Doppelgradienten (Probenotyp b) in Abb. 4.30 zeigt sich, dass im RSM der Probe mit einfach gradierten Zwi-

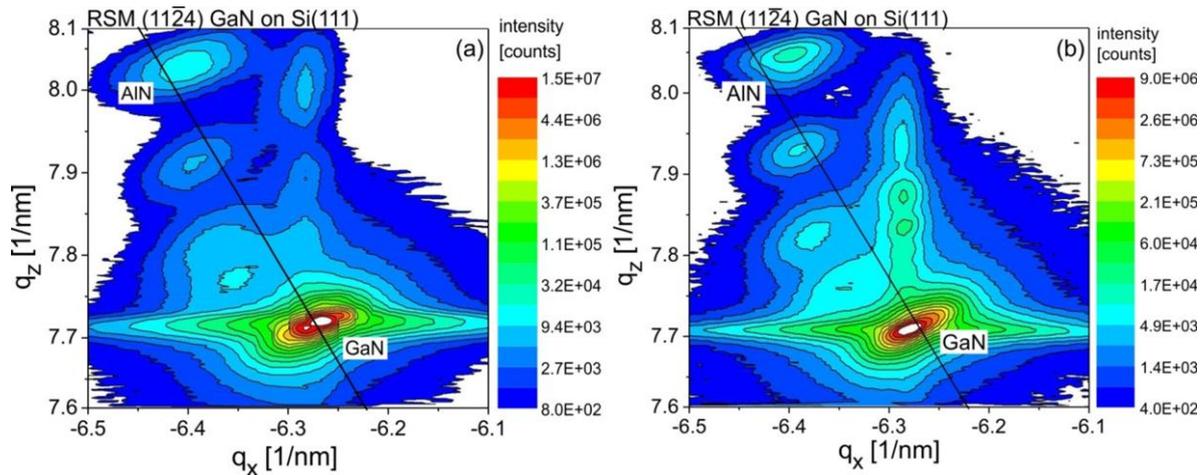


Abb. 4.30: Vergleich der asymmetrischen RSMs von den GaN Templatestrukturen mit (a) einfach gradierten AlGaIn Zwischenschichten vom Probentyp a und (b) mit doppelgradierten AlGaIn Zwischenschichten vom Probentyp b. Gemessen wurde am asymmetrischen $(11\bar{2}4)$ GaN Reflex.

schenschichten ebenfalls ein Signal auftaucht, welches sich an der q_x -Position des GaN befindet und von den Zwischenschichten herrührt. Betrachtet man die RSMs beider Zwischenschichttypen, wird aus beiden Signalverläufen deutlich, dass die beiden AlGaIn Zwischenschichten unterschiedliche Konzentrationen und Gradienten enthalten. Beim Probentyp a ist die Zwischenschicht deutlich aluminiumhaltiger als bei Probentyp b. Der Vergleich zeigt, dass der maximale Aluminiumgehalt der Zwischenschicht bei Probentyp a im Bereich von 95-100% liegt, was an dem hohen q_z -Wert des pseudomorphen Reflexes abzulesen ist. Der Al-GaN Gradient darüber besitzt im Vergleich zur Kernschicht ein nur schwach aluminiumhaltiges Konzentrationsgefälle, welches etwa zwischen 60-30% Al liegt. Die Zwischenschichten vom Probentyp b zeigen im RSM eine Kontinuität in der Aluminiumverteilung. Das längliche Signal über dem GaN ist nahezu gleichmäßig intensiv. Außerdem besitzen die Zwischenschichten vom Probentyp b kein reines AlN, denn auch die Kernschicht besteht aus AlGaIn. Aus den z-Kontrast-Profilen der TEM Aufnahmen ist bekannt, dass die Kernschicht den höchsten Aluminiumgehalt besitzt. Die Zwischenschicht-Reflexe mit höchstem q_z -Wert bzw. kleinster c-Gitterkonstante, welche dem AlGaIn mit höchstem Al-Gehalt zugeordnet werden kann, stimmen mit einer Konzentration von 65-70% überein.

Die RSMs zeigen zudem, dass der überwiegende GaN Schichtanteil der Templatestruktur mit einfachgradierten Zwischenschichten tensil verspannt ist (Probentyp a), dagegen ist die Struktur vom Probentyp b mit doppelgradierten Zwischenschichten kompressiv verspannt, was aus den TEM-Bruchkantenanalysen auch so zu erwarten war.

Die Wirkungsweise der einzelnen Zwischenschichten wird mithilfe der vertikalen Kathodolumineszenzmessungen an der Bruchkante beider Probentypen sichtbar (Abb. 4.31). Die vertikal laufende gestrichelte Linie markiert die Wellenlänge der D^0, X -Lumineszenz, bei der ein idealer, unverspannter GaN Kristall leuchten würde. Lumineszenz bei längeren Wellenlängen korreliert mit tensil verspanntem GaN, andersherum bedeutet GaN Lumineszenz bei kürzeren Wellenlängen einen kompressiven Verspannungszustand [Pas10]. Weil diese Methode mit ~ 60 nm lokal hochaufgelöst ist und die Lumineszenz empfindlich von den Einflüssen der Bruchkanteneffekte (Oberflächenrelaxation, Beschädigung) und der Si-Dotierung abhängt, ist hier im Wesentlichen der vertikale Verlauf und nicht die absolute Lage der Lumineszenz ent-

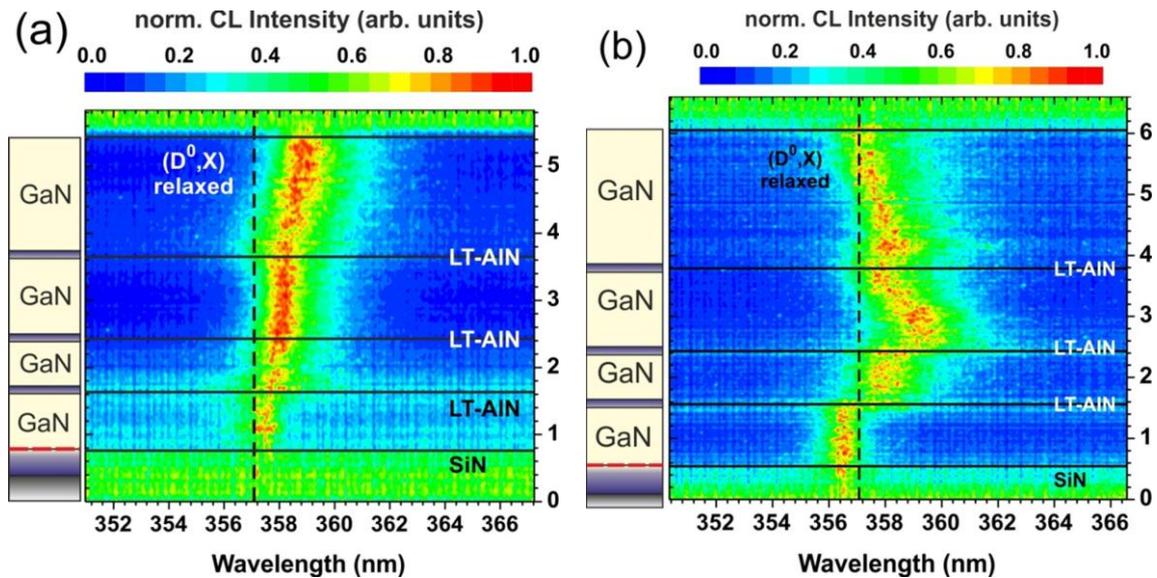


Abb. 4.31: Kathodolumineszenzmessung an der Bruchkante der Probestypen a (a) und b (b). Dargestellt ist der vertikale Spannungsverlauf des GaN im Bereich der bandkantennahen Lumineszenz vom GaN [Dem10]. In dem vertikalen Signalverlauf ist keine spannungsentkoppelnde Wirkung durch die einfachgradierten Zwischenschichten in Probestyp a zu erkennen. Dagegen belegt das Springen des KL-Signals bei Probestyp b eine deutlich Spannungsentkopplung durch die doppelgradierten Zwischenschichten.

scheidend [Mue13]. Auffällig ist bei Probestyp a mit einfach gradierten Zwischenschichten, dass keine Veränderung der Lumineszenzposition nach Einfügen einer Zwischenschicht zu beobachten ist. Die tensile Verspannung im GaN nimmt kontinuierliche mit der Schichtdicke zu. Demzufolge ist der GaN Stapel ohne oder nur mit geringer Beeinflussung bzw. Spannungsentkopplung durch die Zwischengewachsen gewachsen worden. Das Gegenteil ist bei Probestyp b der Fall, bei der nach jeder doppelgradierten Zwischenschicht die Wellenlänge der GaN Lumineszenz springt. In diesem vertikalen Lumineszenzprofil ist deutlich zu erkennen, dass jede einzelne Zwischenschicht eine stark entkoppelnde Wirkung hat. Aus der nach oben breiter werdenden Lumineszenz ist zudem der Einfluss der Si-Dotierung im zu erkennen. Die Lumineszenz im untersten, undotierten GaN weist die schmalste Linienbreite auf, während nach oben mit steigender Dotierung das Signal immer breiter wird. Besonders beim Probestyp a ist die Spektrenverbreiterung infolge der Si-Dotierung zu sehen.

Mit Hilfe dieser vertikalen KL-Bruchkantenanalyse klärt sich schließlich auf, dass die Zwischenschichten des Probestyps a mit einfachgradierten Zwischenschichten keine bzw. nicht messbare Funktion in der Spannungskompensation besitzen. Daraus lässt sich schließlich die Signalposition in dem entsprechenden RSM in Abb. 4.30 (a) erklären. Denn die einfachgradierten Zwischenschichten sind nahezu vollständig pseudomorph zu den jeweils darunterliegenden GaN Schichten gewachsen. Nur sehr wenige Anpassungsversetzungen waren an der oberen Zwischenschichtgrenze zu beobachten.

Mit Hilfe der umfassenden Röntgenanalysen zusammen mit den TEM und KL Ergebnissen konnte schließlich der signifikante Unterschied der beiden Zwischenschichttypen entschlüsselt werden. Die einfachgradierten Zwischenschichten vom Probestyp a sind nahezu vollverspannt auf dem darunterliegenden GaN gewachsen. Bezüglich der Spannung wächst der GaN Schichtstapel nahezu unbeeinflusst von den Zwischenschichten mit kontinuierlich zunehmender tensiler Verspannung auf. Der kompressive Spannungseinfluss dieser pseudomorphen

Zwischenschichten ist gering und führt bei einer Gesamtschichtdicke von ca. 4.4 μm gerade noch nicht zum Reißen, aber zu einer insgesamt tensilen Verspannung der Probe, was an der konkaven Waferkrümmung einer Profilmessung nachgewiesen wurde. Diese Zwischenschichten besitzen nur in geringem Maß die beabsichtigte Funktion der LT-AlN Zwischenschicht und führen zu keiner messbaren Entkopplung der einzelnen GaN Schichtanteile.

Die doppeltgradierten AlGaIn Zwischenschichten der Proben vom Typ b besitzen hingegen die erwartete Funktion der Spannungsentkopplung und spannen das darauffolgende GaN stark kompressiv vor. Allerdings relaxieren diese Zwischenschichten nicht vollständig, wie es bei den klassischen LT-AlN Schichten der Fall ist [Bla02, Rei03], sondern relaxieren partiell entlang des graduellen Zwischenschichtsystems, wie es in dem dazu entwickelten Modell in Abb. 4.22 sizziert ist. Nur der untere AlGaIn gradierte Zwischenschichtanteil und die Kernschicht relaxieren und nehmen mit zunehmendem Aluminiumgehalt eine kleinere basale Gitterkonstante an. Der darauffolgende obere Schichtanteil, bestehend aus einem oberen AlGaIn Gradienten, nimmt die basalen Gitterparameter des unteren Zwischenschichtteils vollständig an, ebenso wie das darauffolgende GaN. Der untere AlGaIn Gradient besitzt folglich die eigentliche spannungsentkoppelnde Funktion der Zwischenschicht, indem er durch das graduelle Relaxieren den darauffolgenden Schichten die basalen Gitterparameter vorgibt. Dabei wirkt die AlGaIn Kernschicht als stabilisierende Schicht, um die Gitterkonstante an der Grenzfläche des unteren AlGaIn Gradienten zur AlGaIn Kernschicht zu fixieren. Der obere AlGaIn Gradient spielt für den Spannungsaufbau und die Defektreduktion keine Rolle und ist in diesem System redundant. In den Gesprächen mit den Epitaktikern kam schließlich heraus, dass der obere Gradient tatsächlich unbeabsichtigt war und eine Folge von Ga Anlagerungen an die eventuell 3-D artige Keimschichtoberfläche sein könnte.

4.3.3. Einfluss der AlGaIn Zwischenschichtdicke

Wie die doppeltgradierten LT-AlGaIn Zwischenschichten kompressiv auf das darauffolgende GaN wirken, wurde im letzten Abschnitt ausführlich erklärt. Weiterhin hat die Dicke der Zwischenschicht einen entscheidenden Einfluss auf den Verspannungszustand der darauffolgenden GaN Schicht und zuletzt auf die Verspannung der gesamten Templatestruktur. Um den Einfluss der Zwischenschichtdicke zu untersuchen, wurden in den etwa 4.4 μm dicken GaN Stapel 3 der doppelgradierten Zwischenschichten gleicher Dicke gewachsen. Die Zwischenschichtdicke innerhalb der drei Proben wurde zwischen 16 nm, 20 nm und 28 nm variiert. Diese Dickenangaben beziehen sich auf die gesamte Dicke der AlGaIn Schicht, d.h. auf den unteren und obere Gradienten und die Kernschicht. Mit Hilfe von $\omega/2\theta$ Messungen im streifenden Einfall wurde die kompressive Restspannung der oberen GaN Deckschicht in Abhängigkeit von der Zwischenschichtdicke bestimmt, wie der Tabelle 4.1 zu entnehmen.

Tabelle 4.1: Dicken der Zwischenschichten und die Spannung der GaN Oberfläche vom GaN Schichtstapel berechnet aus Röntgen-GIID Messungen

	Dicke	σ_{GaN} (OF)
dünne Zwischenschichten	16 nm	-0,082 GPa
mittlere Zwischenschichten	20 nm	-0,429 GPa
dicke Zwischenschichten	28 nm	-0,515 GPa

Die Zunahme der kompressiven Verspannung im GaN mit dicker werdenden Zwischenschichten spiegelt sich direkt in den ex-situ Krümmungsprofilen wieder (Abb. 4.32). Bei geringen Zwischenschichtdicken ist die Krümmung konvex und besitzt nur eine geringe Durchbiegung von 24 μm . Mit zunehmender Zwischenschichtdicke wird die konvexe Krümmung stärker (Durchbiegung 54 μm). Allerdings übersteigen 28 nm eine kritische Zwischenschichtdicke, wodurch die während des Wachstums aufgebaute kompressive Spannung teilweise durch plastische Deformation des Si Substrates entlastet wird. Bei der plastischen Deformation des Substrates gleiten die Netzebenen im Si entlang der Gleitebenen, wodurch sich der Wafer asymmetrisch verformt. Das plastische Deformieren wird oberhalb einer bestimmten Spannung ausgelöst, begünstigt durch die hohe Wachstumstemperatur. Bei diesem Mechanismus wird hauptsächlich Spannung im Substrat abgebaut. Die Spannung in der Schicht bleibt erhalten, so dass der Wafer nach dem Abkühlen rissfrei bleibt. Allerdings ist die Verformung des Wafers stark sattelförmig mit einer Durchbiegung von 925 μm .

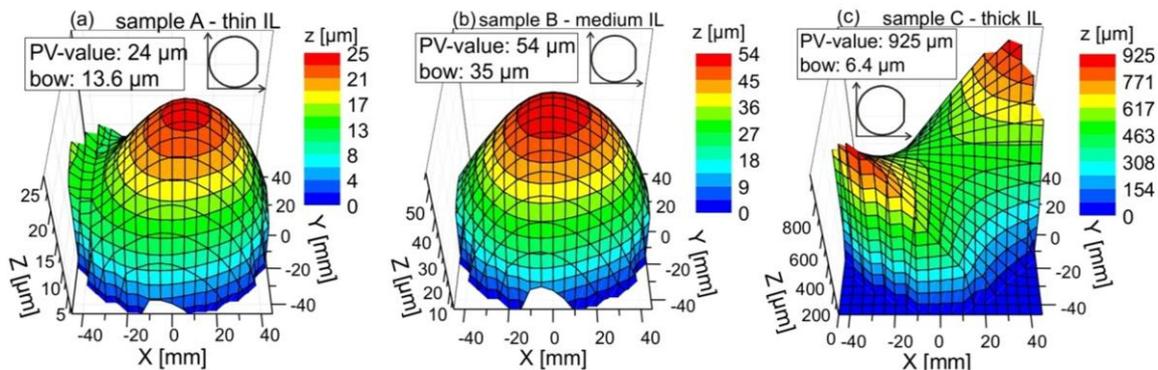


Abb. 4.32: 3-D Krümmungsprofile der GaN Templatestrukturen mit verschiedenen Zwischenschichtdicken. Die konvexe Krümmung nimmt mit der Zwischenschichtdicke zu. Die Probe mit den dicken Zwischenschichten ist sattelförmig nach plastischer Deformation.

Der zugehörige „Bow“, ein nach dem SEMI-Standard bestimmter Krümmungswert, ist mit nur 6.4 μm sehr klein verglichen zur Durchbiegung (Min-Max-Wert) und stellt für asymmetrische Krümmungsprofile keine zuverlässige Angabe dar. Speziell für die fotolithografische Weiterverarbeitung müssen geringe Bow-Werte eingehalten werden, welche für einen

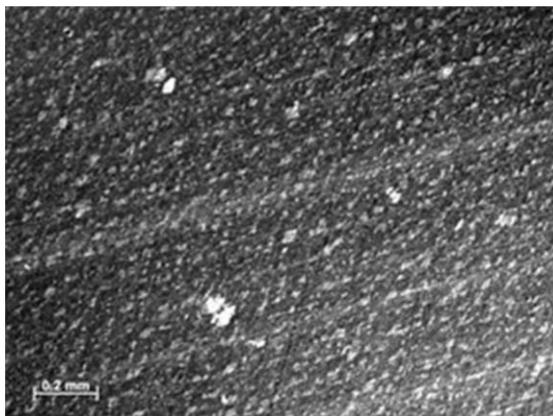


Abb. 4.33: Nomarski Mikroskopieaufnahme der plastisch deformierten Probe mit dicken Zwischenschichten. Streifen, charakteristische Merkmale der Verformung, sind durch das GaN auf der Si Oberfläche sichtbar.

100 mm Wafer bei etwa 30-60 μm Bow liegen [Oli07].

Die plastische Verformung bei der Probe mit dicken Zwischenschichten hinterlässt im Silizium feine Streifen entlang der Gleitebenen, die in der Nomarski Mikroskopie vorrangig in der Nähe des Flats sichtbar werden (Abb. 4.33).

Mithilfe der symmetrischen Röntgenmessung in der $\omega/2\theta$ Konfiguration lassen sich die Variationen der c-Gitterkonstanten direkt messen. Abhängig von dem gemessenen Winkelbereich lassen sich alle zur Oberfläche parallelen Netzebenen erfassen, so dass sowohl alle Kompositionen zwischen AlN

und GaN, als auch alle Verzerrungen dieser Gitter eingefangen werden. Allerdings stellt diese Messung eine Integration aller vorhandenen Netzebenen innerhalb der Schichtstruktur dar, so dass sich die Reflexe vom AlGaN Unterbau und den Zwischenschichten überlagern und nicht trennen lassen (Abb. 4.34). Die Fluktuation der AlGaN Anteile zwischen den Proben kann ihre Ursache in den verschiedenen Zwischenschichtdicken haben, aber auch eine Folge der starken Variation der AlGaN Komposition und Verspannung im Puffer sein.

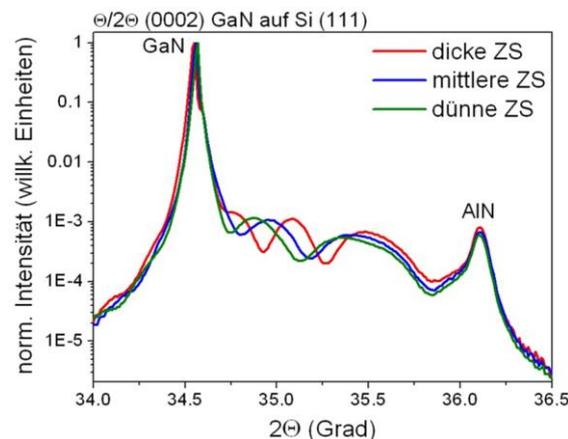


Abb. 4.34: Symmetrische $\omega/2\theta$ Messung am (0002) GaN Reflex der drei Proben mit verschiedenen dicken Zwischenschichten. Die AlGaN Signale aus dem Puffer und den Zwischenschichten sind überlagert und lassen sich nicht trennen.

Zur Trennung dieser sich überlagernden AlGaN Signale können die asymmetrischen reziproken Gitterkarten zu Hilfe genommen werden. Wird nur der entsprechende Bereich extrahiert, in dem die interessanten Reflexe (von den Zwischenschichten und dem AlGaN Puffer) auftauchen, und integriert diesen entlang q_x , so entsteht ebenfalls eine Verteilung aller c-Gitterkonstanten bzw. eine quasi-symmetrische Röntgenmessung (Abb. 4.35 rechts). Die Proben wurden sowohl bei den symmetrischen Röntgenmessungen als auch bei den RSMs im Waferzentrum gemessen. Alle drei Proben besitzen einen exakt gleichen AlGaN Puffer, denn die aufintegrierten Signale aus den RSMs liegen genau übereinander (Abb. 4.35 rechts unten). Folglich ist das Wachstum der AlGaN Pufferstruktur ein gut kontrollierter und reproduzierbarer Prozess. Dass die Aluminiumkomposition bzw. der Verspannungszustand des Puffers über den Wafer stark fluktuiert, zeigt Abb. 4.35 rechts oben. Das extrahierte

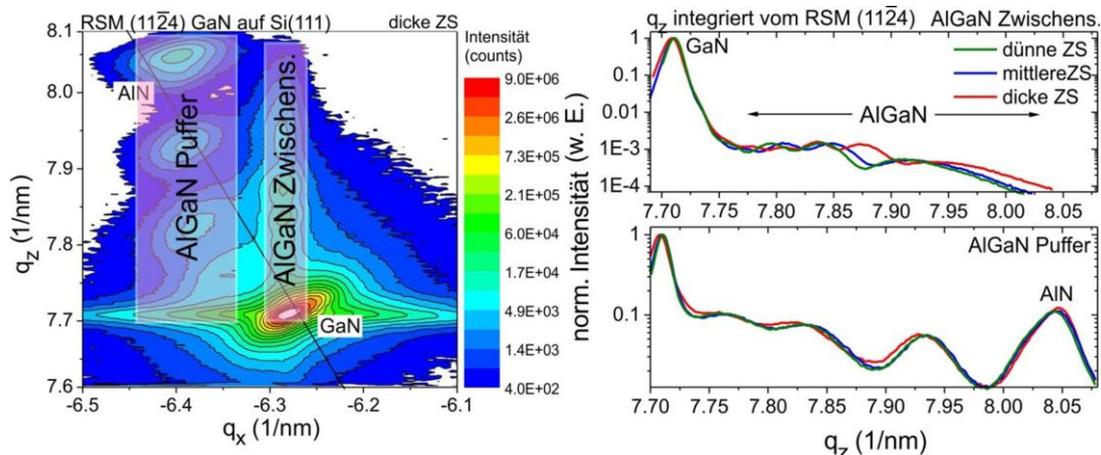


Abb. 4.35: Aus den asymmetrischen RSMs (links) extrahierte und aufintegrierte AlGaN Reflexe, die zum Puffer (rechts unten) oder zu den Zwischenschichten (rechts oben) gehören.

Zwischenschichtsignal schwankt bezüglich der AlGa_N Zusammensetzung in den Proben, was bei exakt gleichen Al-Kompositionen in den unterschiedlich dicken Schichten nicht zu erwarten wäre. Demnach besitzen die dünnen Zwischenschichten im Mittel weniger Aluminium, die dicken Schichten im Vergleich mehr. D.h. sie sind nicht nur mit unterschiedlicher Dicke gewachsen, sondern kompositionell ebenfalls etwas unterschiedlich, obwohl sie laut dem Epitaktiker identisch gewachsen wurden.

Den Einfluss dicker werdender Zwischenschichten auf die Entkopplung der einzelnen GaN Schichten und auf den Verspannungszustand des obersten GaN, zeigen die hochauflösenden $\omega/2\theta$ -Messung für den GaN (0002) Reflex in Abb. 4.36. Die oberste GaN Schicht ist zugleich auch die dickste Schicht ($\sim 2 \mu\text{m}$) im gesamten Stapel und dominiert in der symmetrischen Konfiguration die Intensität. Mit dünnen Zwischenschichten erreicht das oberste GaN eine nur leicht kompressive Verspannung, was mit der geringen konvexen Krümmung des gesamten Wafers einhergeht (vgl. Abb. 4.32) und mit den Spannungswerten aus Tabelle 4.1 übereinstimmt. Mit immer dicker werdenden Zwischenschichten, baut sich zunehmend mehr kompressive Spannung im GaN auf, erkennbar am Schieben der Intensitätsmaxima zu kleineren 2θ -Winkeln. Die zugehörigen Krümmungsmessungen belegen die hohe aufgebaute Verspannung anhand einer stärkeren Biegung mit dicker werdenden Zwischenschichten bis hin zur plastischen Deformation des Substrates bei Überschreiten einer kritischen Zwischenschichtdicke. Die Entkopplung der einzelnen GaN Schichten in mehrere Reflexanteile wird mit steigender Zwischenschichtdicke ausgeprägter. Zu beiden Seiten des Hauptreflexes tauchen deutliche Schultern auf. Die Schulter bei größeren 2θ -Werten rührt von dem tensil verspannten untersten GaN Schicht her. Bei allen drei Proben liegt dieser Reflex an derselben Stelle, d.h. die untere GaN Schicht ist bei allen 3 Proben identisch.

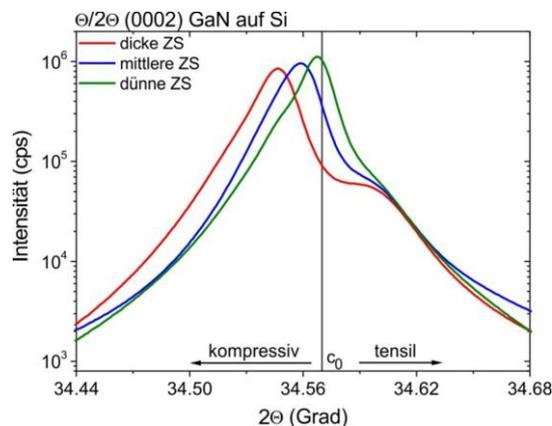


Abb. 4.36: Hochauflösender $\theta/2\theta$ -Scan in dem Winkelbereich, in dem nur der GaN Reflex der drei Proben mit verschieden dicken Zwischenschichten sichtbar ist. Die Entkopplung der GaN Schichtanteile wird in der Aufspaltung des GaN Reflexes in 3 Reflexanteile sichtbar.

Um die einzelnen Spannungsanteile des GaN Templates bestimmen zu können, wurde die Struktur schrittweise zurückgeätzt und schließlich mittels der Röntgendiffraktometrie ein vertikales Spannungsprofil bestimmt. Für die schichtselektiven Spannungswerte wurden die c -Gitterkonstanten aus den symmetrischen $\omega/2\theta$ Scans verwendet, siehe Abb. 4.37.

Die Abweichung der gemessenen c -Gitterkonstanten vom relaxierten Gitter gibt die Gitterverzerrung wieder. Ein c -planar gewachsener GaN Kristall ist in der Regel biaxial verzerrt. Das bedeutet, dass bei Dehnung oder Stauchung der a -Gitterkonstanten ebenso die c -Gitter-

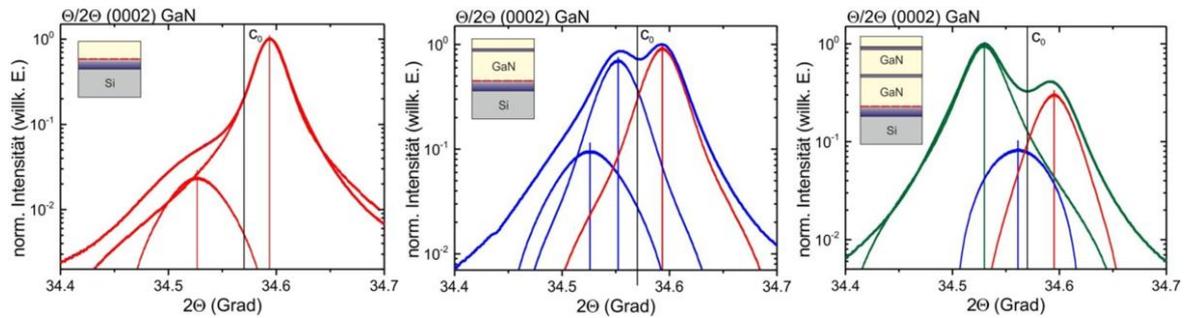


Abb. 4.37: $\Theta/2\Theta$ Messungen inklusive Simulationen an einer stufenweise geätzten Template Struktur. Die eingefügten Schemazeichnungen zeigen die verbliebene Struktur, wobei (links) die am meisten geätzte Struktur und (rechts) die am wenigsten geätzte Struktur abgebildet sind.

konstante in einem festen Verhältnis schrumpft oder ausdehnt. Dieses feste Verhältnis der c zu a -Gitterkonstanten wird Poissonrelation genannt, die durch die materialspezifische Poissonzahl ν festgelegt ist (siehe Grundlagen 2.1.3). Für die durchgeführten Berechnungen wurde eine Poissonzahl von $\nu = 0.2103$ angenommen [Pol96].

Nach jedem Trockenätzschritt wurde jeweils eine Zwischenschicht entfernt. Die am meisten geätzte Struktur besteht nur noch aus einer GaN Schicht (Abb. 4.37 links), die mittlere Struktur besteht aus 2 GaN Schichten (Abb. 4.37 mitte), die eine Zwischenschicht enthält, und die rechte Struktur besitzt 3 GaN Schichten und 2 Zwischenschichten (Abb. 4.37 rechts). Entsprechend der übriggebliebenen GaN Schichtanteile bestehen die dazugehörigen Simulationen aus der gleichen Anzahl an Verteilungen. Dadurch ist es möglich, die einzelnen Reflexpositionen der entsprechenden GaN Schichtlage zuzuordnen. Beginnend mit der am meisten geätzten und gleichzeitig simpelsten Struktur, wird deutlich, dass diese Schicht im Wesentlichen tensil verspannt ist, aber zusätzlich eine kompressive Schulter besitzt, die etwa 3% der Gesamtintensität ausmachen. Dieser kompressiv verspannte Anteil kommt möglicherweise aus dem Schichtanteil, der direkt auf dem vorspannenden AlGaN Puffer gewachsen ist. Dieser Anteil besitzt eine hohe Anzahl an Linienversetzungen, die zu einem großen Teil in den ersten 10 bis 100 nm annihilieren und dadurch einen Übergang vom kompressiven in den tensilen Spannungszustand bewirken [Rag05, Dad02, Can05, Rom03, Fol05]. Eine ausführliche TEM Analyse der Defektannihilation in verschiedenen GaN Wachstumsphasen liefern Moram et al. in Ref. [Mor09], allerdings auf Saphirsubstraten. Cantu et al. erweiterten diese Analyse und zeigten, dass nur Linienversetzungen mit a -Komponente (Stufen- und gemischte Versetzungen) am Relaxationsprozess beteiligt sind. Das Abknicken von Schraubenversetzungen wird in den nitridischen Schichten wegen der verminderten Anzahl kaum beobachtet. Aufbauend auf der Simulation der am Einfachschicht aus Abb. 4.37 links werden die die simulierten Verteilungen dieser unteren GaN Schicht für die Simulationen an der nächst dickeren Struktur aus Abb. 4.37 (mitte) festgehalten. Für eine einfache visuelle Zuordnung werden die festgehaltenen und übertragenen Verteilungen in der gleichen Farbe kodiert, wie in der Simulation zuvor. Anhand des zweiten ausgeprägten GaN Reflexes (blau), welcher bei einem niedrigeren 2Θ -Winkel auftaucht, wird deutlich, wie stark die erste Zwischenschicht das untere und obere GaN entkoppelt und das zweite GaN stark kompressiv verspannt. Auch hier ist ein weiterer verborgener Reflex auf der stark kompressiven Winkelseite zu erkennen. Dieser Reflex beinhaltet nicht nur den kompressiv verspannten GaN Anteil direkt über dem AlGaN Puffer, sondern zusätzlich den Anteil, der sich direkt über der Zwischenschicht befindet und noch stärker kompressiv vorgespannt ist, als das GaN im oberen Bereich der zweiten Schicht.

Weil diese zweite GaN Schicht mit $2.5 \cdot 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ schwach Si-dotiert ist, wird der Relaxationsmechanismus des kompressiv vorgespannten GaN noch zusätzlich verstärkt [Can03, Dad03, Dad04a]. Die schwach intensive, verborgene Verteilung gibt demzufolge den Spannungsgradienten entlang der Si-dotierten GaN Schicht wieder. In der Simulation der Messung vom dicksten GaN Stapels (Abb. 4.37 rechts) taucht eine weitere Verteilung (grün) auf, die verglichen zur darunterliegenden Schicht stärker kompressiv verspannt ist und den weiter vorspannenden Charakter der zweiten Zwischenschicht bestätigt, wie es auch die TEM Analyse zeigt.

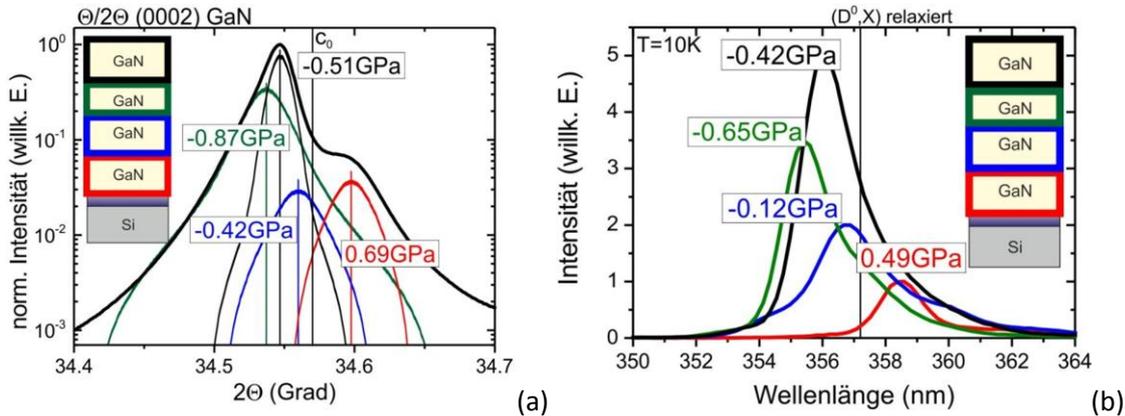


Abb. 4.38: $\omega/2\theta$ Scan mit vollständiger Simulation der gesamten GaN Templatestruktur mit drei doppelgradienten Zwischenschichten (links) und PL-Spektren von jeder stufenweise geätzten GaN Templatestruktur (rechts). Die einzelnen Verteilungen bzw. Spektren sind farblich den entsprechenden GaN Schichten des Gesamtstapels zugeordnet. Zusätzlich sind die Spannungswerte angegeben, die sich aus den Maxima der Verteilungen bzw. Spektren ergeben.

Mit Hilfe der vorangegangenen Simulationen bzw. Reflexzuordnung zur jeweiligen GaN Schicht im Schichtstapel, ist nun eine vollständige Simulation für die Messung der gesamten GaN Templatestruktur möglich (Abb. 4.38 a). Mithilfe der Gleichung (2.7) wurden die entsprechenden Verspannungswerte berechnet. Anhand dieser Spannungswerte wird verdeutlicht, welche enorme Druckverspannung durch die verhältnismäßig dünnen Zwischenschichten erzeugt wird. Die erste Zwischenschicht baut laut den Röntgendaten mit nur 28 nm Dicke eine Spannungsdifferenz von 1.11 GPa auf. Um die Röntgenergebnisse mit einer ebenfalls spannungssensitiven Methode zu vergleichen, wurden an den geätzten Strukturen Draufsicht Photolumineszenzmessungen (PL) bei tiefer Temperatur ($T = 10 \text{ K}$) durchgeführt (Abb. 4.38 b). Bei den daraus bestimmten Spannungswerten ist allerdings zu berücksichtigen, dass die GaN Oberfläche durch das Ätzen stark aufgeraut ist und die PL Messung möglicherweise dadurch beeinflusst ist. Die starke Oberflächenbeschädigung ist auch der Grund, warum für die Spannungsberechnung keine GIID-Messungen, die von einer glatten Oberflächenmorphologie abhängig sind, vorgenommen wurden. Die PL Messungen bestätigen qualitativ den durch die Röntgenanalyse bestimmten Spannungsverlauf, allerdings gibt es aufgrund genannter störender Einflüsse im qualitativen Vergleich leichte Abweichungen.

Da nun aus den schichtselektiven $\theta/2\theta$ -Messungen die Reflexlagen der verschiedenen Schichtanteile im GaN Template definiert sind, kann nun auch die Kristallqualität mit Hilfe von ω -Scans gemessen werden. Die ω -Halbwertsbreiten des symmetrischen und des in der Oberflächenebene liegenden (10-10) Reflexes enthalten Informationen über die GaN Kristal-

litgröße (laterale und vertikale Kohärenzlänge), die Verdrehung (Twist) und die Verkippung (Tilt) [Met98]. Aus den in höheren Beugungsordnungen gemessenen Halbwertsbreiten wurde der Einfluss der lateralen und vertikalen Kohärenzlängen bestimmt, der sich für alle drei Proben als vernachlässig herausstellte, da die Kristallitgröße (laterale Kohärenzlänge) größer als das Bestrahlungsvolumen war. Daraus folgt, dass die ω -Halbwertsbreiten direkt mit dem Twist und Tilt korrelieren.

Mit dicker werdenden Zwischenschichten zeigt sich eine gegenläufige Tendenz von Twist und Tilt (Abb. 4.39 a). Während der geringste Twist von 488 arcsec mit dem Einbau dicker Zwischenschichten erreicht wird, nimmt der Tilt zugleich den größten Wert mit 390 arcsec an. Andersherum gelingt der geringste Tilt (340 arcsec) mit dünnen Zwischenschichten, aber

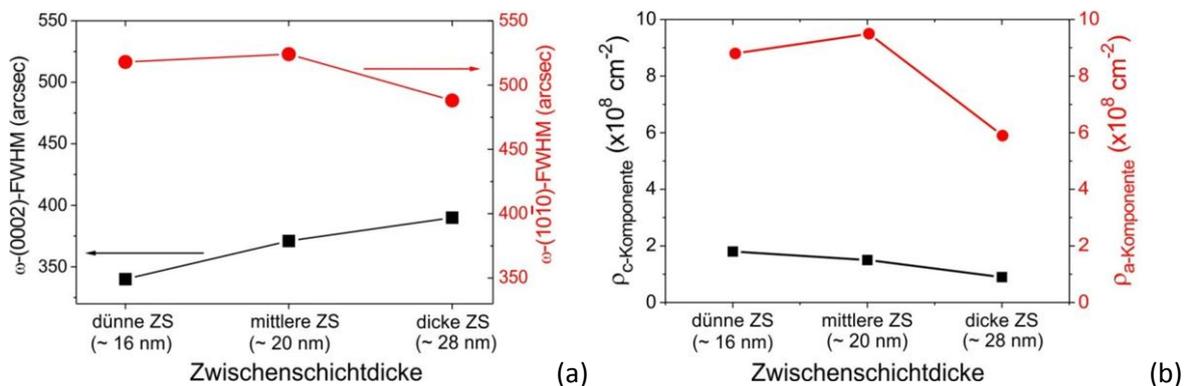


Abb. 4.39: ω -Halbwertsbreiten des symmetrischen (0002) Reflexes, die dem Tilt entspricht und des (10 $\bar{1}0$) Reflexes, die dem Twist entspricht (links) und Schrauben- und Stufenversetzungsdichten aus der Draufsicht TEM-Analyse (rechts) in Abhängigkeit von der AlGaIn Zwischenschichtdicke.

gleichzeitig steigt der Twist auf 520 arcsec. Betrachtet man nun den Twist als Maß für die Menge an Stufenversetzungen und ebenso den Tilt als Maß für die Schraubenversetzungsdichte, bedeutet dies, dass die Schraubenversetzungen mit dem Einbau dicker Zwischenschichten stärker reduziert werden, als mit dünnen Zwischenschichten. Dagegen werden die Stufenversetzungen stärker durch dünne Zwischenschichten unterdrückt, weniger dafür die Schraubenversetzungen. Von der statistischen TEM Analyse ist bekannt, dass 85% der Linienversetzungen eine reine a-Komponente besitzen. D.h. im oberen GaN dieser Schichten dominieren hauptsächlich die Stufenversetzungen. Die statistische Versetzungsanalyse ergab, dass die Probe mit den dünnen Zwischenschichten eine absolute Liniendefektdichte von $1.1 \cdot 10^9 \text{ cm}^{-2}$ besitzt, von denen $1.8 \cdot 10^8 \text{ cm}^{-2}$ Schraubenversetzung einnehmen. Mit dicken Zwischenschichten wird schließlich eine geringere absolute Versetzungsdichte von $6.8 \cdot 10^8 \text{ cm}^{-2}$ mit nur $9 \cdot 10^7 \text{ cm}^{-2}$ Schraubenversetzungen erzielt, was für GaN auf Si Strukturen einen hervorragenden Ausgangspunkt für das weitere Überwachsen mit der aktiven Schichtstruktur darstellt.

An der Probe mit den dünnen Zwischenschichten wurde eine Bruchkanten TEM Analyse mit verschiedenen Beugungsebenen angefertigt (Abb. 4.40). Die TEM Aufnahme (a) ist eine Kollage mehrerer nebeneinanderliegender Positionen, die in der (11 $\bar{2}0$) Beugungsebene gemessen wurden. Die Aufnahme (b) zeigt die gleichen Positionen gemessen in der (0004) Beugungsebene.

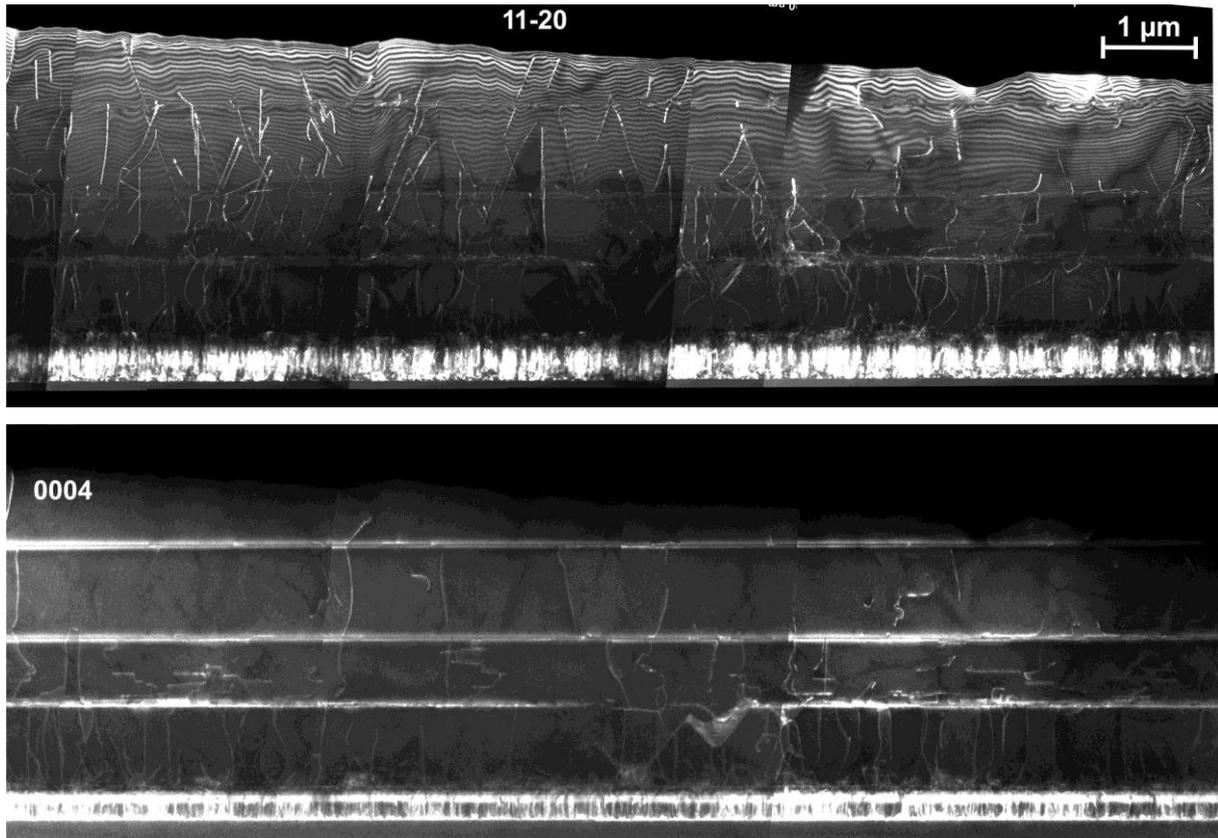


Abb. 4.40: Dunkelfeld Bruchkanten TEM Aufnahme der Probe mit 3 dünnen doppelgradienten Zwischenschichten [Mar11].

Die Beugungsbilder zeigen, dass durch den Einbau der Zwischenschichten die Versetzungslinien zu einem großen Teil gefiltert werden. Nach der zweiten Zwischenschicht tauchen kaum noch Kontraste von c-Typ Versetzungen auf. In der letzten Schicht sind sie vollständig eliminiert, wobei die dünne Präparatdicke nach oben hin berücksichtigt werden muss. Die Anzahl der Verletzungslinien mit a-Komponente überwiegt dagegen deutlich. Durch die Zwischenschichten werden auch die Versetzungen mit a-Komponente reduziert, allerdings werden die a-Typ Versetzungen nicht vollständig ausgelöscht. Anhand der abknickenden Versetzungen mit a-Komponente wird der kompressiv vorspannende und entkoppelnde Charakter der Zwischenschichten auf die darauffolgenden GaN Schichten besonders deutlich. Die erste Zwischenschicht besitzt bereits eine hohe kompressiv vorspannende Wirkung, die zweite Schicht baut eine noch stärkere Druckspannung auf, was an der zusätzlichen Neigung der bereits abknickenden Linienversetzungen sichtbar ist. Die letzte Schicht besitzt nur noch eine schwache spannungskompensierende Funktion, aber eine stark defektreduzierende. Nach den bisherigen Röntgenergebnissen wird mit dicker werdenden Zwischenschichten mehr kompressive Spannung in der Struktur aufgebaut. Die TEM Resultate belegen das Abknicken der a-Typ Versetzungen mit dem Einbau kompressiver Spannung. Das Modell nach Romanov und Speck, nach dem eine höhere Druckverspannung einen größeren Abknickwinkel der Linienversetzungen mit a-Komponente bewirkt [Rom03], findet hier Anwendung.

Bei dem Vergleich von ω -Halbwertsbreiten mit der Defektzählung aus der TEM-Analyse tritt eine Diskrepanz auf. Die Zunahme des Tilts mit dickeren Zwischenschichten aus Abb. 4.39

(a) steht im Widerspruch zu den Defektdichten der TEM-Auswertungen aus Abb. 4.39 (b). Es ist dabei zu berücksichtigen, dass der Tilt ein integriertes Signal über den gesamten GaN Schichtstapel ist und die Entwicklung der GaN Qualität mit entsprechender Gewichtung der Schichtdicke und Tiefe wiedergibt. Innerhalb der Struktur können die Versetzungen mit c -Komponente durch die Zwischenschichten gefiltert oder erzeugt werden, was allerdings aus der Summeninformation nicht trennbar ist. Die Entwicklung des Tilts mit der Zwischenschichtdicke gibt lediglich den Trend der Kristallqualität der Gesamtstruktur an. In diesem Fall trägt die oberste GaN Schicht, weil sie die dickste Schicht ist, maßgeblich zum Tilt bei. Im Gegensatz zu den Tiltmessungen sind die Twistmessungen sehr oberflächensensitiv und nur über wenige Nanometer Tiefe integriert. Gemessen wird bei der Geometrie im streifenden Einfall am kritischen Winkel der Totalreflexion, bei dem der einfallende und monochromatische Strahl mit einer geringen dynamischen, materialspezifischen Tiefe in die Probenoberfläche eindringt, aber gleichzeitig durch den flachen Einfallswinkel einen großen Bereich der Probenoberfläche beleuchtet. Deswegen enthalten die Twistwerte ausschließlich Informationen über die Versetzungen mit a -Komponente in den obersten Nanometern der GaN-Deckschicht und stimmen zweifelsfrei mit den TEM-Daten überein.

Eine mögliche Erklärung für die Diskrepanz zwischen Röntgen und TEM könnte die durch die Zwischenschichten induzierte kompressive Verspannung im darauffolgenden GaN sein. Nach dem Modell von Romanov und Speck knicken sowohl a -Typ als auch $(a+c)$ -Typ Versetzungen bei Änderung der Kristallspannung ab [Rom03]. Das Abknicken der a -Typ Versetzungen beeinflusst die Prismenfläche des Wurtzitkristalls bzw. den Streuvektor der in c -Richtung zeigt und trägt zur Verbreiterung der symmetrischen ω -(0002)-Halbwertsbreite bei. Verändert sich durch die eingebaute kompressive Spannung der Abknickwinkel der gemischten Versetzungen, verändert sich das Verhältnis der a - und c -Komponenten des Burgers-Vektors und gleichermaßen der Beitrag zum Twist und Tilt. Mit kleiner werdender a -Burgers-Vektorkomponente nimmt folglich der Twist ab, gleichzeitig steigt mit zunehmender c -Burgers-Vektorkomponente der Tilt. Das Abknicken gemischter Versetzungen erklärt demnach gleichermaßen die Reduktion der Defekte mit a -Komponente und das Ansteigen der Defekte mit c -Komponente, was die Diskrepanz zwischen den ω -(0002)-Halbwertsbreiten und den TEM Daten aufklärt.

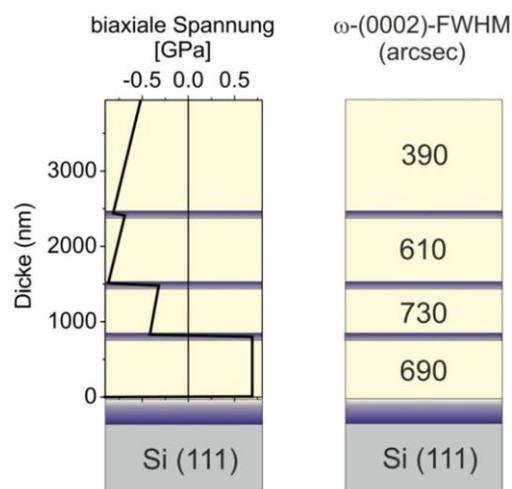


Abb. 4.41: Vertikales Spannungsprofil (links) und Qualitätsentwicklung bestimmt anhand der ω -(0002)-Halbwertsbreite der GaN Templatestruktur mit dicken doppelgradierten Zwischenschichten.

Mit den Spannungswerten der 4 unterschiedlichen und ausgeprägten GaN Verteilungen aus Abb. 4.38 wurde ein vertikales Spannungsprofil entlang der Schicht berechnet (Abb. 4.41). Dem Spannungsverlauf wurde ein einfaches Modell zugrunde gelegt, in dem die graduelle Relaxation als linear angenommen wurde. Zusätzlich wurde in jedem Trockenätzstadium die ω -(0002)-Halbwertsbreite gemessen, so dass neben dem Spannungsverlauf auch die strukturelle Qualitätsentwicklung dargestellt werden kann (Abb. 4.41 rechts). Aus dieser Gegenüberstellung geht hervor, dass jede Zwischenschicht in dem GaN Schichtstapel eine individuelle Funktion besitzt, abhängig von der Position im Schichtstapel. Die unterste Zwischenschicht baut eine hohe kompressive Verspannung von insgesamt 1.11 GPa auf, bewirkt aber keine Verbesserung der kristallinen Qualität. Die zweite Zwischenschicht baut weitere 0.45 GPa kompressive Verspannung auf, verbessert aber gleichzeitig die Kristallqualität um 120 arcsec. Die letzte Zwischenschicht baut kaum weitere kompressive Spannung auf, hat dagegen einen essentiellen Einfluss auf die ω -Halbwertsbreite und verbessert den GaN Tilt schließlich um 36%, was eine drastischen Reduktion von Schraubenversetzungen bedeutet. Das Filtern von Schraubenversetzungen wurde auch in der TEM-Aufnahme in Abb. 4.40 bestätigt, in der die oberste GaN Schicht keine c-Typ Versetzungen im (0004) Beugungscontrast mehr zeigt. Diese vertikale Spannungs- und Qualitätsanalyse verdeutlicht, dass jede einzelne Zwischenschicht innerhalb der Struktur separat bezüglich ihrer Aufgabe zur Spannungskompensation und Defektreduktion optimiert ist.

Abschließend ist zu sagen, dass mit Hilfe der Dickenoptimierung der doppelgradierter Zwischenschichten eine finale Defektdichte von $6.8 \cdot 10^8 \text{ cm}^{-3}$ mit einer minimalen Anzahl von 3 Zwischenschichten erzielt werden konnte.

4.3.4. Einfluss der Al-Komposition

In dem Kapitel zuvor wurde detailliert beschrieben, welchen Einfluss die AlGaN Zwischenschichtdicke auf die Gesamtspannung und die Linienversetzungen in der GaN Template Struktur hat. Welchen Einfluss nun eine schwankende Aluminiumkonzentration in den Zwischenschichten auf das darauffolgende GaN besitzt, wird nun in diesem Abschnitt erläutert.

Um der hohen thermischen tensilen Verspannung entgegenzuwirken, die während des Abkühlprozesses im GaN auf Si aufgebaut wird, müssen die eingebauten Zwischenschichten eine entsprechend hohe kompressive Spannung im darauffolgenden GaN aufbauen. Die Genauigkeit der zunehmenden Aluminiumkomposition des unteren Zwischenschichtgradienten bestimmt die basalen Gitterkonstanten der nachfolgenden GaN Schicht. Wird die abschließende AlGaN Komposition des unteren Gradienten nicht exakt erreicht, werden sowohl die Kompression des GaN als auch die Defektreduktion vermindert.

Im Randbereich sind die Spannungsfelder aufgrund der Wachstumsinhomogenitäten am endenden Kristall sehr hoch und fördern die Rissbildung. Eine zu geringe Druckspannung erhöht zusätzlich die Wahrscheinlichkeit des Reißens. In Abb. 4.42 (a) sind die positionsabhängigen symmetrischen $\omega/2\theta$ -Messungen einer GaN Struktur mit 3 identischen doppelgradierten Zwischenschichten dargestellt. In der Wafermitte sind die Aluminiumkonzentrationen gezielt gelungen und die Entkopplung der einzelnen GaN Schichten durch eine ausgeprägte Reflexaufspaltung des Röntgensignals erkennbar. Weiter zum Waferrand hin nimmt die Aluminiumkonzentration in den Zwischenschichten ab, was zu einer geringeren kompressiven

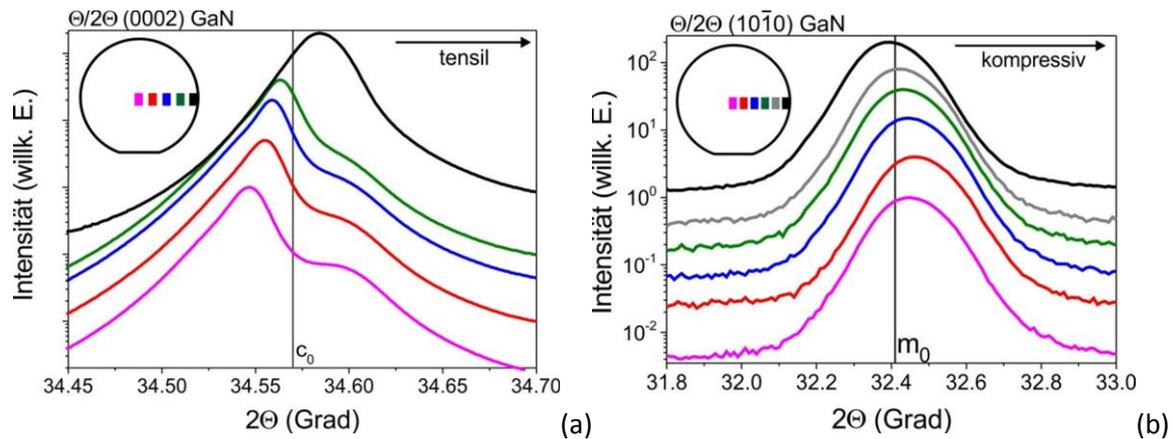


Abb. 4.42: $\Theta/2\Theta$ Röntgenmessungen am (0002)GaN Reflex gemessen von der Mitte zum Rand einer GaN Template Struktur mit drei doppelgradienten Zwischenschichten.

Vorspannung des GaN führt, wie an der geringeren Reflexaufspaltung und der weniger kompressiven Restspannung des obersten (intensivsten) GaN Signals zu erkennen ist. Dies wird auch im Verlauf der oberflächennahen basalen Gitterkonstanten aus den $\omega/2\Theta$ Messungen im streifenden Einfall bestätigt (Abb. 4.42 b). Unmittelbar am Waferrand fehlt die Kompression von den Zwischenschichten vollständig. Das GaN ist zugverspannt und eine Aufspaltung nicht mehr vorhanden. In der Wafermitte beträgt die Spannung vom oberen GaN -0.52 GPa, welche schrittweise zum Rand bis zu -0.13 GPa abnimmt und schließlich unmittelbar am Rand auf +0.26 GPa umschlägt.

Vom Waferzentrum und dem Waferrand wurden Bruchkanten TEM-Aufnahmen angefertigt, die analog zu den Röntgenmessungen eine geringere Kompression der aluminiumschwächeren Zwischenschichten auf das GaN im Randbereich zeigen (Abb. 4.43). Noch deutlicher wird allerdings, dass die Defektreduktion der Linienversetzungen im Randbereich schwächer ausfällt, als im Zentrum. Während im Waferzentrum die Linienversetzungen mit a-Komponente (im $1\bar{1}00$ -Beugungscontrast) und c-Komponente (im 0002-Beugungscontrast) nach der ersten Zwischenschicht wesentlich reduziert und die Versetzungen mit Schraubenan-

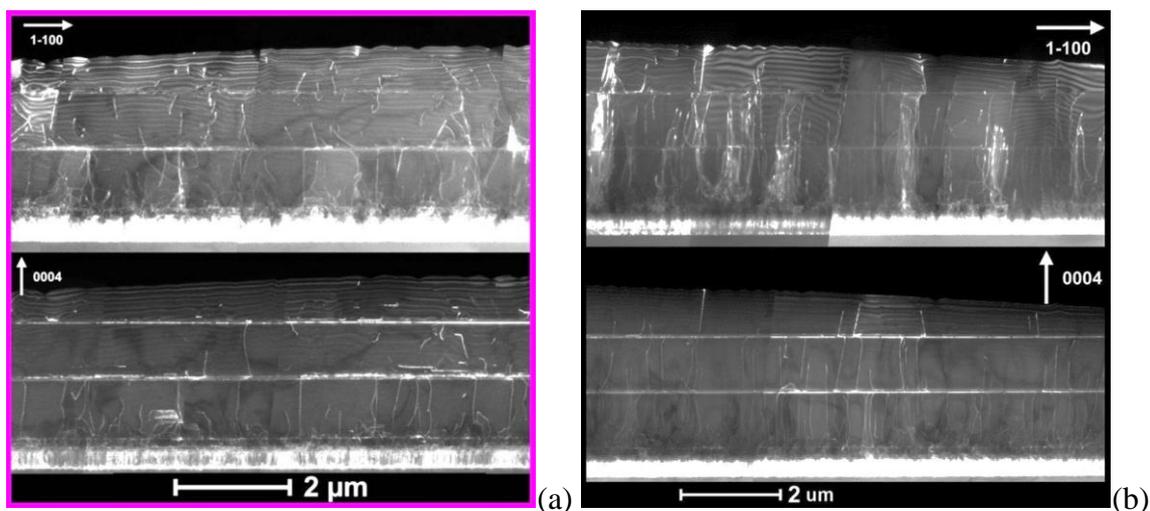


Abb. 4.43: Dunkelfeld Bruchkanten TEM Aufnahmen an den ($1\bar{1}00$) und (0002) Beugungsebenen von der Wafermitte mit höherem Al-Gehalt in den Zwischenschichten (links, magentafarbener Rahmen) und vom Waferrand mit geringerem Al-Gehalt (rechts, schwarzer Rahmen) der GaN Templatestruktur mit insgesamt drei Zwischenschichten.

teil nach der zweiten Zwischenschicht nahezu vollständig eliminiert sind, verlieren die aluminiumschwächeren Zwischenschichten im Waferrandbereich die Filterwirkung und ein Großteil der Linienversetzungen setzen sich in der nächsten GaN Schicht fort.

Bei den Linienversetzungen handelt es sich vornehmlich um gemischte Versetzungen, die sowohl einen Schrauben- als auch einen Stufenversetzungsanteil besitzen. Gemischte Versetzungen sind deshalb in beiden Beugungskontrasten ($1\bar{1}00$) und (0002) sichtbar. Das Modell in Abb. 4.44 (a) verdeutlicht, wie sich die Filterwirkung der Zwischenschichten mit geringerem Aluminiumgehalt reduziert. Bei einem hohen Al-Gehalt im Gradienten der Zwischenschicht (Abb. 4.44 b) wird starke kompressive Spannung aufgebaut, die zum Abknicken der Versetzungen führt. Mit höherer Spannung, werden die Versetzungslinien stärker geneigt und annihilieren mit Versetzungen, die einen entgegengesetzten Burgers-Vektor besitzen [Rom03, Con02, Mor09].

Verringert sich der Aluminiumgehalt in der Zwischenschicht, wird weniger Spannung aufgebaut und der Neigungswinkel der Versetzungen ist geringer. Die Spannung reicht nicht aus, um das Abknicken und Annihilieren der Versetzungen herbeizuführen und die Versetzungen laufen in der nächsten GaN Schicht weiter.

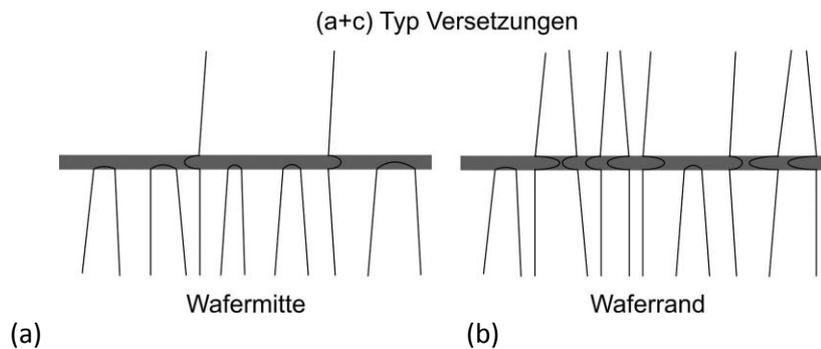


Abb. 4.44: Abknicken und Annihilieren der gemischten Linienversetzungen ((a+c)-Typ) bei hohem Al-Gehalt (links) und mit geringem Al-Gehalt (rechts) in der Zwischenschicht.

Um dieses Modell und die Bruchkanten TEM Messungen zu belegen, wurden positionsabhängige ω -Scans entlang des Wafers durchgeführt. Mit geringerem Aluminiumgehalt in den Zwischenschichten nehmen die Versetzungen mit c-Komponente ab, was an dem sinkenden Tilt in Abb. 4.45 (a) beobachtbar ist. Direkt am Rand steigt der Tilt abrupt an und weist auf

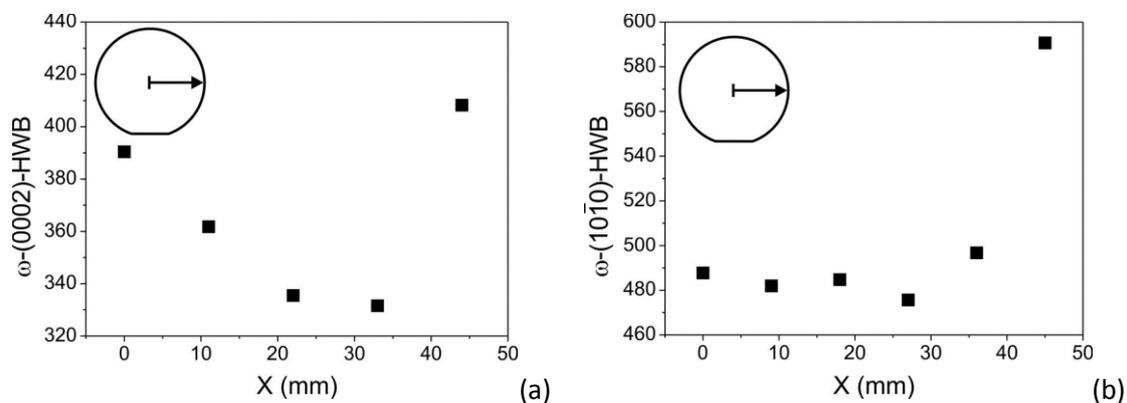


Abb. 4.45: Positionsabhängige ω -Halbwertsbreiten am symmetrischen (0002) Reflex (links) und am (10 $\bar{1}$ 0) Reflex im streifenden Einfall an einer GaN Template Struktur mit 3 doppelgradienten Zwischenschichten.

die erhöhte c-Typ Versetzungsdichte hin. Die Versetzungen mit a-Komponente hingegen bleiben im inneren Waferbereich nahezu konstant (Abb. 4.45 (b)). Erst am Rand steigt der Twist und somit die Zahl der a-Typ Versetzungen stark an, was im Einklang mit den $\omega/2\theta$ Messungen aus Abb. 4.42 ist. Da unmittelbar am Rand der Spannungszustand der GaN Struktur zum tensilen umschlägt, steigt dort gleichzeitig die Zahl der Versetzungen stark an, was die zugehörigen Tilt- und Twistwerte belegen. Da Zwischenschichten am Rand sprunghaft einen erheblichen Anteil an Aluminium verlieren, ist die entkoppelnde und defektfilternde Wirkung aufgehoben. Gerade für die gleichmäßige und vollflächige Effizienz einer auf der Templatestruktur gewachsenen Multiquantumwell (MQW) Struktur ist die Homogenität der Pufferstruktur und somit die Konstanz der Aluminiumgehalte in den Zwischenschichten ein notwendiges Kriterium. Die unmittelbaren Randbereiche werden in der Weiterverarbeitung nicht berücksichtigt. Der prozessierbare Waferkern dagegen muss eine strikte Homogenität der strukturellen Eigenschaften aufweisen. Schon kleinste Schwankungen in der Aluminiumkonzentration können starke Auswirkungen auf den Spannungszustand und die Defektdichte des GaN und somit auf die kritische Rissdicke der Struktur aufweisen, weshalb es diese Schwankungen zu minimieren gilt.

4.4. Homogenitätsuntersuchungen

Für immer größer werdende Waferdurchmesser erhöht sich die Anzahl der Bauteile bei gleichbleibenden Prozesskosten. Allerdings nur dann, wenn die gewachsene Struktur über den gesamten Wafer die gleichbleibenden Eigenschaften zeigt. Die Homogenität der Kristallqualität, Dicke, Verspannung und optischen Eigenschaften sind essentiell für die Verwendbarkeit des vollständigen Wafers in der Halbleiterindustrie. Im Folgenden werden verschiedene Methoden vorgestellt, wie die Homogenität bezüglich verschiedener Eigenschaften untersucht werden kann.

Die beiden Probenotypen a und b wurden in unterschiedlichen vertikalen MOCVD-Reaktortypen hergestellt. Der jeweilig verwendete Reaktor hat dabei einen wesentlichen Einfluss auf die Waferhomogenität. Bei dem Showerheadreaktor für Probenotyp a strömt das Gas vertikal nach unten und dann seitwärts über den rotierenden Wafer zum Gasauslass. Der Abstand zwischen Gaseinlass und Suszeptor ist mit ca. 17 cm gering, weshalb es zu kaum Vorreaktionen gibt und zum anderen wenig Turbulenzen. In dem eingesetzten Planetenreaktor für den Probenotyp b ist der Abstand zwischen Gaseinlass und Suszeptor sehr groß, so dass die einströmenden Gase nicht gleichmäßig verteilt, sondern in Segmenten eingelassen werden. Die Gase werden durch die hohe Rotation des Suszeptors nach unten gezogen, verwirbeln spiralförmig auf der Oberfläche und strömen schließlich seitlich weg. Um die starken Turbulenzen einzudämmen, die ein gleichmäßiges Wachstum verhindern, werden durch geeignete, programmgestützte Parameterwahl, wie Gasmenge, Rotationsgeschwindigkeit und Druck die Strömungen kontrolliert.

Die Fotografien in Abb. 4.46 zeigen, dass durch die beiden verschiedenen Reaktortypen auch wesentliche Unterschiede im Wachstumsprozess und somit in den Schichtdicken vorliegen, was an den unterschiedlich verteilten Schichtdickeninterferenzen sichtbar wird. Im Showerheadreaktor von Probenotyp a bilden sich durch die Rotation des Wafers um die eigene Achsenmitte radialsymmetrische Interferenzmuster aus (Abb. 4.46 a). Im Multiwafer-

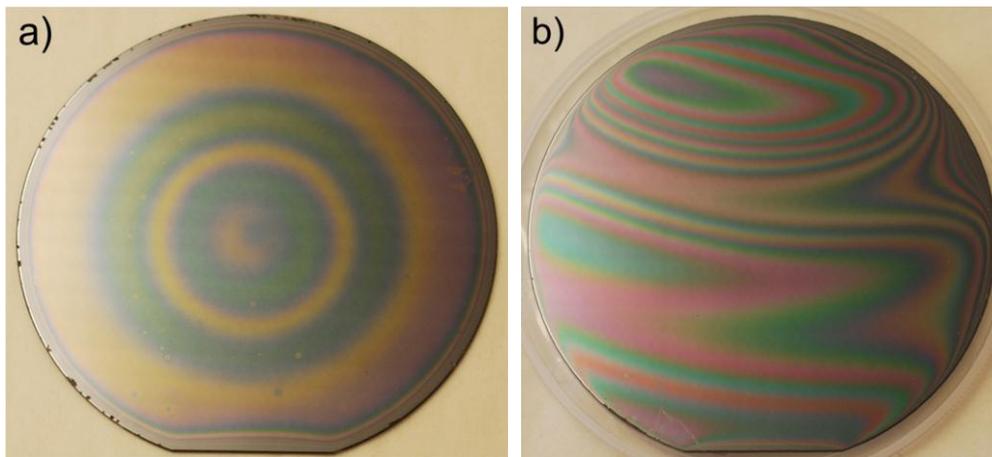


Abb. 4.46: Fotografie der Waferoberfläche des Probenotyps a (a) und der des Probenotyps b (b) auf 100 mm Si Wafers.

Planetenreaktor dagegen drehen sich insgesamt 6 Wafer während des Wachstumsprozesses um die Suszeptorachse. Es entsteht ein bestimmter anlagentypischer Gasfluss über den Wafern, der zu einer unregelmäßigen Schichtdicke führt, sichtbar an einem streifigen Interferenzmuster (Abb. 4.46 b). Im Wesentlichen sind die Schichtdickenschwankungen eine Abbildung der Gasverteilung über den Wafer während des Wachstums.

Auffällig ist, dass das Krümmungsverhalten der Wafer mit den Interferenzmustern korreliert, die sich aufgrund der Schichtdickenschwankungen an der Oberfläche zeigen (vgl. Abb. 4.47). Die Probe (a) besitzt ein konkaves und symmetrisches Krümmungsprofil, was mit den konzentrischen Interferenzringen in der Fotografie übereinstimmt. Die absolute Durchbiegung (Peak-to-Valley-value) liegt bei $20.47\ \mu\text{m}$, was für einen 100 mm Wafer einem Krümmungsradius von 61 m entspricht. Der nach dem SEMI-Standard definierte Bow beträgt $13.5\ \mu\text{m}$ (Abb. 4.47 a). Im Krümmungsprofil der Probe (b) stimmt das Minimum gegenüber dem Flat mit den verdichteten Interferenzstreifen überein. In der Nähe des Flats laufen die Interferenzstreifen auseinander, was im Krümmungsprofil als Maximum sichtbar ist (Abb. 4.47 b). Die Durchbiegung beträgt hier lediglich $11.34\ \mu\text{m}$, bei einem Bow von nur $8.85\ \mu\text{m}$. Für eine fo-

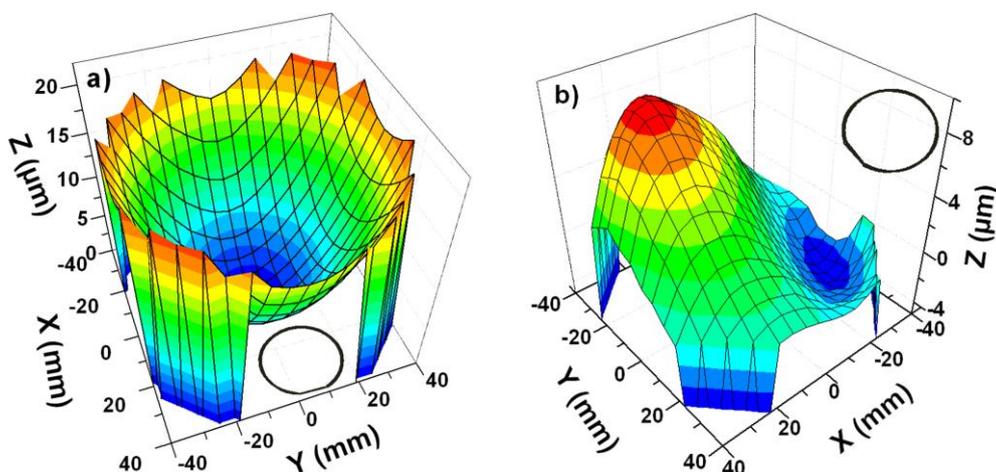


Abb. 4.47: Krümmungsprofil vom Probenotyp a mit einer Durchbiegung von $20.47\ \mu\text{m}$ und einem Krümmungsradius von 61 m (a), sowie vom Probenotyp b mit einer Durchbiegung von $11.34\ \mu\text{m}$, aber keinen eindeutigen Krümmungsradius aufgrund des asymmetrischen Profils (b).

tolithografische Weiterverarbeitung der Wafer ist die Krümmung ein wichtiges Maß für die Prozessierbarkeit. Wafer mit zu kleinen Krümmungsradien bzw. zu großer Durchbiegung würden in der Kontakt-Fotolithografie unscharfe Strukturen mit weichen Kanten bedeuten. In der Chipherstellung mittels Kontaktolithografie darf deshalb abhängig von den individuellen Gerätespezifikationen ein kritischer Krümmungswert von ca. $30\ \mu\text{m}$ für $100\ \text{mm}$ Wafer nicht überschritten werden.

Eine ortsabhängige Darstellung der Oberflächenbeschaffenheit (Rauigkeit, Twist und Krümmung) wird durch die röntgenographische Topographiemessung im streifenden Ein- und Ausfall gewonnen. Dabei wird zunächst auf den $(10\bar{1}0)$ Beugungsreflexes mit maximaler Intensität justiert und anschließend bei diesen festgelegten Bedingungen gemessen. Die vollflächige Information erhält man über die ortsempfindliche Detektion mit dem Flächendetektor, indem der Wafer schrittweise abgerastert wird. Genauere Details zur Röntgenanlage und zum Messverfahren im streifenden Einfall sind in Kapitel 2.3.2 erläutert.

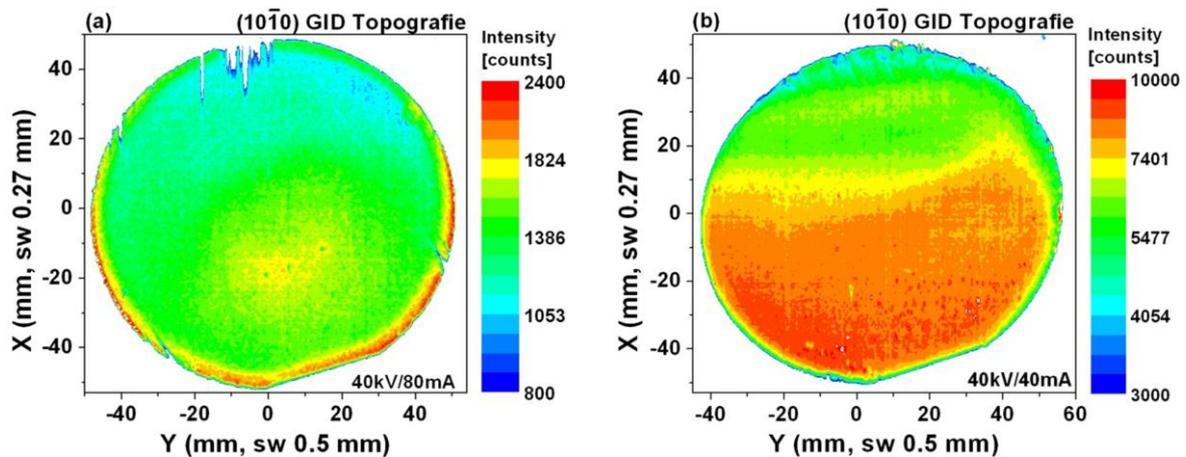


Abb. 4.48: Röntgentopografiemessung an den $(10\bar{1}0)$ GaN Netzebenen vom Probenotyp a (a) und vom Probenotyp (b).

Der Vergleich beider Röntgentopografiemessungen der Probe a mit einfach gradierten Zwischenschichten und der Probe b mit doppelgradierten Zwischenschichten in Abb. 4.48 zeigen einen Intensitätsverlauf, der den Krümmungsmessungen (Abb. 4.47) und den Fotografien (Abb. 4.46) ähnlich ist. Aufgrund des streifenden Einfalls des Primärstrahls gegenüber dem Flat entstehen entsprechend der Krümmung schattige Bereiche und intensiv bestrahlte Bereiche. Der charakteristische Intensitätsverlauf ist bei beiden Proben hauptsächlich von der individuellen Krümmung dominiert, was zusätzlich durch ω -Maps im streifenden Einfall geprüft wurde, siehe Abb. 4.50 Fehler! Verweisquelle konnte nicht gefunden werden.

Im oberen Rand der Topografiemessung Abb. 4.48 (a) behindern Risse am Rand das Beugungssignal. Die Risse sind in der Fotografie aufgrund der Lichtverhältnisse nicht zu erkennen. Bei der Probe vom Typ b liegen die $[10\bar{1}0]$ Ebenen nicht exakt parallel zu den $[\bar{1}012]$ Ebenen des Si Substrates, wodurch das Waferabbild in der Topografiemessung leicht ins ovale verzerrt wird [Dad07a].

Für eine vollflächige Twistmessung zur Homogenitätsanalyse der GaN Kristallitverdrehung wird der einfallende Strahl derart auf den Wafer projiziert, dass dieser die Mitte des Wafer

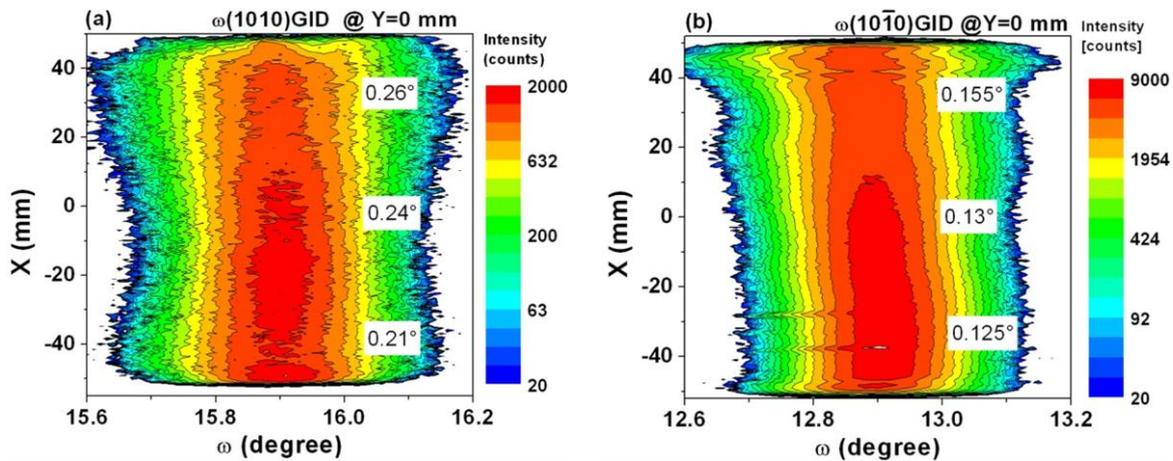


Abb. 4.50: Ortsabhängige ω -Scans (ω -Map) entlang des Wafers vom Probenotyp a (a) und vom Probenotyp b (b).

komplett überstrahlt und somit die maximale Länge des Wafers erfasst, (Details zu den Topografiemessungen sind Ref. [Kro09] zu entnehmen.)

Der Wafer rotiert bei dieser Messung schrittweise um einen kleinen Winkelbereich $\Delta\omega \pm 0.3^\circ$. Der Flächendetektor detektiert das gebeugte Signal ortssensitiv, so dass zu jeder Position x ein ω -Scan entsteht. Die Wafer wurden zwischen den Topografiemessungen und den ω -Maps nicht bewegt, so dass die Positionen $Y=0$ bei beiden Messungen exakt übereinstimmen. Bei näherer Betrachtung der ω -Maps in Abb. 4.50 gibt es einen Zusammenhang zum Intensitätsverlauf der Topografien. Die intensitätsschwachen Bereiche der Topografiemessung tauchen im ω -Map mit schwächerer Intensität und breiterer Verteilung (größerem Twist) auf. Demzufolge wird die Röntgentopografie zum Teil auch von dem Verlauf der Kristallqualität, in diesem Fall des Twists, entlang des Wafers bestimmt. Die Gegenüberstellung des Twistverlaufs beider Proben zeigt, dass Probe a einen deutlich schlechteren Twist und somit eine schlechtere Kristallqualität besitzt als Probe b. Das erklärt auch die verminderte Intensität von Probe a in der Topografiemessung. Eine genaue Messung ergab für Probe a eine ω -(10 $\bar{1}$ 0)-Halbwertsbreite von 666 arcsec und 372 arcsec für Probe b.

Ein Gegenbeispiel zu den beiden bisherigen Proben, deren Intensitätsverlauf in der Röntgentopografie maßgeblich von der Krümmung beeinflusst ist, stellt eine weitere Probe (c) vom

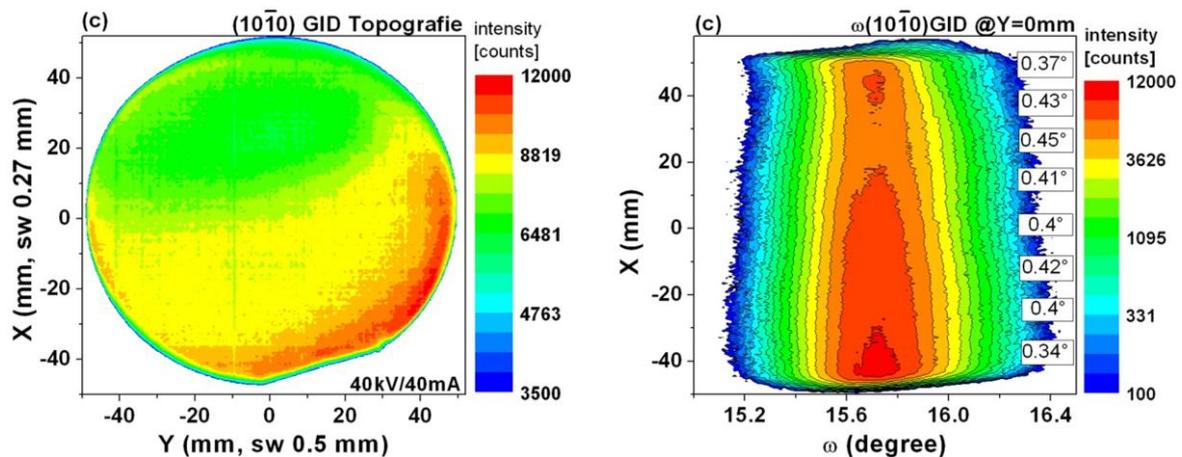


Abb. 4.49: Röntgentopographiemessung (links) und ortsabhängige ω -Scans (rechts) an den (10 $\bar{1}$ 0) GaN Netzebenen der Probe c vom Probenotyp b.

Probentyp b dar (Abb. 4.49). Dieser Wafer besitzt eine nahezu symmetrische Krümmung mit einem Min-Max-Wert von $7\ \mu\text{m}$, was im Bereich der nativen Krümmung des Substrates liegt. Die zugehörigen ortsabhängigen ω -Messungen im streifenden Einfall (ω -Map) belegen, dass der für ein symmetrisches Krümmungsprofil untypische Intensitätsverlauf in diesem Fall vom Twist dominiert wird. Bei dieser Probe ist die Krümmung zwar optimal, allerdings der Twist sehr schlecht. Diese Probe besitzt die gleichen anlagentypischen Interferenzmuster, wie Probe (b) in Abb. 4.46, und zeigt dieselbe Korrelation zur Topografiemessung.

Die Reaktorgeometrie hat folglich einen Einfluss auf die Qualitätsverteilung. In Abschnitt 4.3.4 wurde bereits gezeigt, dass eine homogene Temperaturverteilung einen maßgeblichen Einfluss auf die Komposition der AlGaIn Zwischenschichten, welche die Qualität der darauffolgenden GaN Schicht bestimmt. Ist der Wafer während des Wachstums stark gekrümmt, ist keine homogene Temperaturverteilung mehr gewährleistet, genauso wenig wie ein gleichmäßiges Zwischenschichtwachstum mit vollflächig konstanter GaN Qualität.

Bei einem flachen Wafer während des Wachstums wird zwar eine gleichmäßige Qualitätsverteilung garantiert, dagegen ist die Krümmung nach dem Abkühlen aufgrund der hohen thermischen Fehlanpassung von GaN und Si groß und führt im Zweifel zum Reißen der Schicht. Gerade für das InGaIn/GaN MQW Wachstum, ist die homogene Temperaturverteilung entscheidend für den gleichmäßigen Indiumeinbau und somit für die Lage der LED Emissionswellenlänge. Ein Abstand von weniger als $100\ \mu\text{m}$ (Wafer - Suszeptor) bedeutet schon eine Temperaturabweichung von etwa $10\ \text{K}$ [Kro05, Dad04a], wobei eine Temperaturvariation von nur $+1\ \text{K}$ schon eine Wellenlängenverschiebung von $-1.5\ \text{nm}$ ausmacht. Aufgrund dessen konzentrieren sich MOCVD-Reaktorhersteller auf die voneinander entkoppelte Einstellung der einzelnen Heizzonen, um bei gekrümmten Wafern eine gleichmäßige Temperaturverteilung zu erzielen [Sch10].

Die Röntgentopografie im streifenden Ein- und Ausfall ist eine mögliche Methode die Oberflächenqualität des Wafers routiniert in einem Zeitfenster von ca. 8 h zu untersuchen. Um die einzelnen Einflüsse auf den Intensitätsverlauf klären zu können, muss zusätzlich der ortabhängige Twist (ω -Map) gemessen werden (zusätzlich ca. 3 h). So lässt sich mit einem

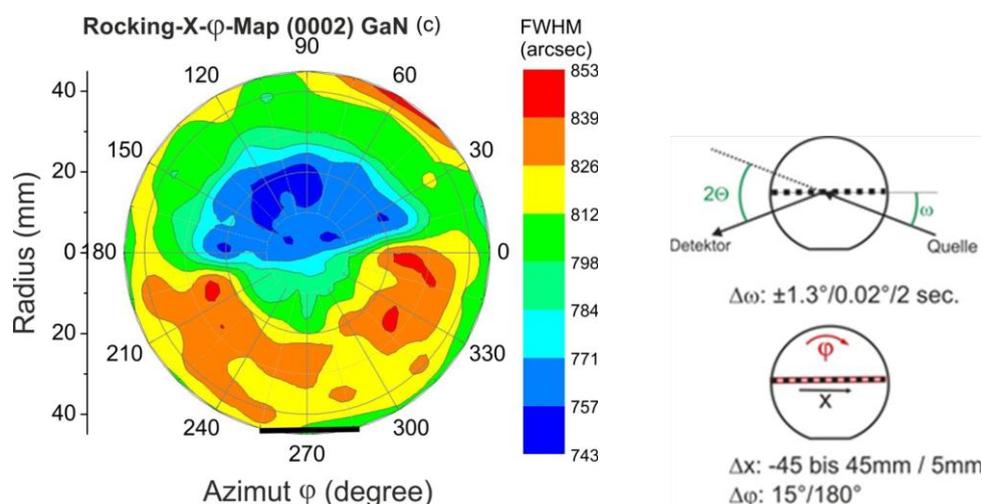


Abb. 4.51: Röntgentopografie der vertikal integrierten strukturellen Eigenschaften. Aufgetragen sind die ortsabhängigen Halbwertsbreiten, die am (0002) GaN Reflex gemessen wurden. Die Abbildung rechts zeigt das Prozedere, nach dem die Probe schrittweise gemessen wurde.

vergleichsweise geringen Zeitaufwand von 12 h die Homogenität der Oberflächenqualität über den gesamten Wafer ermitteln. Für einen 150 mm Wafer läge der Zeitaufwand bei insgesamt 15 h (ω -Map bleibt konstant bei 3 h), d.h. bei einem Faktor 1.25 mehr, obwohl die Waferfläche 2.25 mal größer als die eines 100 mm Wafers ist. Mit weiter steigenden Waferdurchmessern können somit Homogenitätsmessungen mit geringem Zeitaufwand, aber hoher Informationsdichte, praktiziert werden.

Bei der Homogenitätsanalyse sind nicht nur die Oberflächeneigenschaften von Interesse. Für die Untersuchung der Homogenität des vertikalen Strukturaufbaus ist ein Rocking-X-Phi-Map als weitere Topografiemessung geeignet, Abb. 4.51. Eine Rockingkurvenhalbwidthe enthält sowohl Informationen über die Kristallverkipfung (Tilt) und Kristallitgröße (vertikale Kohärenzlänge) also auch über die Verteilung verschiedener Netzebenenabstände, die sich aus Verspannungs- und Kompositionsvariationen ergeben. An verschiedenen Positionen X kombiniert mit einer schrittweisen Rotation des Wafers ergibt sich ein vollflächiger Gang der vertikalen Struktur. Auch hier gibt es wieder eine Korrelation des Intensitätsverlaufes mit dem anlagentypischen Interferenzmuster. Der Bereich, in dem die verdichteten Interferenzstreifen liegen, ist hier ein Bereich ähnlicher Größe und Lage, in dem die Halbwertsbreite schmäler ist. Eine schmalere Rockingkurvenhalbwidthe bedeutet entweder eine bessere Kristallqualität (Tilt) bei konstanter vertikaler Netzebenenverteilung, eine Zunahme der Netzebenenverteilung, z.B. der vertikalen Verspannung, bei gleichbleibendem Tilt, oder eine Kombination aus beidem. Eine Entkopplung beider Einflüsse bedarf weiterer Messungen. Daher ist diese Methode ausschließlich für eine schnelle Homogenitätsanalyse der vertikalen Struktur geeignet. Sie stellt eine Ergänzung zur Röntgentopographiemessung im streifenden Einfall dar.

Analog zur Röntgentopografie im streifenden Einfall, bei welcher die verschiedenen Einflüsse auf das Intensitätsprofil mit Hilfe des zusätzlich gemessenen ω -Maps aufgeschlüsselt wurde, kann die Topografie der vertikalen Struktur ebenfalls über zusätzliche $\omega/2\theta$ und ω -Messungen separiert werden. Abb. 4.52 zeigt eindeutige Unterschiede zwischen der lateralen Konstanz der Aluminiumkomposition zwischen den beiden Anlagentypen. Die Probe a aus dem Showerhead-Reaktor mit konzentrischen Heizzonen und einer laminaren Gasströmung zeigte eine streng gleichmäßige vertikale Aluminiumverteilung über den Wafer. Demzufolge

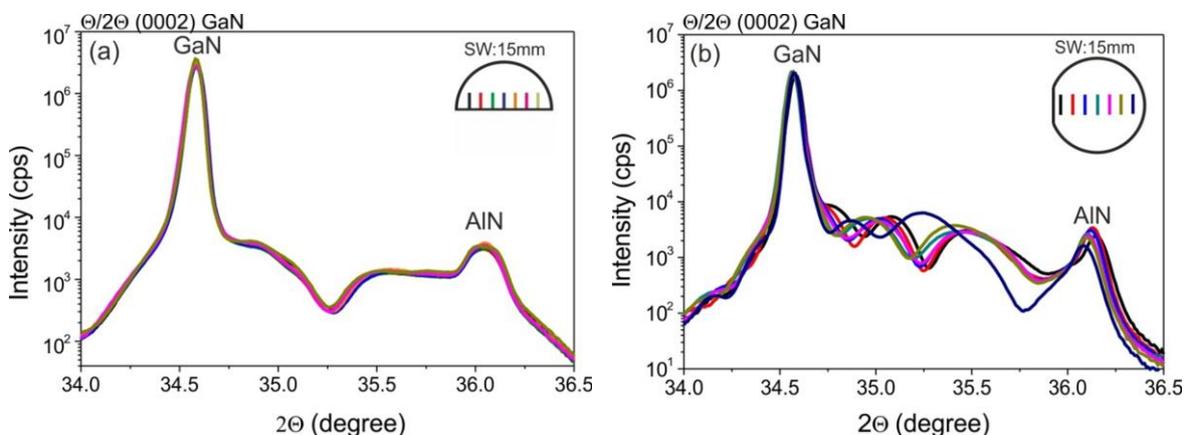


Abb. 4.52: Positionsabhängige $\omega/2\theta$ -Scans der beiden Proben (a) Probenart a aus dem Showerhead-Reaktor in der Einzelwaferkonfiguration und (b) Probenart b aus dem Multiwafer-Planetenreaktor. Dargestellt ist der 2θ Winkelbereich, in dem der GaN (0002) Reflex bis zum AlN (0002) Reflex gemessen ist.

sind sowohl der AlN/AlGa_N Puffer als auch die AlGa_N Zwischenschichten in diesem Reaktor lateral sehr genau herstellbar, wie Abb. 4.52 (a). Die Probe b aus dem Planetenreaktor weist hingegen eine starke Schwankung der positionsabhängigen vertikalen Aluminiumverteilungen auf, vgl. $\omega/2\theta$ -Scans in Abb. 4.52 (b). Die Anlagengeometrie des Planetenreaktors zeigt daher eindeutige Nachteile gegenüber dem Showerhead-Reaktor mit Einscheiben-Probenhalter. Der ungleichmäßige laterale Aluminiumeinbau ist ein Effekt der anlagentypischen Strömungscharakteristik der Präkursorengase über den Wafer, da eine krümmungsbedingte Temperaturdiskrepanz einen marginalen Einfluss auf die AlGa_N Komposition und nur einen minimalen Einfluss auf die Wachstumsrate des AlGa_N haben [Gro11, Hua07].

Die laterale Homogenität der Aluminiumkompositionen in den einzelnen Schichtsegmenten beeinflusst vornehmlich die GaN Qualität, da die AlGa_N Komposition gerade für eine Versetzungsreduktion im darauffolgenden GaN optimiert ist. Es ist daher zu erwarten, dass der Tilt ebenso lateral schwankt.

Die positionsabhängigen ω -Halbwertsbreiten in Abb. 4.53 wurden an denselben Positionen vermessen, wie die entsprechenden $\omega/2\theta$ -Scans in Abb. 4.52. Entgegen der Erwartung, dass eine homogene Aluminiumverteilung auch gleichzeitig eine gleichmäßige GaN Qualität garantiert, zeigt gerade der Probetyp a aus dem Einzelwafer-Showerheadreaktor keine über den Wafer konstante Qualität Abb. 4.53 (a). Zwar bestimmt die AlGa_N Zwischenschichten die GaN Qualität maßgeblich, aber mögliche prozessbedingte Gasverwirbelungen bei nicht optimierten GaN-Wachstumsbedingungen haben eventuell ebenfalls einen Qualitätsmangel zur Folge, was die Ursache für die laterale Tiltvariation bei Probe a sein könnte. Probe (b) mit inhomogenem Al-Einbau in den Zwischenschichten zeigt entsprechend den Erwartungen eine ungleichmäßige laterale GaN Qualität Abb. 4.53 (b).

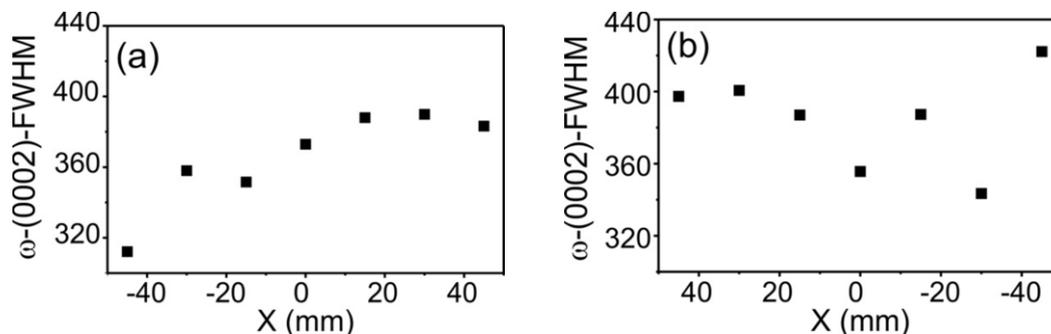


Abb. 4.53: Positionsabhängige ω -Halbwertsbreite der beiden Proben (a), die im Einzelwaferreaktor gewachsen wurde und Probe (b), die im Multiwaferreaktor hergestellt wurde. Die ω -Scans wurden am (0002) GaN Reflex an verschiedenen x-Positionen entlang des 100 mm Wafers gemessen.

Abschließend zu diesem Abschnitt ist hinzuzufügen, dass die röntgenographischen Homogenitätsuntersuchungen eine zerstörungsfreie und schnelle Methode zur vollflächigen Verbildlichung der kristallinen Eigenschaften sind. Zudem stellen sie eine wertvolle Ergänzung zu der sonst konventionell angewandten Photolumineszenzmessung (PL) dar. Mit der Röntgenhomogenitätsanalyse und dem zugehörigen PL-Mapping können wichtige Zusammenhänge der optischen und kristallinen Qualität gezogen werden. In diesem Kapitel werden durch die röntgenografischen Homogenitätsuntersuchungen die Einflüsse beider Reaktortypen und Waferkonfigurationen im Vergleich deutlich. Die vorgestellten Proben sind Proben aus dem Temp-

late-Optimierungsprozess und zeigen, dass noch Entwicklungsspielraum bezüglich der Homogenität besteht.

5. Hoch n-dotierte GaN-Schichten

Bisher wurde in den Kapiteln 2 und 3 gezeigt, wie auf dem Heterosubstrat Si(111) durch geeignete Optimierung der Pufferstruktur ein außerordentlich defektarmes, für Bauelemente geeignetes undotiertes GaN gewachsen werden kann. Um jedoch diese Pufferstrukturen für finale Bauelemente erfolgreich und wirtschaftlich anwenden zu können, ist noch eine weitere technologische Hürde zu nehmen: die Entwicklung von Prozessschritten, welche eine sehr hohe n-Leitfähigkeit im GaN erlauben und dabei die Schwächen des Si-Dotanten in solchen hoch n-dotierten GaN-Schichten komplett vermeiden. Entsprechend wurde im Rahmen dieser Arbeit die Ge-Dotierung des GaN entwickelt, welche in Oberflächenmorphologie, Dotierhöhe und resultierender finaler Waferkrümmung der etablierten Si-Dotierung deutlich überlegen ist.

5.1. Ausgangssituation zur n-Dotierung von GaN

Eine hohe Dotierung, sowohl für eine gute p- als auch für eine gute n-Leitfähigkeit sind essentiell für Halbleiterbauelemente, um eine homogene Stromverteilung und eine niederohmige Kontaktierung zu gewährleisten. Um thermische Verluste in den Halbleiterbauelementen zu reduzieren, muss der Schichtwiderstand minimiert bzw. die Ladungsträgermobilität maximiert werden. Dies erfolgt durch eine präzise Kontrolle einer möglichst hohen Dotierung. Als n-Dotant wird in den nitridischen Halbleitermaterialien konventionell Silizium verwendet. Weil die Gruppe-III-Nitride eine native n-Hintergrunddotierung durch eine Vielzahl von Defekten mit Donatorcharakter, wie O, Si und N-Vakanzen, besitzen, lässt sich die n-Dotierung mit hohen Aktivierungseffizienzen und genauer Kontrollierbarkeit erreichen [Koi91, Nak92, Mur91, Lee97, Fis69, Wic95]. Durch die nativen Störstellen mit Donatorcharakter wird die n-Dotierung sogar begünstigt. Im GaN beträgt die Aktivierungsenergie vom Si 12-17 meV [Göt96]. Zusätzlich bildet sich bei höheren n-Dotierungen ein Störstellenband aus, welches die Aktivierungseffizienz durch Absenken der Si-Ionisierungsenergie erhöht [Koi91, Lee97, Fis69]. Allerdings ist die Si-Dotierhöhe limitiert. Wird eine Si-Dotierung von $1 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ überschritten, tauchen vermehrt Pits an der Oberfläche durch eine gesteigerte Bildung von Liniendefekten und Rissen aufgrund erhöhter tensiler Verspannung mit steigender Dotierung auf [Nak92, Mur91]. Im Gegensatz zu GaAs wurde in GaN keine Selbstkompensation bzw. Sättigung der Si-Dotierung beobachtet [Dru82].

Da Si in der Einbaumenge begrenzt ist und es bei hoher Dotierung zu einer wesentlichen Materialverschlechterung führt, wurden auch mögliche Alternativen, wie Ge, Se und O untersucht [Nak92, Yi96, Kor99]. German (GeH_4), als Quelle des Alternativdotanten Germanium, zeigt eine geringere Einbaueffizienz, wobei bereits spekuläre Oberflächen mit Ladungsträgerkonzentrationen bis $1 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ erreicht wurden [Nak92]. Eine weitere Erhöhung der Ge Ladungsträgerkonzentration führte zu einer Aufräumung der Oberfläche und zu einer Vielzahl von Pits. Allerdings liegt die Aktivierungsenergie von Ge im GaN bei 19 meV, welche sehr nah an der des Si liegt [Göt99].

Die Versuche mit H_2Se als Se-Dotant ergaben eine starke Abhängigkeit der GaN Wachstumseffizienzen von der H_2Se Zugabe und das Auftauchen von tiefen Kratern (V-Pits) in der Oberfläche [Guo95]. Außerdem ist das hochdotierte GaN:Se durch die beim Wachstum gebildeten

positiv geladenen Galliumvakanz stark kompensiert. Sauerstoff als weitere Möglichkeit zur n-Dotierung besitzt eine etwas höhere Aktivierungsenergie von 35 meV verglichen zum Si. Außerdem ist die Dotierkonzentration nur schwer kontrollierbarer [Pta01, She02, Ber87]. Im Folgenden werden die Dotierexperimente mit dem konventionell verwendeten Donator Si und der möglichen Alternative Ge vorgestellt. Dabei werden die Dotierkonzentrationen bis an die Maximalgrenze der Materialverträglichkeit geführt. Im Falle der Ge Dotiereigenschaften werden die bisherigen Beobachtungen teilweise wiederlegt. Die aktuell diskutierten Modelle bezüglich der Materialeigenschaften von Si-dotiertem GaN werden umrissen und die bisher ungeklärte Aufrauung der GaN Oberfläche ab einer kritischen Si Konzentration erläutert. Abschließend wird gezeigt, dass Germanium eine hervorragend geeignete Alternative zu Si darstellt, wobei Ladungsträgerkonzentrationen bis in den 10^{20} cm^{-3} Bereich erreicht werden können ohne einer Oberflächenaufrauung oder Rissbildung durch additiven tensilen Spannungsaufbau [Fri12a].

n-Dotierung mit Silizium

Silizium hat sich über die Jahre als flacher Donator mit niedriger Bindungsenergie von 30.5 meV und einer geringen Aktivierungsenergie (12-17 meV) für die Gruppe-III-Nitride etabliert [Göt96]. Allerdings ist das Auftreten zusätzlicher tensiler Verspannung durch den Si-Einbau und die damit einhergehende Reduktion der kritischen Rissdicke ein großer Nachteil. Bei höheren Dotierkonzentrationen ($>1 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3}$) raut zusätzlich die Oberfläche auf. Bisher sind die Ursachen dafür noch nicht abschließend geklärt. Zahlreiche Untersuchungen ergaben, dass die Si-induzierte tensile Verspannung empfindlich von der Dichte der Stufenversetzungen des darunterliegenden Materials abhängig ist [Dad04, Dad07]. TEM-Analysen zeigen, dass der Aufbau tensiler Verspannung bzw. der Abbau kompressiver Verspannung durch Klettern der Stufenversetzungen bewirkt wird, wobei das Klettern innerhalb der Basalebene bzw. das Abknicken der Versetzungen um die [0001]-Richtung durch die Si-Dotierung ausgelöst werden soll [Rom03, Can03, Dad06]. Um den Effekt der tensilen Verspannungsanhäufung mit dem Einbau von Si zu erklären, wurden folgende Modelle entwickelt. Dadgar et al. postulieren aufbauend auf dem „effektiven Versetzungsklettern-Modell“ von Romanov und Speck [Rom03], dass sich die Si Atome bevorzugt am Versetzungskern anlagern und dort eine SiN Maskierung bilden. Diese lokale Maskierung führt in der darauffolgenden Atomlage zu einer Bewegung des Versetzungskerns, wodurch sich die sich einschiebende Versetzungsebene um einen Gitterplatz verschiebt bzw. verkürzt. Über alle Atomlagen gesehen knickt die Versetzungslinie durch die immer kürzer werdenden Versetzungsebenen innerhalb der dotierten GaN Schicht ab [Dad07].

Romano et al. beobachten eine erhöhte Oberflächenrauigkeit mit der Si-Dotierung und nehmen zur Erklärung das Kristallite-Koaleszenz-Modell von Nix und Clemens [Nix99] zu Hilfe. Durch die erhöhte Oberflächenaufrauung wird die Oberflächendiffusivität der Atome während des Wachstums limitiert. Das entsprechende Atom lagert sich nicht mehr energetisch günstig, sondern zufällig an, wodurch sich eine erhöhte tensile Verspannung aufbaut [Rom99].

Der immer wieder diskutierte Größeneffekt (size-effect) des sich einbauenden Si Atoms wird vom Deformationspotential des sich leicht um das Si verformende Kristallgitter derselben Größenordnung, mit inversem Vorzeichen, aufgehoben und ist keine Ursache für die additive tensile Verspannung [Rom99, Rom00]. Das dritte, aktuell stark diskutierte Modell von Mo-

ram et al. schlägt vor, dass durch die Präsenz des Siliziums die Beweglichkeit von Versetzungen limitiert wird [Mor11]. Beim Siliziumeinbau bildet sich eine „Si-Störstellenwolke“ um die Versetzung aus, die diese fixieren und deren Beweglichkeit einfrieren. Dadurch wird die Aktivierungsenergie für das Klettern und Gleiten der Versetzungen erhöht und folglich die Versetzungsbeweglichkeit gehemmt. Dieses Modell stützt sich auf die Theorie der Cottrell-Wolkenbildung in kubisch-raumzentrierten Metallgittern [Cot49]. In diesem Modell wird die Versetzungsbewegung durch den Einbau von Fremdatomen auf Zwischengitterplätzen behindert. Dies geschieht infolge der bevorzugten Anlagerung der Fremdatome an die Versetzungen, da sich dadurch die Verzerrungsfelder des Fremdatoms und der Versetzung überlagern und zu einem Minimum der Gesamtenergie kompensieren. Allerdings ist Morams Modell für das dotierte GaN lückenhaft. Der Einbau von Si soll einen Spannungsabbau aufgrund der versetzungsfixierenden Si-Störstellenwolke behindern, wobei davon ausgegangen wird, dass im undotierten GaN in den initialen Wachstumsstadien hohe tensile Verspannungen vorliegen, welche durch die Versetzungsbewegung mit wachsender Schichtdicke abgebaut werden könnten. Allerdings ist bereits belegt, dass das Abknicken von Versetzungen nur zu weiterer tensiler Verspannung führt und die initiale tensile Verspannung gerade verstärkt und nicht entspannt [Rom03, Rag05, Xie11, Dad03]. Moram et al ignorieren in ihrem Modell außerdem, dass es in der Gitterstruktur des Wurtzitkristalls keine Scherkräfte in den Gleitebenen gibt, wie es bei den kubischen Gittern der Fall ist, und es daher zu keinem Gleiten der Versetzungen entlang der Basalebene mit damit verknüpftem Spannungsabbau kommen kann [Rom03]. Zuletzt veröffentlichten Xie et al. 2011 eine interessante Erklärung, die stark von den drei bisherigen Modellen abweicht. Das Abknicken der Versetzungen in Si-dotierten GaN Filmen soll nach ihren Annahmen eine Folge von oberflächengetriebenem Klettern der Versetzungen sein, welches durch Ga-Vakanzen gefördert wird, deren Konzentration von der Position des Fermi-Niveaus abhängt [Xie11]. Durch die erhöhte freie Ladungsträgerkonzentration mit höherer Si-Dotierung steigt das Fermi-Niveau an, wodurch die Bildungsenergie Ga-Vakanzen herabgesetzt und deren Formation begünstigt wird. Mithilfe einer ladungsträgerkompensierenden Co-dotierung zeigten sie, dass die tensile Nettospannung geringer ausfällt, als im einfach Si-dotierten GaN. Dass die tensile Verspannung mit immer weiter steigender Si-Dotierung in die Sättigung übergeht, hat nach Xie et al. seine Ursache in der Degeneration des Halbleiters oberhalb einer Ladungsträgerkonzentration von $2 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3}$, wodurch die Bildungsenergie der Ga-Vakanzen wieder ansteigt und ein weiteres Abknicken der Versetzungen gehemmt werden soll.

Die Ursache für das zusätzliche Aufrauen der Si-dotierten GaN Oberfläche wird erstmals in den Arbeiten von Wienecke et al. thematisiert. Darin soll Si im GaN eine oberflächeninaktive Wirkung als „antisurfactant“ haben, die eine Oberflächendegradation bewirkt [Wie13]. Ansonsten geht keines der Modelle auf die Oberflächenaufrauung durch den Si-Einbau ein

n-Dotierung mit Germanium

Germanium ist ein zu Silizium isovalentes Element aus der 4. Hauptgruppe des Periodensystems der Elemente. Es besitzt auf einem Ga-Platz im GaN eine vergleichbare Bindungsenergie von 30.2 meV und wurde von einigen wenigen Arbeitsgruppen bereits als mögliche Alternative zum Si Dotanten eingesetzt [Xie11, Nak92, Dad11b, Qi08, Zha95, Osh10, Wie13, Hag04]. Allerdings konnte sich Germanium noch nicht als Alternative durchsetzen, da es zunächst keine Vorteile gegenüber Si zu besitzen schien. Bereits Anfang der 90er Jahre erreichten Nakamura et al. mittels des MOVPE Verfahrens hergestellten Ge dotierten GaN Schichten eine freie Ladungsträgerkonzentration von maximal $1 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3}$, allerdings beobachteten sie bei diesen hohen Ladungsträgerkonzentrationen eine Oberflächenaufrauung und zahlreiche Pits [Nak92]. Außerdem besitzt Germanium eine geringere Einbaueffizienz als Silizium, weshalb Germanium zunächst nicht nach einer vielversprechenden Alternative aussah. Zhang et al. setzten Ge in AlGaN Strukturen auf Si und Saphir Substraten bis zu einer Ladungsträgerkonzentration bis $3.7 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ ein und beobachteten keine Verschlechterung der optischen Eigenschaften in den glatten und rissfreien dotierten Strukturen [Zha95]. Das konnte in hochwertigen HVPE GaN Kristallen Defektdichten von nur 10^6 cm^{-2} ohne zusätzliche Defektbildung oder Beeinflussung der optischen Eigenschaften bestätigt werden [Osh10]. Weiter berichten Hagemann et al. 2004, dass GaN mit Germanium im MBE Verfahren bis zu $4 \cdot 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ ohne Rissbildung n-dotiert werden kann. Erst bei Ladungsträgerkonzentration im Legierungsbereich von $3.6 \cdot 10^{21} \text{ cm}^{-3}$ war eine Verschlechterung der Oberflächenmorphologie und eine deutliche Veränderung der strukturellen und elektrischen Eigenschaften aufgrund einer metallischen Ge-Phasenbildung zu beobachten [Hag04]. Dass der Einbaumechanismus von Germanium von dem von Silizium verschieden sein muss, zeigten Dadgar et al. 2011 anhand von in-situ Krümmungsaufnahmen von dotierten GaN Strukturen auf Si Substraten, welche keinerlei tensile Spannungszunahme durch die Ge-Dotierung aufwiesen [Dad11b]. Dem widersprechend berichteten Xie et al., dass die Dotierung mit Germanium zu der gleichen tensilen Spannungszunahme wie durch Si Dotierung führt und untermauern damit ihr Modell, dass durch die durch Dotierung induzierte Anhebung des Fermi-Niveaus eine vermehrte Bildung von Ga-Vakanzen begünstigt wird, die die Ursache der bisher unverstandenen tensilen Zusatzspannung sein sollen.

Die Oberflächenstabilität betreffend vermuten Wieneke et al. dass Ge, anders als das Si, als Sufactant wirkt, wodurch die Oberfläche ihrer non-polaren GaN Schichten spiegelnd glatt bleibt [Wie13]. Anders als das stabile Si_3N_4 bei hoher Si-Dotierung, welches eine wachstumsblockierende Passivierung bildet, zerfällt die Ge_3N_4 Verbindung schon bei Temperaturen ab 700°C , weshalb diese Verbindung bei der Germaniumdotierung im GaN nicht entstehen [Car90]. Germanium scheint demzufolge eine favorisierbare Alternative für eine hohe n-Leitfähigkeit ohne die Beeinträchtigung der strukturellen und vor allem optischen Eigenschaften des GaN Kristalls zu sein.

5.2. Untersuchungen zur Siliziumdotierung

Um die durch die Si-Dotierung verstärkte tensile Spannungszunahme und die Oberflächenaufrauung bei erhöhter Dotierung zu untersuchen und aufzuklären, wurden verschiedene GaN Teststrukturen auf 2“ c-Saphir mittels des MOVPE Verfahrens hergestellt. Der Aufbau dieser Teststrukturen ist der Schemazeichnung in Abb. 5.1 zu entnehmen. Der identische Schichtaufbau wird im späteren Abschnitt 5.3. auch für die Germanium dotierten GaN Schichten verwendet. Nach einer zweistufigen AlN Keimschicht von etwa 80 nm Dicke und einer ca. 200 nm darauffolgenden gradierten AlGaN Schicht, wurde eine etwa 1.3 μm dicke undotierte

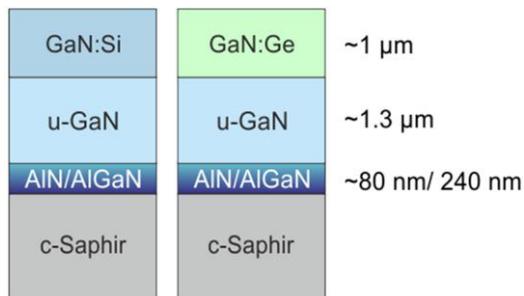


Abb. 5.1: Aufbau der Si-dotierten GaN Teststruktur (links). Der identische Aufbau wird später auch für die Germanium dotierten GaN Strukturen verwendet (rechts).

GaN Schicht abgeschieden, um den Einfluss des Dotanten auf das Koaleszenzverhalten auszuschließen. Abschließend folgt eine ca. 1 μm dicke Si-dotierte GaN Schicht. Die Flussraten der Dotierquelle Silan (SiH_4) wurden derart variiert, dass die resultierenden Ladungsträgerkonzentrationen zwischen $1.5 \cdot 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ bis $2.24 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ betragen. In Tabelle 5.1 sind die eingestellten Flussraten und die dazugehörigen Ladungsträgerkonzentrationen aufgelistet. Alle Schichten wurden unter Wasserstoffatmosphäre gewachsen. Die dotierten Schichten wurden bei einer

Prozesstemperatur von durchschnittlich 1070°C mit einem molarem Trimethylgalliumfluss (TMGa) von $96 \mu\text{mol}/\text{min}$ und einem Ammoniakfluss (NH_3) von $89 \text{ mmol}/\text{min}$ hergestellt. Die Ladungsträgerkonzentrationen wurden mittels Hall-Effekt Messungen nach der van-der-Pauw Geometrie bestimmt und mit SIMS Messungen an Stichproben bestätigt.

Tabelle 5.1: Eingestellte SiH_4 Flussraten und die entsprechenden Ladungsträgerkonzentrationen der Si-dotierten GaN Strukturen nach Abb. 5.1.

Silan (SiH_4)		
n (cm^{-3})	$f_{\text{eff.}}$ (sccm)	Φ_{M} (nmol/min)
$1.5 \cdot 10^{18}$	0.5	2.2
$2.1 \cdot 10^{18}$	0.8	3.6
$2.5 \cdot 10^{18}$	1.0	4.5
$5.4 \cdot 10^{18}$	2.0	8.9
$1.1 \cdot 10^{19}$	4.0	17.8
$1.4 \cdot 10^{19}$	6.0	26.8
$2.2 \cdot 10^{19}$	10.5	46.9

Zunächst besitzen die Si-dotierten Strukturen bis zu einer Ladungsträgerdichte von weniger als $1 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ eine hohe Transparenz mit glatter Oberfläche. Mit höheren Dotierungen setzt die Aufrauung ein und die Oberfläche erscheint matt. Ein genaues Bild der Oberflächenmorphologie für die verschiedenen Dotierniveaus geben die Nomarski Mikroskopieaufnahmen in Abb. 5.2 wieder. Bei geringeren Dotierungen bis etwa $5.1 \cdot 10^{18} \text{ cm}^{-3}$, welche konventionell in

GaN basierten Bauelementen eingesetzt wird, ist die Oberfläche sehr glatt und störungsfrei. Erst mit dem Überschreiten der Ladungsträgerkonzentration von $1 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ setzt die Aufrauung der Oberfläche mit einer hohen Dichte von Oberflächenlöchern („Pits“) ein. Bei noch höheren Si-Dotierung von $2.2 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ ist die Oberfläche sehr stark aufgeraut. Teilweise ziehen sich tiefe Gräben durch die Oberfläche, die darauf hindeuten, dass die Schicht regelrecht weggeätzt wurde.

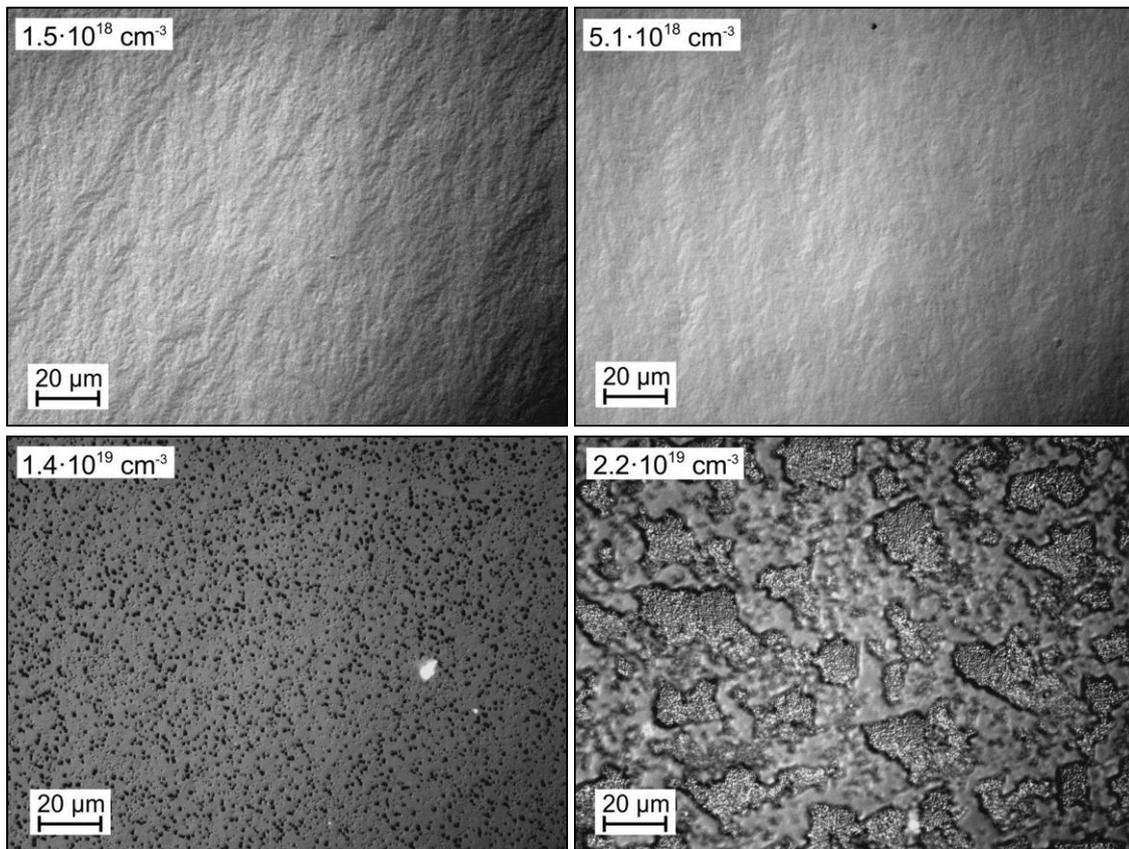


Abb. 5.2: Nomarski Aufnahmen von der Si-dotierten GaN Oberfläche für verschiedene Dotierkonzentrationen.

In den höher aufgelösten FE-REM Aufnahmen in Abb. 5.3 ist noch deutlicher zu erkennen, dass die stark Si-dotierte GaN Oberfläche aus einzelnen Plateaus besteht, die aus vollständig durchgewachsenen Schichtteilen mit glatter Oberfläche und dazwischen liegenden tiefen Gräben bestehen, die wie abgetragene Bereiche aussehen (a). Die Aufnahme eines Grabens (b) zeigt eine unregelmäßige Anordnung von unterschiedlich großen hexagonalen Gebilden, die einer hexagonalen Oberfläche nach einem Oberflächenabtrag durch z.B. Sputtern oder einer Trockenätzbehandlung ähnelt [Fri07].

Die um 60° geneigten Aufnahmen (c - d) untermauern, dass die tiefen Gräben eine reduzierte Schichtdicke und eine raue Oberfläche besitzen. In höchster Vergrößerung (d) ist der Kontrast zwischen undotiertem und Si-dotiertem GaN aufgrund der unterschiedlichen Leitfähigkeiten beider Schichten zu erkennen. Zusätzliche Oberflächenaufnahmen mit der μ -Ramanspektroskopie in der Draufsicht untermauern, dass es sich bei einem erhöhten Si Einbau um eine defektdekorierende Ätzung durch das SiH_4 handeln könnte. Die Messungen sind in der Dissertationsschrift von Max Bügler wiederzufinden [Büg13].

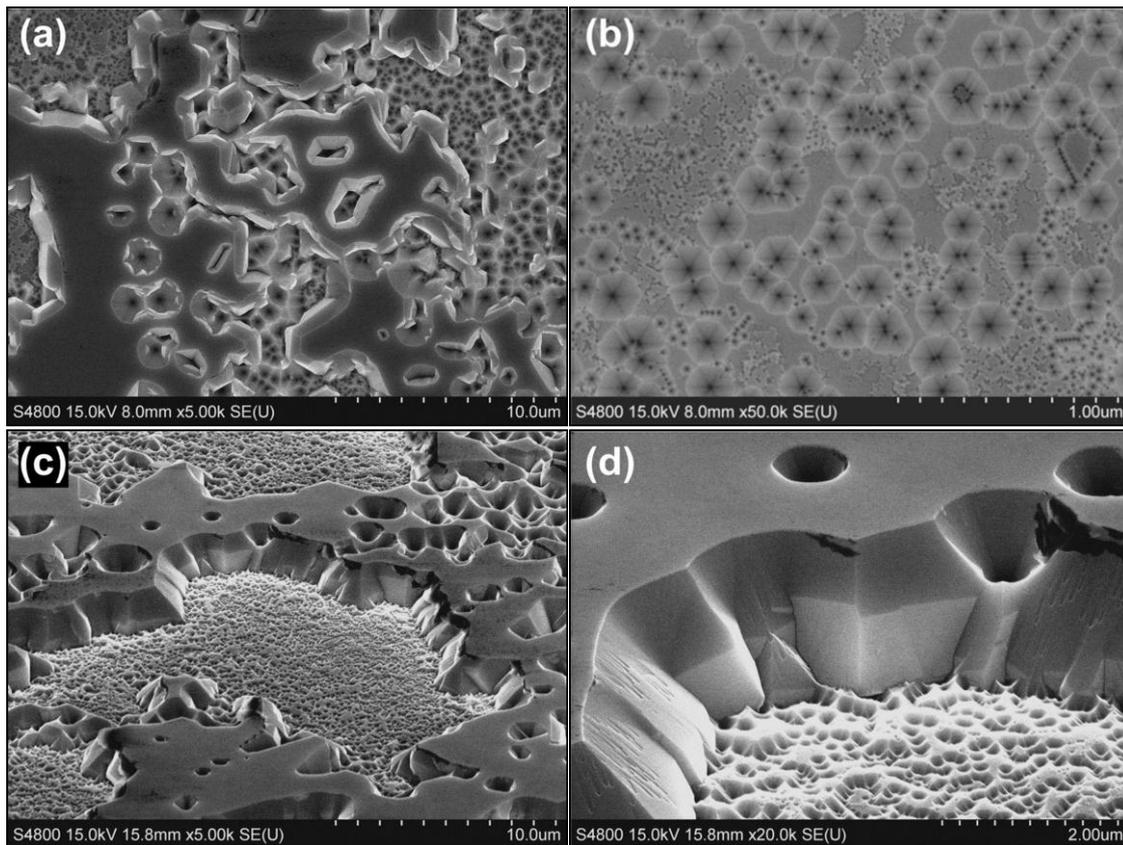


Abb. 5.3: FE-REM Aufnahmen von der Oberfläche der stark Si-dotierten GaN Struktur ($n=2.24 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3}$). Die Probe zeigt Bereiche, die durch die erhöhte Si-Dotierung wegätzt wurden. Es handelt sich vermutlich um eine defektdekorierende Ätzung durch das SiH_4 .

Neben der Menge der eingebauten Si Atome, scheint auch die Prozesstemperatur ein kritischer Parameter zu sein, der diese Ätzreaktion fördert. Zahlreiche Arbeiten belegen bereits, dass es eine kritische Si-Dosierung für eine einsetzende Oberflächenaufrauung gibt, wobei die vorgestellten MOVPE-GaN Schichten bei hohen Prozesstemperaturen um ca. 1000°C gewachsen wurden [Rom99, Mor11, Dad04]. Dagegen lässt sich bei Si-dotierten MBE-GaN bzw. AlGaN, welche bei tieferen Temperaturen von etwa 700°C hergestellt wurden, keine Aufrauung oder Qualitätsverschlechterung beobachten [Ide02], was ein Hinweis für die temperaturgetriebene Reaktivität des einzubauenden Siliziums wäre.

Die stark chemische Reaktivität zwischen Ga und Si bei Temperaturen über 700°C ist bereits bei der GaN Epitaxie auf Si-Substraten als das sogenannte „Meltback Etching“ bekannt, welches zur Zerstörung und Unbrauchbarkeit der GaN Struktur führt [Kro02a, Rei09]. Allerdings liegen die Mengenverhältnisse der Reaktanden Ga und Si beim „Meltback Etching“ im Prozentbereich. Bei einer Dotierung liegt der atomare Anteil im Promillebereich, weswegen hier zunächst nicht vom klassischen Meltback Etching ausgegangen werden kann.

Weil die Oberflächenaufrauung erst bei höheren Si-Konzentrationen auftritt und die Schichtstruktur gleichzeitig mit dem reaktiven Trägergas Wasserstoff gewachsen wurde, wurde im Weiteren untersucht, inwieweit der reaktive Wasserstoff die chemische Ätzreaktion der hochdotierten GaN:Si Schichten beeinflusst. Dazu wurde die Struktur mit der maximalen Dotierung noch einmal unter N_2 Atmosphäre wiederholt.

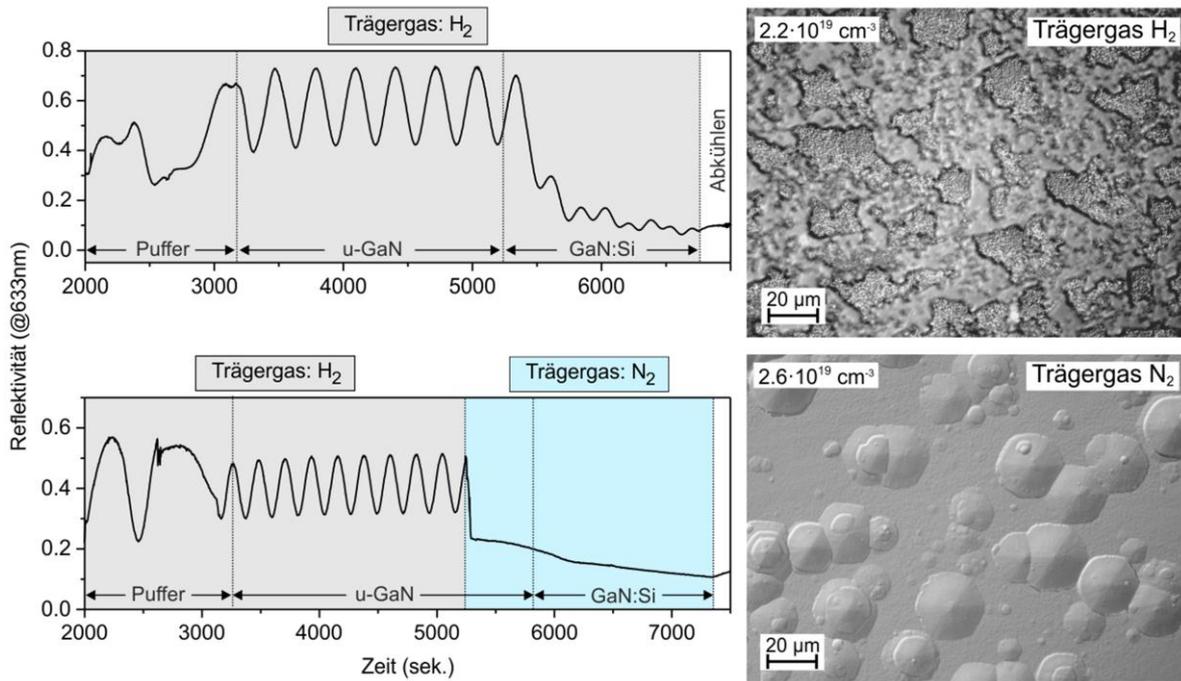


Abb. 5.4: Hochdotiertes GaN:Si, welche mit verschiedenen Trägergasen gewachsen wurden. Die obere Probe wurde durchweg in einer H_2 Atmosphäre gewachsen. Bei der unteren Probe wurde der Si-dotierte Schichtanteil mit N_2 -Trägergas gewachsen. Die Dotanten bauen sich abhängig vom Trägergas unterschiedlich stark ein. Bei beiden Proben wurde derselbe Silanfluss verwendet.

Zum Vergleich der verschiedenen Trägergasinflüsse werden die in-situ Reflektivitäten herangezogen, welche signifikant das stark abweichende Wachstumsverhalten bei unterschiedlichen Gasatmosphären (H_2 und N_2) hervorheben (Abb. 5.4). Während die durchgängig Wasserstoff getragene Struktur deutlich ein Abklingen der Intensität aufgrund starker einsetzender Oberflächenaufräumung mit schwachen Restoszillationen erkennen lässt, ist der Messung mit Trägergaswechsel zu entnehmen, dass kaum Schichtvolumen unter dem schwereren und weniger reaktiven N_2 Gas abgeschieden wurde. Vielmehr verursacht der Gaswechsel auf N_2 einen abrupten Einbruch der Wachstumsrate.

Aus verschiedenen Arbeiten ist bereits bekannt, dass beim Schichtwachstum von GaN die Wahl des Trägergases dramatisch das Koaleszenzverhalten, die Oberflächenbeschaffenheit und die Kristallqualität der Schicht beeinflusst. So reduziert eine Stickstoff getragene GaN Epitaxie nicht nur die Wachstumsrate wegen seiner geringeren Reaktivität, sondern fördert auch die Formation kleiner und dichter GaN Bekeimungsnuklei, was wiederum defektreicheres GaN mit zusätzlich rauer Oberfläche und ungewollten Sauerstoffstörstellen zur Folge hat [Cho06, Cho07, Par00, Kar84]. Aus diesem Grund wird üblicherweise H_2 als Trägergas für qualitativ hochwertiges GaN eingesetzt.

Obwohl das Trägergasexperiment keine Reproduktion der hochdotierten GaN:Si Struktur erzielte, weil das Wachstum unter N_2 -Atmosphäre zu keiner messbaren Schichtdicke führte, belegen die entsprechenden Nomarski Aufnahmen in Abb. 5.4 doch, dass das hochkonzentrierte Angebot des Siliziums nicht allein für die chemische Ätzreaktion im GaN verantwortlich ist, sonst hätte das hohe SiH_4 Angebot auch mit N_2 Trägergas eine Oberflächenätzung verursacht. Im Gegensatz zu der Wasserstoff getragenen Dotierung, ist diese Oberfläche glatt und enthält lediglich einige hexagonale Pyramiden infolge des stickstoffinduzierten 3-D Wachstums. Weitere Dotierexperimente mit Stickstoffträgergas und angepasstem bzw. ver-

doppeltem Ga-Fluss weisen zwar eine stabile Wachstumsrate mit Anzeichen für ein 3-D Wachstum auf, allerdings ohne jegliches Anzeichen einer rückätzenden Reaktion mit dem erhöhten Siliziumeinbau.

Aus diesen Untersuchungen schlussfolgernd erfolgt eine chemische Ätzreaktion zwischen GaN und dem eingebauten Silizium Dotanten ausschließlich wasserstoffassistent und erst ab einer kritischen Dosierung des Siliziums, welche bei einem molaren SiH_4 -Fluss von 46.9 nmol/min bereits erreicht ist.

Zu der Änderung des Wachstumsmodus mit dem Si-Einbau haben Rosa und Neugebauer anhand von Dichte-Funktional Berechnungen ermittelt, dass sich vorzugsweise an den GaN Wachstumsoberflächen die chemisch stabile Verbindung Si_3N_4 bildet, welche die Oberfläche chemisch passiviert und ein weiteres Überwachsen behindert [Ros02, Ros06]. Somit würde Silizium als ein oberflächeninaktiver Stoff, als „Antisurfactant“, wirken, der die Oberflächenspannung einer Grenzfläche heraufsetzt. Aus diesem Grund soll der Wachstumsmodus bei Anwesenheit von Si zu einem dreidimensionalen Wachstum umschlagen und unabhängig von der gewählten Wachstumsrichtung des GaN Kristalls eine schlechte Oberflächenqualität mit vielen Löchern, Streifen oder Kratern hinterlassen [Wie11, Fri12a, Mor10, Wie13, Tou09]. Diese Erklärung mag bei moderaten Si-Dotierungen für Konzentrationen $< 1 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ gelten, bei sehr hohen Konzentrationen stößt sie allerdings an die Grenzen und kann die dominierende Ätzreaktion zwischen Si und Ga mit fehlenden bzw. abgetragenen Schichtarealen nicht mehr erklären. Es stellt sich auch die Frage, warum der Passivierungseffekt nicht auch bei niedrigen Si-Konzentrationen (10^{18} cm^{-3}) auftaucht. Demnach müsste es eine bestimmte angebotene Si Menge geben, die die Formation der Si_3N_4 Verbindung auslöst. Eine abschließende Erklärung zu den beobachteten Aufrauungs- und Ätzeffekten wird am Ende dieses Abschnitts gegeben.

Neben der Oberflächendegradation ist die Zunahme der tensilen Verspannung ein weiterer Nachteil, der mit der Si-Dotierung einhergeht. Mit unterschiedlichen und im Folgenden angewandten Messmethoden kann die Spannungsentwicklung in Abhängigkeit vom Si-Einbau erfasst und verdeutlicht werden.

Im Speziellen ermöglichen in-situ Messungen die Beobachtung des Spannungsverlaufs schon während des Herstellungsprozesses der Struktur. In Abb. 5.5 geben die Krümmungskurven

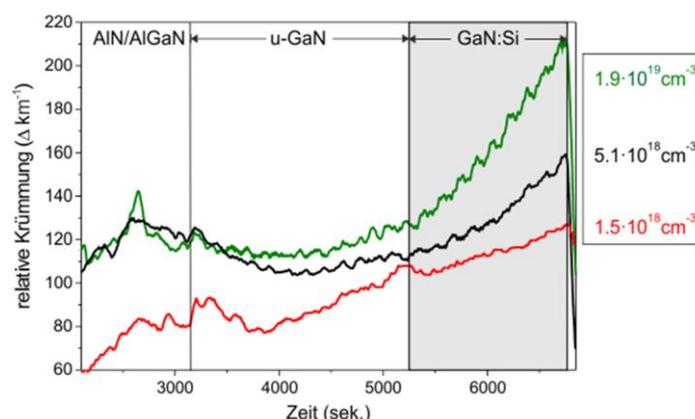


Abb. 5.5: In-situ Krümmungsmessungen der GaN:Si Teststrukturen mit verschiedenen Ladungsträgerkonzentrationen.

eine direkte Indikation für die Spannungssteigerung bei verschiedenen Ladungsträgerkonzentrationen mit dem Zuschalten der Dotierquelle. Eine Spannungsänderung geschieht nur dann, wenn sich der Anstieg der in-situ Krümmungskurve ändert. Bleibt der Anstieg zwischen zwei aufeinanderfolgenden Schichten gleich, erfolgt dort keine Spannungsänderung und beide Schichten besitzen die gleiche Verspannung. Durch den AlN/AlGaN Puffer wird in der darauffolgenden u-GaN Schicht zunächst eine schwache kompressive Vorspannung erzeugt, was an dem anfänglichen Abfall der Krümmungskurven zu erkennen ist. Diese Kompression schlägt aufgrund der Defektannihilationen mit voranschreitender GaN Dicke zur Zugspannung in tensile Spannung um [Rag05, Mor09, Mat00, Fol05]. Abhängig von der Materialqualität der einzelnen Proben, die unglücklicherweise stark durch die reaktorbedingten Temperaturschwankungen variieren kann, besitzt die GaN Basisschicht einen individuellen Spannungszustand, bevor der Dotant eingebaut wird. Wird nun die Silanquelle zugeschaltet, ist abhängig von der Dotierhöhe eine Änderung des Anstiegs der Krümmungskurven erkennbar. Bei der niedrigeren Si-Konzentrationen ($1.5 \cdot 10^{18} \text{ cm}^{-3}$) ändert sich der Krümmungsanstieg mit dem Zuschalten des Si Dotanten noch nicht. Bei höheren Dotierungen ab $5.1 \cdot 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ und höher ist allerdings klar erkennbar, dass eine zusätzliche tensile Verspannung abrupt mit der Dotierung einsetzt und mit weiterem Dickenzuwachs weiter graduell zunimmt (parabolisch wachsender Anstieg). Die Messungen zeigen demzufolge, dass die Spannung in den höherdotierten Schichten nicht konstant ist, sondern mit zunehmender Schichtdicke immer weiter zunimmt. Ohne entsprechende TEM Aufnahmen lassen sich allerdings keine konkreten Aussagen über eventuelle Si-getriebene Annihilationsmechanismen oder ein Wandern von Linienversetzungen treffen. Deswegen wird an dieser Stelle auf die Arbeiten von Contreras et al. und Dadgar et al. verwiesen [Con02, Dad04].

Einen umfassenderen Eindruck, was mit der GaN Kristallstruktur während der Dotierung geschieht, gibt die zusätzliche Betrachtung der in-situ Reflektivitätsmessung und der Oberflächenmikroskopie wieder (Abb. 5.6). Den in-situ Messverläufen ist deutlich zu entnehmen, wie die Oberflächenqualität mit steigender Si-Dotierung degradiert. Bei moderaten Ladungsträgerkonzentrationen von $1.5 \cdot 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ zeigt die Reflektivität eine stabile Amplitude mit ausgeprägten Fabry-Perot Oszillationen. Die dazugehörige Nomarski Aufnahme zeigt entsprechend eine glatte und störungsfreie Oberfläche. Bei höheren Dotierungen ($1.4 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3}$) nimmt nicht nur die Schichtspannung zu, sondern zusätzlich raut die Oberfläche auf, wie an dem sinkenden Reflektivitätssignal mit wachsender Schichtdicke augenfällig wird. Entsprechend belegt die dazugehörige Oberflächenaufnahme die mit dichten Löchern überzogene, degradierte Oberfläche.

Bei der maximalen Dotierung mit einer Ladungsträgerdichte von $2.2 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ kann kein zuverlässiges Krümmungssignal aufgrund der diffusen Oberflächenstreuung an der stark aufgerauten Oberfläche mehr gemessen werden. Sowohl Krümmungs- als auch Reflektivitätssignal bestehen im Wesentlichen aus Artefakten der fehlerhaften Streuintensität. Das Reflektivitätssignal bricht kurze Zeit nach dem Zuschalten des Si Dotanten vollständig ein und zeigt unregelmäßige kurzweilige Fabry-Perot Oszillationen, die eine raue und gleichzeitig inselartige Schichtstruktur erahnen lassen, welche mittels Nomarski-Mikroskopie bestätigt wurde.

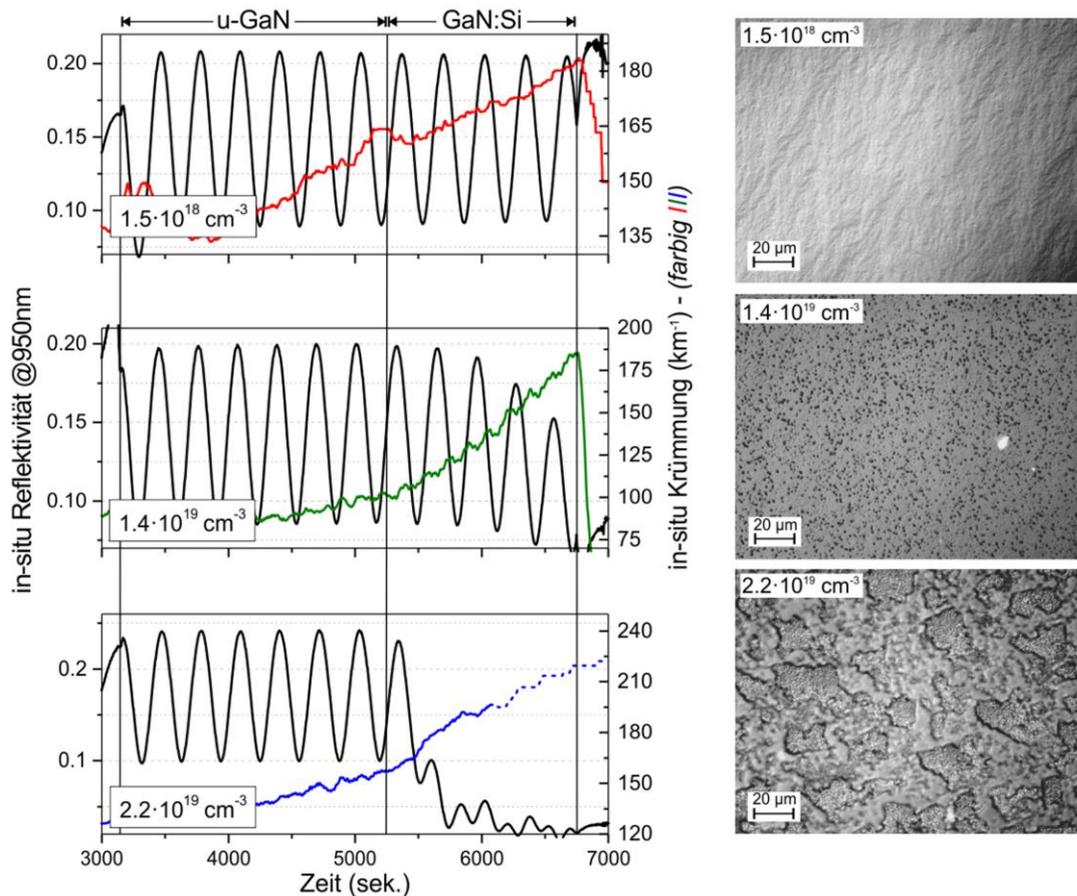


Abb. 5.6: In-situ Reflektometrie- und Krümmungsmessung verschieden Si-dotierter GaN Strukturen links) und die dazugehörigen Nomarski Aufnahmen (rechts). Die obere GaN-Struktur mit geringer Dotierung ($1.5 \cdot 10^{18} \text{ cm}^{-3}$) zeigt eine gute Oberflächenqualität und keiner additiven Spannungszunahme. Mit weiter steigender Doetierung ($1.4 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ und $2.2 \cdot 10^{20} \text{ cm}^{-3}$) wird die Oberfläche rau und die tensile Spannung nimmt zu.

Untersuchungen mittels der Röntgendiffraktometrie geben einen vollständigen Aufschluss über die Gitterstruktur der dotierten Schichten mitsamt der darunterliegenden Struktur. Für die Analyse der c-Gitterkonstanten wurde der (0002) GaN Reflex in symmetrischer Bragg-Geometrie für die verschiedenen Ladungsträgerdichten gemessen (Abb. 5.7 a). Bei höheren Si Dotierungen ist in der symmetrischen Röntgensignatur eine klare Reflexaufspaltung aufgrund der stärkeren tensilen Verspannung der dotierten Schichten zu beobachten. Der konstante Reflex bei kleineren 2θ -Winkeln entspricht dem kompressiv verspannten u-GaN Puffer, der zweite Reflex bei höheren Winkeln entspringt dem Si-dotierten GaN mit kleinerer c-Gitterkonstante. Mit höherer Si-Dotierung steigt die tensile Spannung, erkennbar an der stärker werdenden Ausprägung der Reflexaufspaltung. Durch die hohe Oberflächenaufrauung mit maximaler Si-Dotierung ($2.2 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3}$, blaue Kurve) zeigt das abschließende GaN:Si eine Relaxation, weshalb die Reflexaufspaltung weniger ausgeprägt ist. Aus diesem Grund liegt der Reflex des hochdotierten GaN:Si nahezu am relaxierten GaN Wert c_0 .

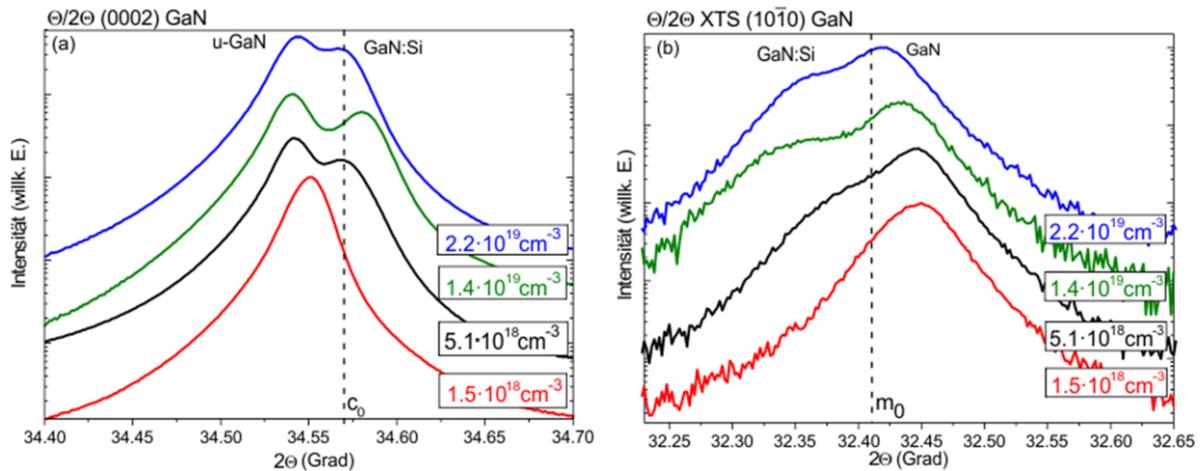


Abb. 5.7: $\omega/2\theta$ -Röntgenmessungen in (a) symmetrischer Beugungsgeometrie und (b) in Transmissionsgeometrie (Laue-Geometrie) für verschiedene Si-Konzentrationen im GaN.

Ergänzend zur symmetrischen Röntgenmessung wird mit Hilfe der Röntgentransmissionsmessung (XTS) die Entwicklung der a-Gitterkonstanten entlang der Struktur aufgenommen, um zu untersuchen, ob die dotierte Schicht kohärent auf dem undotierten Puffer gewachsen ist (Abb. 5.7 b). Die XTS Messungen belegen anhand der auch hier zu beobachtenden Aufspaltung des $(10\bar{1}0)$ GaN Reflexes, dass die Si-dotierte Schicht nicht kohärent auf dem undotierten Puffer gewachsen ist, sondern eine wesentlich größere a-Gitterkonstante als das darunterliegende GaN annimmt. Nur bei geringen Dotierungen um $1.5 \cdot 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ ist ein kohärentes Überwachsen zu verzeichnen und die dotierte Schicht führt die a-Gitterkonstante des Puffers fort. Vergleicht man die Reflexlagen bzw. Gitterparameter aus beiden Röntgenmessmethoden, wird deutlich, dass die GaN Einheitszelle durch die Si Dotierung sehr stark tensil, aber dennoch biaxial unter Beibehaltung des Poissonverhältnisses, verspannt ist, d.h. der dotierte Kristall ist biaxial stark verzerrt.

Wie stark die durch den Si Einbau induzierte Verzerrung der dotierten Schichten ist, wurde mittels der Röntgenmessungen im streifenden Einfall (GIID) bestimmt, die sich aus den gemessenen Gitterkonstanten senkrecht zur Oberfläche ergeben (siehe auch Abschnitt 3.1.2). In

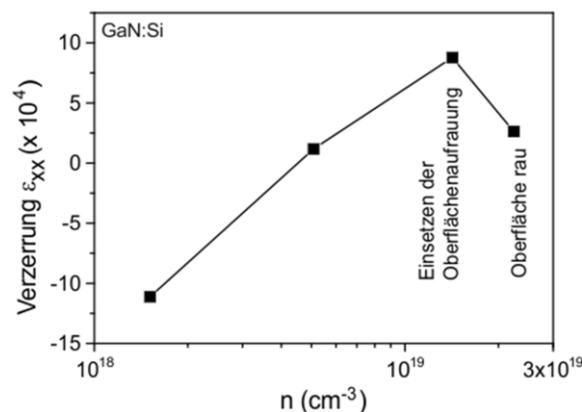


Abb. 5.8: Verzerrung ϵ_{xx} der Basalebene des dotierten GaN Kristalls in Abhängigkeit von der Si-Dotierung. Ab einer kritischen Ladungsträgerkonzentration von ca. $2 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ beginnt die Oberflächenaufrauung und damit einhergehend die Relaxation des GaN, welche zu geringeren Verzerrungen mit kleineren tensilen Spannungen führt.

Abb. 5.8 ist aufgetragen, wie mit wachsender Si-Konzentration die Verzerrung bis zum Einsetzen der Oberflächenaufrauung positiv ansteigt, was einer Zunahme von tensiler Verspannung entspricht. Die Verzerrung steigt sogar noch weiter an, obwohl die Probenoberfläche mit dichten Löchern übersät ist und eine beginnende Aufrauung zeigt (vgl. Abb. 5.6, Mitte). Erst mit dem Einsetzen der starken Aufrauung infolge des Rückätzens relaxiert die Oberfläche und die Verzerrung nimmt wieder ab.

Die drastische Spannungszunahme mit dem Si Einbau wird in der Gegenüberstellung der Spannungswerte der dotierten und der darunterliegenden undotierten Schicht noch deutlicher, siehe Tabelle 5.2. Die Differenz zwischen beiden Schichtverspannungen kann bis zu 1 GPa betragen. Während die undotierte Schicht immer druckverspannt ist, wird die dotierte Schicht mit zunehmender Dotierung stärker zugverspannt. Übersteigt die Zugspannung die Grenze von 1 GPa, wird die Schicht reißen. Die sich aufbauende Zugverspannung ist folglich ein dotierungs-limitierender Prozess (wenn viele Versetzungen vorhanden sind). Sofern nicht schon vorher die Oberflächenaufrauung einsetzt, wird die Schicht wegen der hohen Spannungen reißen.

Tabelle 5.2: Vergleich der Verspannungen der Si dotierten GaN Schichten und der darunterliegenden undotierten GaN Schicht. Ein negatives Vorzeichen bedeutet kompressive Verspannung, ein positives bedeutet entsprechend tensile Verspannung.

n (cm ⁻³)	σ (GPa) _{GaN:Si}	σ (GPa) _{u-GaN}	$\Delta\sigma$ (GPa)
$1.5 \cdot 10^{18}$	-0.53	-0.53	0
$5.1 \cdot 10^{18}$	0.06	-0.7	0.76
$1.4 \cdot 10^{19}$	0.42	-0.58	1.0
$2.2 \cdot 10^{19}$	0.13	-0.5	0.63

Welchen Einfluss die Si-Dotierung auf die Kristallqualität haben kann, zeigen die Röntgenhalbwidthsbreiten der ω -Scans in Abb. 5.9. In der etwa 1 μm dicken dotierten Schicht verschlechterte sich der Tilt durch den Si-Einbau um mehr als 100 arcsec verglichen zum darunterliegenden u- GaN. Bei niedrigen Si-Konzentrationen sind die Qualitäten der undotierten und Si-dotierten GaN Schichten gleich und können aufgrund der fehlenden bzw. zu schwachen (0002)-Reflexaufspaltung nicht separiert werden. Weil die ω -Halbwertsbreiten ein Maß

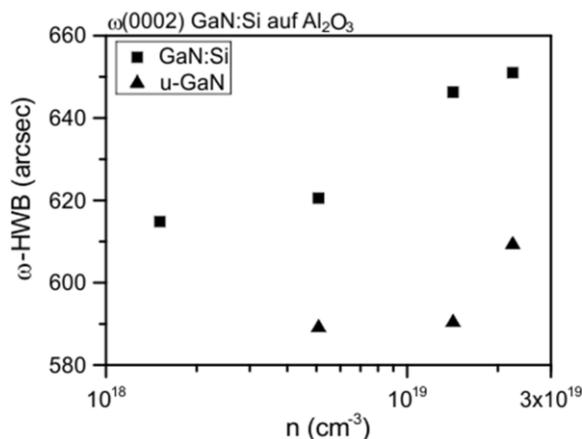


Abb. 5.9: Vergleich der symmetrischen ω -Halbwertsbreiten des (0002) GaN Reflexes der dotierten GaN:Si Schicht (Quadrate) und der darunterliegenden undotierten u-GaN Pufferschicht (Dreiecke). Die ω -Halbwertsbreiten sind ein Maß für die Versetzungsmenge und beschreiben die Qualität des GaN Kristalls, die für die undotierte und dotierte Schicht signifikant unterschiedlich sind.

für die dem gemessenen Reflex ansprechende Versetzungsdichte darstellt, kann aus den Tilt-Werten geschlussfolgert werden, dass mit dem Si Einbau bei diesen Experimenten zusätzliche Versetzungen mit Schraubenanteil gebildet werden. Nur wenige Gruppen berichten über die durch Silizium Störstellen beeinflusste Kristallqualität [Nak92, Fri12a, Kwa05]. Romano et al. sind darunter die einzigen, die keine zusätzlich Versetzungsbildung durch Si-Dotierung und folglich keine Qualitätsverschlechterung des dotierten GaN Kristalls beobachten [Rom00]. Ob die Si-Dotierung tatsächlich zu einer additiven Bildung von Versetzungen führt, bleibt aber weiterhin umstritten. Eine mögliche Erklärung dafür wird in der abschließenden Interpretation dieses Kapitels gegeben.

Aus den gewonnen Untersuchungen der Si-Dotierung und unter Betrachtung der bisher vorgestellten Modelle [Xie11, Fol09, Mor11, Dad04] lässt sich ein vollständiges Modell aus den einzelnen Theorien ableiten. Jedes Modell mitsamt seiner Experimente und Berechnungen trägt einen wichtigen Beitrag zum Gesamtverständnis über die Dotierung bei, welches sich mit den hier präsentierten Wachstumsexperimenten vervollständigt wird.

Interpretation zur Ursache der Si-induzierten Spannungszunahme

Der undotierte GaN Kristall besitzt eine geringe aber messbare n-Leitfähigkeit aufgrund von sich mit dem Schichtwachstum einbauenden nativen Störstellen, darunter auch Gallium und Stickstoff Vakanzen [She02]. Für die Si-Dotierung sind die Gallium Vakanzen (V_{Ga}) von wesentlicher Bedeutung, denn diese Vakanzen sind tiefe Störstellen mit Akzeptorcharakter und attraktiv für die Anlagerung der Donatoren, wobei sie ein $V_{\text{Ga}}\text{-Si}_{\text{Ga}}$ Komplex bilden [Neu96]. Die Bildungsenergie der Ga Vakanzen ist abhängig von der Lage des Fermi-Niveaus. Ihre Bildungsenergie sinkt, wenn das Fermi-Niveau durch zunehmende n-Leitfähigkeit des dotierten GaN ansteigt [Wri98]. Das heißt die Bildung der Ga-Vakanzen wird durch die Si-Dotierung begünstigt, weshalb ausschließlich diese Störstellen bei n-GaN interessant sind. Alle weiteren Defekte, wie zum Beispiel Stickstoff Vakanzen (V_{Si}), spielen in diesem Material eine untergeordnete und zu vernachlässigende Rolle [Neu94]. Der Si-dotierte GaN Kristall besteht folglich aus einem hohen Anteil ladungskompensierter Störstellenkomplexe.

Des Weiteren besteht GaN aus einer hohen Dichte von Linienversetzungen, von denen die Versetzungen mit einer a-Burgers Vektorkomponente diejenigen sind, deren Linienrichtung durch Spannungsänderungen im Kristall veränderbar ist [Rom00] und die im n-GaN als Elektronenfallen wirken, so dass sie die Donatoratome kompensieren [Wri98]. Diese Versetzungen besitzen einen Versetzungskern, eben dort, wo die jeweilige Versetzung im Kristall entsteht. Dieser Versetzungskern besitzt ein Eigenspannungsfeld mit erhöhter Verzerrungsenergie infolge der leichten Deformation des den Versetzungskern umgebenden Kristallgitters [Cot49]. Eine Ga-Vakanz wird ebenfalls von einem Verzerrungsfeld umgeben. Um im Kristallgitter eine minimale Gesamtverzerrung und folglich einen energetisch günstigen Zustand zu erlangen, lagern sich die Ga-Vakanzen bzw. die $V_{\text{Ga}}\text{-Si}_{\text{Ga}}$ Komplexe vorzugsweise an den Versetzungskernen an [Wri98].

Um nun die Zunahme der Zugverspannung mit der Si-Dotierung zu erklären, können sowohl das „Oberflächenvermittelte Kletter-Modell“ (*surface-mediated climb model*) nach Follstedt et al. [Fol09] als auch das Modell der Maskierung des Versetzungskerns durch eine SiN Verbindung nach Dadgar et al. [Dad04] herangezogen werden. In beiden Modellen führt das Abknicken der Versetzungslinien zu einer Zunahme der tensilen Spannung. Nur sehen Follstedt

et al. die Ursache dafür in den an der Wachstumsoberfläche generierten Ga-Vakanzen und Dadgar et al. in der Anlagerung und Bildung von versetzungsmaskierendem SiN, welches das Fortlaufen der Linienrichtung in den darauffolgenden Atomlagen beeinflusst. Da aber die Ga-Vakanzen immer als Komplex mit einem Si-Dotanten auftreten, ist folglich dieser $V_{\text{Ga}}\text{-Si}_{\text{Ga}}$ Komplex für das Abknicken der Versetzungen verantwortlich.

Die Frage, ob die Si-induzierte Spannung in die Sättigung geht, kann nicht eindeutig beantwortet werden. Bei den vorgestellten Resultaten setzte eine Oberflächenaufrauung ein, noch bevor eine Spannungssättigung erkennbar war. Allerdings beobachteten mehrere Arbeitsgruppen ein Stagnieren [Mar11, Fol09] oder sogar ein Abklingen der Spannung [Xie11].

Interpretation zur Ursache der Si-induzierten Oberflächenaufrauung

Betrachtet man des Weiteren den Effekt der Oberflächenaufrauung mit erhöhter Si-Konzentration, lässt sich bei geringen bis moderaten Dotierungen ($10^{17}\text{-}10^{19}\text{ cm}^{-3}$) das Silizium ohne Degradation der Oberfläche einbauen. Erst bei höheren Dotierkonzentrationen kann die Bildung von Löchern bis zur vollständigen Aufrauung beobachtet werden. Diese Phänomene führten Lahreche et al. und Tanaka et al. auf die Formation der chemisch stabilen Verbindung Si_3N_4 zurück, welches die GaN Oberfläche chemisch passiviert und ein weiteres Überwachsen blockiert [Lah99, Tan00]. Deshalb wird Si im GaN als „Antisurfactant“ bezeichnet. Die chemische Passivierung setzt allerdings erst ab einer bestimmten Si Konzentration ein. Dazu wurden von Halibu et al. konkrete Berechnungen angestrengt, die die Bildung der chemisch stabilen Verbindung Si_3N_4 bestätigen, sobald im GaN eine kritische molare Si Konzentration erreicht ist [Hal06]. Daraus lässt sich schlussfolgern, dass die Bildung des stabilen und wachstumsblockierenden Si_3N_4 erst einsetzt, wenn zuvor alle Ga-Vakanzen durch die Bildung eines $V_{\text{Ga}}\text{-Si}_{\text{Ga}}$ Komplexes gesättigt sind und im Umkehrschluss keine weiteren Ga Vakanzen mehr gebildet werden können. Was geschieht, wenn der GaN Kristall mit einer Überdosierung dotiert wird, haben die hier präsentierten Experimenten deutlich gezeigt. Ab einer den Kristall überkompensierenden Dotierung von mehr als $2 \cdot 10^{19}\text{ cm}^{-3}$ wurde die Oberfläche unter Wasserstoffatmosphäre zurückgeätzt. Zu vermuten ist, dass es sich bei dieser Ätzreaktion um die gleiche, aber minderdotierte Reaktion wie beim „Meltback Etching“ handelt. Der Überschuss an ungebundenem Si, welches nicht als Passivierung die Oberfläche bedeckt, reagiert zusammen mit dem Ga, wodurch große Schichtbereiche abgetragen werden. Bei der Si Dotierung gibt es folglich 3 konzentrationsabhängige Stadien, die die Materialeigenschaften des GaN bestimmen:

1. Geringer Dotierung ($<1 \cdot 10^{19}\text{ cm}^{-3}$) mit einem Anteil an ladungskompensierter Störstellenkomplexen, die zu einem materialverträglichen Si Einbau führt.
2. Hohe Dotierung ($1\text{-}2 \cdot 10^{19}\text{ cm}^{-3}$) mit Si_3N_4 Oberflächenpassivierung infolge vollständig kompensierter Störstellenkomplexe, die zur Oberflächenaufrauung führt.
3. Sehr hohe Dotierung ($>2 \cdot 10^{19}\text{ cm}^{-3}$) mit wasserstoffgetriebener Reaktion zwischen Si und Ga, die zum Zurückätzen der Struktur führt.

Interpretation zur Ursache der Si-induzierten Kristallverschlechterung

Abschließend wird die Frage nach der Verschlechterung der Kristallqualität mit steigender Si-Dotierung geklärt. Es wurde zuvor bereits die bevorzugte Anlagerung der Ga-Vakanzen an

die Defektkerne erwähnt. Vielmehr sei hier die Behauptung aufgestellt, dass die Ga-Vakanzen diese Versetzungskerne erst erzeugen, da die Ga-Vakanzen ein für eine Linienversetzung günstiges Verzerrungsfeld erzeugen. Da die Bildung vermehrter Ga-Vakanzen mit der Si-induzierten Anhebung des Fermi-Niveaus einhergeht, ist die Zunahme der Kristalldefekte mit steigender Si-Dotierung eine natürliche Folge daraus.

Abschließend ist zu Silizium als Donator in GaN und den anderen Nitriden zu sagen, dass die Wahl dieses Dotanten einen Kompromiss zwischen guter, defektarmer Kristallqualität, welche für die Herstellung von hochwertigen Bauelementen, insbesondere von optischen Bauelementen, zwingend notwendig ist, und zwischen hoher Leitfähigkeit darstellt, die allerdings bis zu einer Ladungsträgerkonzentration von $1 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ aufgrund einsetzender Oberflächenaufrauung limitiert ist. Insgesamt sind der Einbau des Si und die damit einhergehenden strukturellen Veränderungen im GaN, insbesondere die Interaktion des Si Atoms mit den im GaN vorherrschenden Stufenversetzungen, noch nicht vollständig verstanden. Die Annahme einer chemischen Ätzreaktion zwischen GaN und dem eingebauten Si ab einer kritischen Konzentration von $1 - 2 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ erklärt die Spannungsrelaxation mit weiter steigendem Si Einbau. Mit Si ist keine hohe n-Leitfähigkeit ohne Qualitätseinbußen erreichbar.

5.3. Prozessentwicklung für die Germaniumdotierung

Um die zahlreichen sich widersprechenden Aussagen über die Germanium Dotierung zu prüfen, wurden systematisch die Ladungsträgerkonzentrationen von Germanium zwischen $3 \cdot 10^{18}$ bis $2.2 \cdot 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ variiert. Der Schichtaufbau der Teststrukturen ist identisch mit dem Aufbau der Si-dotierten Schichten und ist in Abb. 5.1 wiedergegeben. Wie schon bei den vorherigen Dotierexperimenten wurden die freien Ladungsträgerkonzentrationen mithilfe von Hall-Effekt Messungen bestimmt. An einigen ausgewählten Proben wurden zusätzlich SIMS Untersuchungen von der Firma RTG Mikroanalyse GmbH durchgeführt. Für die Dotierung wurden zwei verschiedene Germanium Präkursoren verwendet, das Metallorganikum Isobutylgerman (IBGe) und das Gas German (GeH_4), welches zu 10% in H_2 verdünnt vorliegt. Das Metallorganikum Isobutylgerman (IBGe) wird aus Bubbler zugeführt, wobei die Bublertemperatur den Partialdruck und gleichzeitig die Flussmenge des zugeführten Germananteils bestimmt. Die Bublertemperatur wurde zusätzlich zur Variation der Flussraten zwischen 0°C und 10°C variiert.

Einer der Gründe, warum sich Germanium trotz erfolgreicher Dotierung mit moderaten Ladungsträgerkonzentrationen bis in den 10^{20} cm^{-3} Bereich nicht als Donator für GaN durchgesetzt hat, ist wohl die wesentlich geringere Einbaueffizienz verglichen zum Silizium [Nak92, Sheu02]. Sowohl mit German (GeH_4) als auch mit der metallorganischen Quelle Isobutylgerman (IBGe) sind höhere molare Flussraten von bis zu drei Größenordnungen notwendig, um die gleiche Ladungsträgerkonzentration wie mit der Si-Dotierung (SiH_4) zu erreichen (Abb. 5.10). Mit einem molaren SiH_4 Fluss von 9 nmol/min lassen sich bereits Ladungsträgerkonzentrationen im Bereich von $5 \cdot 10^{18} \text{ cm}^{-2}$ erzielen. Dagegen müssen Flussraten von 9000 nmol/min eingestellt werden, um mit GeH_4 oder IBGe eine vergleichbare Ladungsträgermenge zu erreichen.

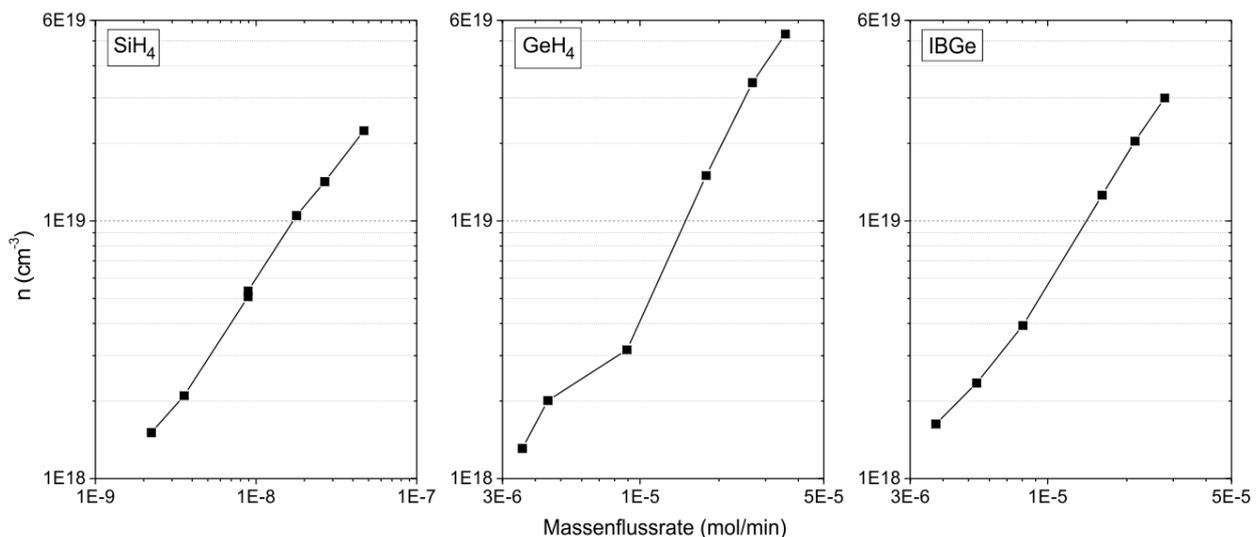


Abb. 5.10: Freie Ladungsträgerkonzentrationen der verschiedenen Donatorquellen in Abhängigkeit von der molaren Flussrate.

Allerdings besitzt die Dotierung mit Germanium einen immensen Vorteil, denn mit ihr sind wesentlich höhere Ladungsträgerkonzentrationen erreichbar. Die Limitierung für die Si-Dotierung bei den gewählten Wachstumsbedingungen lag dabei schon bei $2.2 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ auf-

grund der starken Oberflächenaufrauung. Mit der Germaniumdotierung können sogar Ladungsträgerkonzentrationen von $2.2 \cdot 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ erreicht werden, was eine Größenordnung über dem Maximalniveau der Siliziumdotierung liegt. Tabelle 5.3 gibt eine Übersicht, welche eingestellten Flussraten in den entsprechenden Ladungsträgerkonzentrationen resultierten. Die verwendeten Wachstumsparameter sind dieselben wie bei den Si-Dotierungen aus Abschnitt 5.2. Die Wachstumstemperatur lag bei den aufgelisteten Proben zwischen $1070 - 1080^\circ\text{C}$.

Tabelle 5.3: Übersicht der erzielten und mittels Hall-Effekt Messungen bestimmten Ladungsträgerkonzentrationen n aus den eingestellten Gasmengen f bzw. den molaren Flussraten Φ_M für die beiden Germanium Dotierquellen GeH_4 und IBGe . Beim IBGe steht die jeweilig eingestellte Bubblertemperatur in Klammern ergänzend zur Flussrate.

GeH ₄			IBGe		
n	$f_{\text{eff.}}$	Φ_M	n	$f_{\text{eff.}}$	Φ_M
cm^{-3}	sccm	nmol/min	cm^{-3}	sccm	nmol/min
$1.3 \cdot 10^{18}$	0.8	3569	$3.1 \cdot 10^{17}$	0.3 (5°C)	1044
$2.0 \cdot 10^{18}$	1.0	4462	$1.6 \cdot 10^{18}$	1.4 (0°C)	3757
$3.2 \cdot 10^{18}$	2.0	8923	$2.4 \cdot 10^{18}$	2 (0°C)	5367
$1.5 \cdot 10^{19}$	4.0	17846	$3.9 \cdot 10^{18}$	3 (0°C)	8050
$3.4 \cdot 10^{19}$	6.0	26769	$1.3 \cdot 10^{19}$	6 (0°C)	16100
$5.3 \cdot 10^{19}$	8.0	35692	$3.0 \cdot 10^{19}$	8 (5°C)	27849
$8.3 \cdot 10^{19}$	10.0	44615	$8.4 \cdot 10^{19}$	20 (5°C)	69623

Während die GaN Oberfläche mit erhöhtem Si Einbau von $1 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ und zudem abhängig von der Kristallqualität bzw. im Speziellen von der Zahl der a-Typ Versetzungen aufraute, bleiben die Germanium dotierten GaN Proben auch noch im oberen 10^{19} cm^{-3} Bereich transparent und weisen eine glatte, spiegelnde und ebene Oberfläche unabhängig von der Dotierhöhe und vom eingesetzten Ge-Präkursor auf, wie in den Nomarski Aufnahmen in Abb. 5.11 zu sehen ist. Lediglich die stark Ge-dotierten Proben wiesen vereinzelt Pits auf der Oberfläche auf, was darauf hindeutet, dass durch die Ge-Dotierung Versetzungen dekoriert werden. Diese

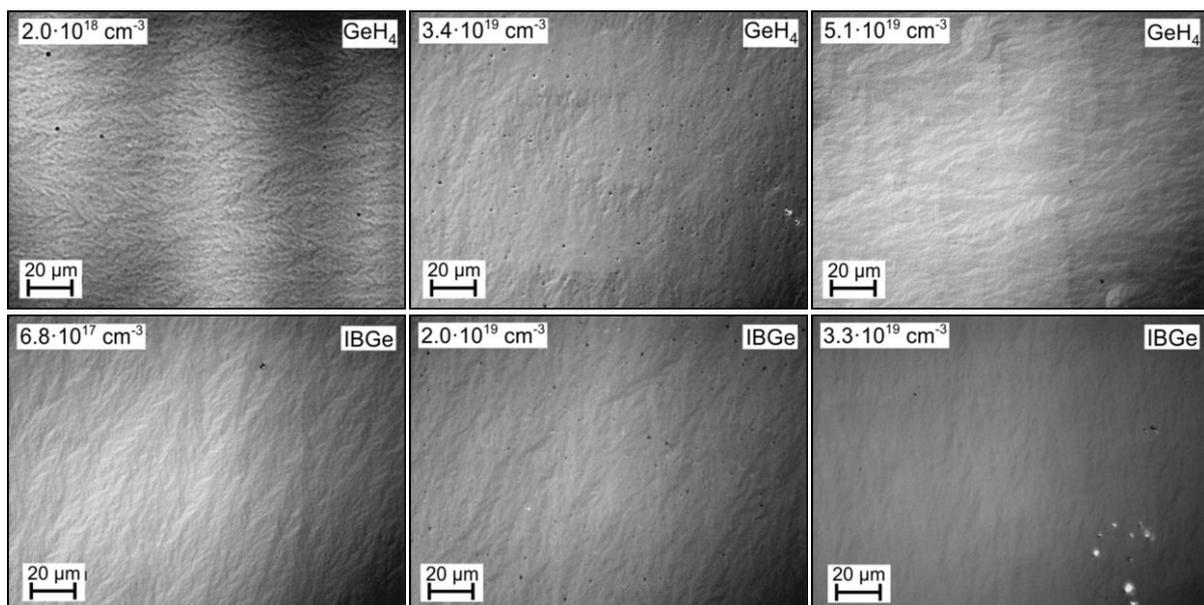


Abb. 5.11: Nomarski Aufnahmen der Germanium dotierten GaN Oberflächen für verschiedene Ladungsträgerkonzentrationen unter Verwendung zwei verschiedener Ge-Präkursoren. Die obere Serie wurde mit Hilfe von GeH_4 dotiert, die untere mit Hilfe des metallorganischen IBGe .

Pits sind nur bei sehr hohen Einbaumengen vorhanden, wobei sich die Dichte mit zunehmendem Ge-Einbau erhöht.

Nichtsdestotrotz ist die Gewinnung einer stabilen glatten Oberfläche mit moderater und sogar hoher Germaniumdotierung ein Resultat, welches bisher nur bei den MOCVD-Proben der Uni Magdeburg erreicht wurde [Fri13, Dad11b, Wie13]. Sowohl Nakamura et al. [Nak93], als auch Xie et al. [Xie11a] berichteten, dass bei ihnen die GaN:Ge Oberfläche bereits ab einer Ladungsträgerkonzentration von $1 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ aufraute.

Daher ist anzunehmen, dass die Wahl der Wachstumsparameter einen entscheidenden Einfluss auf die Kristallqualität und darüber hinaus auch auf die Einbaueffizienz hat. Letzteres wird in Abb. 5.12 deutlich, wenn man die freien Ladungsträgerkonzentrationen in Abhängigkeit von den molaren Flüssen der eigenen Experimente mit denen von Nakamura et al. vergleicht, welcher die gleichen Präkursoren verwendete [Nak92]. Im Vergleich der Si-Dotierungen in Abb. 5.12 (a) sind die Einbaueffizienzen ähnlich. Dagegen zeigt die Gegenüberstellung der Germaniumdotierungen in Abb. 5.12 (b) einen immensen Unterschied. Hier weichen die Einbaueffizienzen um drei Größenordnungen voneinander ab. Laut den Nakamura Daten haben seine GeH_4 Versuche eine um nur eine Größenordnung geringere Einbaueffizienz als die der Konkurrenzquelle SiH_4 . Letztendlich führen die Nakamura Wachstumsparameter zwar zu einer effizienteren Germaniumdotierung, aber die eigenen, weniger effizienten Bedingungen resultieren in beeindruckend hohen Ladungsträgerkonzentrationen mit glatten Oberflächen.

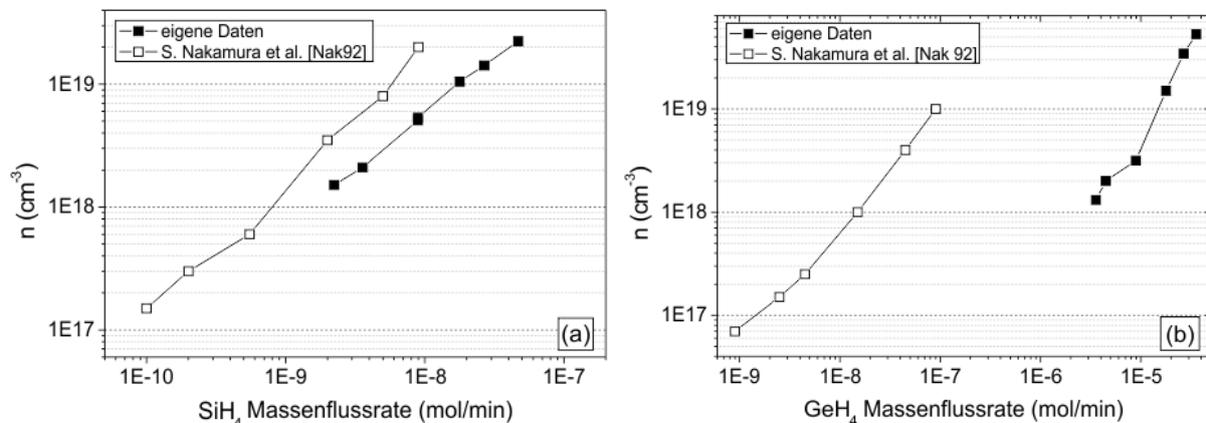


Abb. 5.12: Vergleich der Einbaueffizienzen der eigenen Wachstumsexperimente mit den Referenzdaten von Nakamura et al., welcher die gleichen Präkursoren verwendet [Nak92]. In (a) werden die Si-dotierten Proben unter Verwendung von SiH_4 verglichen, in (b) die Ge-dotierten unter Verwendung von GeH_4 .

Unterschiedliche Einbaueffizienzen wurden auch bei ähnlichen Versuchen mit anderen Si Präkursoren mit einer Abhängigkeit der Einbaueffizienz von der Bindungskettenlänge der Ausgangsmoleküle gezeigt. So baut sich Si aus der einfacheren Verbindung SiH_4 10-fach besser ein als das komplexere Si_2H_6 (Disilan) ein [Sheu02]. Die gleiche Diskrepanz ist für verschiedene Germaniumquellen zu erwarten, wie z.B. für GeCl_4 verglichen zu GeH_4 . GeH_4 und IBGe besitzen jedoch die gleich Einbaueffizienz, vgl. Abb. 5.10.

Eine weitere Frage, die sich mit der Einbaueffizienz der Donatoren stellt, ist, ob es eine maximale Dotiergrenze gibt. Laut Sheu et al. sei bisher keine Limitierung für GaN:Si beobachtet worden [Sheu02]. Damit ist aber eine Ladungsträgerkompensation gemeint, wie sie bei-

spielsweise bei GaAs zu beobachten ist. In den Resultaten aus Abschnitt 5.2. wird jedoch klar aufgezeigt, dass es für Silizium in der Tat eine obere Einbaugrenze gibt, da die Oberfläche bei einem Überangebot des Si stark aufräut. Dies wird von Halibu et al. untermauert, die eine kritische molare Si-Konzentration im GaN berechneten, bei der das SiH_4 mit dem Ammoniak (NH_3) das chemisch stabile und elektrisch isolierende Si_3N_4 bildet, welches die GaN Oberfläche passiviert und ein weiteres überwachsen blockiert, was wiederum eine klare obere Einbaugrenze darstellt [Hal06].

Etwas anders sieht es hingegen bei der Germaniumdotierung aus. Mit steigendem GeH_4 Fluss wächst die Ladungsträgerdichte für beide Ge-Präkursoren linear an, wobei sich keine Sättigung der Ladungsträgerkonzentration andeutet. Die maximal erreichte Ladungsträgerkonzentration der hier gezeigten GaN:Ge Proben lag bei $2.2 \cdot 10^{20} \text{ cm}^{-3}$, wobei die zugehörige SIMS Messung einen Germaniumgehalt von $4 \cdot 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ ergab. Entsprechend sind nur 65% der eingebauten Germaniumatome bei dieser hohen Konzentration als Donator aktiviert. Die restlichen Atome sind elektrisch inaktiv und vermutlich durch tiefe Störstellen kompensiert. Bei Betrachtung einer geringer dotierten GaN:Ge Probe mit einer Ladungsträgerdichte von $3.3 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ ergab die entsprechende SIMS Messung ($n_{\text{SIMS}} = 3.5 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3}$) einen weitaus höheren aktivierten Anteil von 94%. Schließlich scheint der Einbau aktivierbarer Donatoren mit zunehmendem Germaniumgehalt in die Sättigung zu gehen. Hagemann et al. bestätigen ebenfalls eine maximale Dotierhöhe, die mit $4 \cdot 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ erreicht ist und beobachteten mit einer weiteren Steigerung des Germaniumgehaltes die Wandlung der glatten Oberflächemorphologie in grobe Körner infolge einer Phasenseparation in Ge_3N_4 und rein metallisches Germanium [Hag04]. Die Strukturen von Hagemann et al. sind aber in einer MBE hergestellt, in der Ge_3N_4 bei den verwendeten Wachstumstemperaturen stabil ist. In der MOCVD ist GeN nicht stabil, da es bereits bei 700°C zerfällt [Car90].

Zusätzlich zu den hohen notwendigen Flussraten für eine moderate Ladungsträgerkonzentration ist der Germaniumeinbau empfindlich von der Wachstumstemperatur abhängig. Zur Demonstration des temperaturabhängigen Einbaus wurde die GeH_4 Flussrate konstant gehalten und die Wachstumstemperatur zwischen 1060°C und 1110°C in 10 Gradschritten variiert, siehe Abb. 5.13. Bei hohen Temperaturen ist der Einbau des Germaniums wegen des Dampfdruck-getriebenen Einbaus limitiert [Hag04]. Aufgrund der hohen Oberflächentemperatur

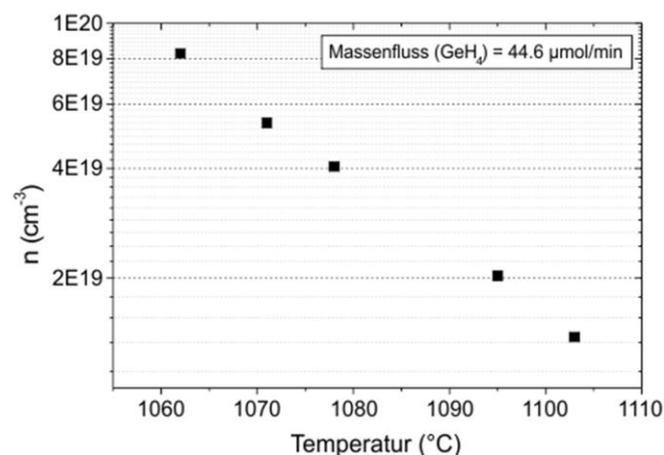


Abb. 5.13: Temperaturabhängigkeit des Germaniumeinbaus in den GaN Kristall bei konstantem GeH_4 Fluss. Aufgetragen ist die Suszeptortemperatur über der freien Ladungsträgerdichte, welche mittels Hall-Effekt-Messungen ermittelt wurde.

desorbieren die Germaniumatome wieder, was zu einem verminderten Germaniumgehalt in der GaN Schicht führt. Mit sinkender Wachstumstemperatur, welche mit Hilfe des EpiCurve[®]TT in-situ Sensors an der Suszeptoroberfläche gemessen wurde, steigt der Germanium Einbau und somit auch die freie Ladungsträgerkonzentration. Wird die Temperatur um 50°C gesenkt, erhöht sich die Einbaueffizienz bereits um eine Größenordnung. Die optimale Wachstumstemperatur liegt für die verwendete Reaktorgeometrie und der übrigen Prozessparameter bei 1060°C. Allerdings sank bei dieser Wachstumstemperatur mit dem Zuschalten des GeH₄ (oder IBGe) die Wachstumsrate um etwa 0.1 µm/h. Im Vergleich dazu reduzierte sich die Wachstumsrate beim Zuschalten des SiH₄ nur um etwa 0.05 µm/h, was seine Ursache in den unterschiedlichen Atomgrößen von Si und Ge haben könnte, welche die Diffusion zur Waferoberfläche beeinträchtigt und die Oberflächenadsorption bei größeren Atomen reduziert. Für die Germanium Dotierung wurde die Wachstumstemperatur für eine maximale Wachstumsrate im transportbegrenzten Wachstumsbereich optimiert, welche bei etwa 1070°C lag und bei der die Wachstumsrate nicht einbricht, aber die Einbaueffizienz noch hinreichend hoch ist.

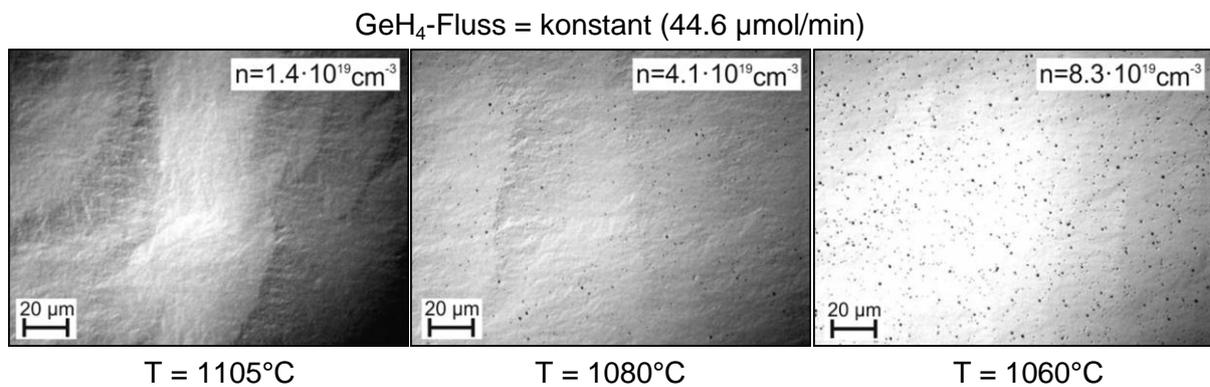


Abb. 5.14: Nomarski-Aufnahmen des temperaturabhängigen Germaniumeinbaus bei konstantem GeH₄ Fluss von 44.6 µmol/min. Neben der verbesserten Einbaueffizienz, weisen die GaN Oberflächen bei reduzierter Temperatur vermehrt Pits auf.

Mit dem Absenken der Wachstumstemperaturen erhöht sich zwar die Einbaueffizienz, allerdings wird dadurch nicht nur die Wachstumsrate leicht reduziert, unglücklicherweise ist zudem eine Defektzunahme zu beobachten, wie die Nomarski-Aufnahmen in Abb. 5.14 zeigen. Mit zunehmendem Germaniumeinbau infolge der Temperatursenkung erscheinen vermehrt Pits an der Oberfläche, die von dekorierten Linienversetzungen herrühren, die an der Oberfläche angelangt in Löchern enden. Bei der niedrigsten Wachstumstemperatur von 1060°C wurde zwar eine hohe Ladungsträgerdichte von $8.3 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ erreicht, allerdings nimmt die Zahl der Pits bei dieser Konzentration schon eine hohe Dichte an. Für die Dotierung mit Germanium gibt es infolgedessen ein enges Temperaturfenster ($\sim 1070^\circ\text{C}$), bei dem das Germanium zwar mit schwacher Effizienz eingebaut wird, aber die Wachstumsbedingungen gerade gut genug sind, um eine glatte und pitarme Oberfläche zu gewährleisten.

Da die Bildung dieser Pits durch die Qualität der darunterliegenden Pufferstruktur stark beeinflusst werden kann, wurde die Pufferqualität mit Hilfe einer defektreduzierenden SiN_x Maske verbessert. Den Vergleich zwischen GaN:Ge Oberflächen mit defektreichem und defektreduziertem Puffer gibt Abb. 5.15 wieder. Das Ergebnis zeigt eine ausgezeichnet glatte, hochdotierte Schicht mit einer erheblich reduzierten Pitanzahl. Nur noch sehr vereinzelt lassen sich

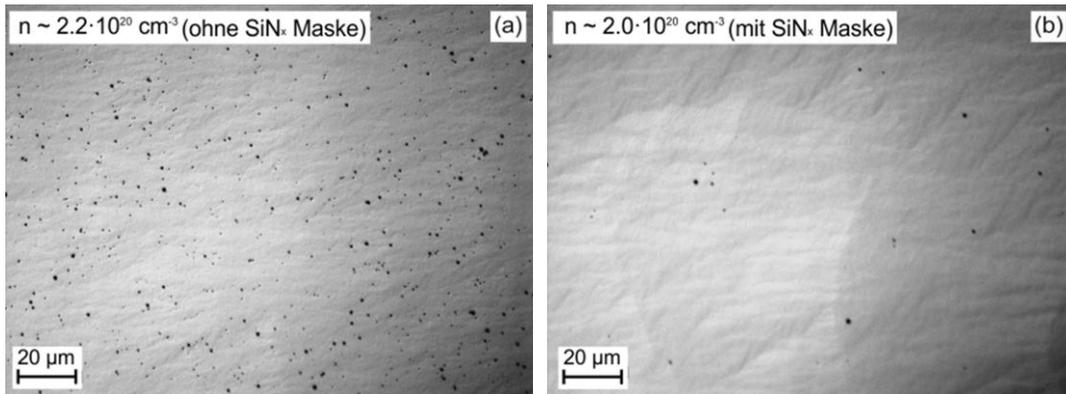


Abb. 5.15: Vergleich der Oberflächenqualität von hochdotierten GaN:Ge Proben ($n \sim 2 \cdot 10^{20} \text{ cm}^{-3}$). Eine gehäufte Pitanzahl ist bei hohem Germaniumeinbau an der GaN Oberfläche zu beobachten (a). Mithilfe einer defektreduzierenden SiN_x Maske kann die Pitmenge erheblich reduziert werden (b).

diese Oberflächenstörungen erkennen. Folglich ist es möglich eine hoch n-leitfähige GaN Schicht herzustellen, die, verglichen zur Si-Dotierung, mehr als eine Größenordnung höhere Ladungsträgerkonzentration aufweisen und zusätzlich eine einwandfrei glatte Oberfläche ohne jegliche Aufrauung besitzen kann. Eine wachstumsblockierende Passivierung durch die Bildung einer Ge_3N_4 Verbindung kann bei der Germaniumdotierung nicht vorkommen, da die Ge_3N_4 Verbindung, anders als das stabile Si_3N_4 bei der Si-Dotierung, schon bei Temperaturen ab 700°C zerfällt [Car90].

Schon von der Siliziumdotierung ist bekannt, dass es nicht möglich ist das GaN ohne einen undotierten Puffer darunter zu dotieren. Wird die undotierte Pufferschicht weggelassen, wächst das GaN rau auf und kann nicht zu einer geschlossenen 2D Schicht koaleszieren. Die Ursache dafür liegt darin, dass GaN in den initialen Wachstumsstadien zu allererst 3D-artig wächst und erst in späteren Atomlagen ein vollständiges 2D-Wachstum erlangt. Wird der Dotant schon während des inselartigen Wachstumsstadiums zugeschaltet, behindern die Dotieratome die Ga-Diffusion an der Probenoberfläche, so dass kein 2D-Wachstum erreicht wird [Dad13a].

Das gleiche gilt auch für die Germaniumdotierung, was in den Fotografien in Abb. 5.16 veranschaulicht ist. Jede Ge-dotierte Struktur, solange sie mit einem u-GaN Puffer gewachsen

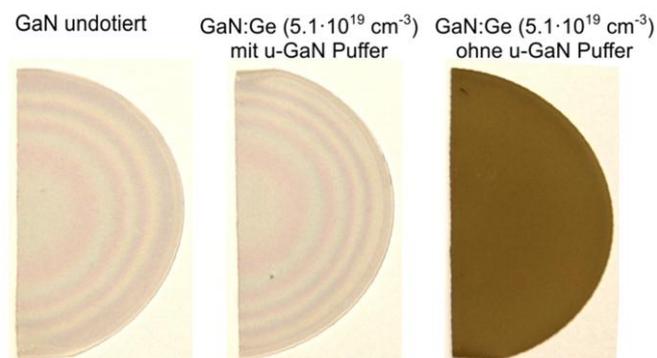


Abb. 5.16: Fotografien undotierter und dotierter GaN Proben. Gegenübergestellt sind undotiertes GaN, hochdotiertes GaN:Ge gewachsen auf einem undotiertem GaN Puffer und hochdotiertes GaN:Ge ohne Puffer.

wurde, ist transparent und glatt und besitzt die gleiche phänomenologische Qualität wie die undotierte Referenzprobe (ganz links). Wird jedoch das GaN Wachstum bereits mit geöffneter Dotierquelle begonnen, raut die Oberfläche, genau wie beim Si, auf und die gesamte Schicht entwickelt zusätzlich eine braune Färbung, siehe Abb. 5.16 rechts. Es ist zu vermuten, dass diese braune Färbung von einer Phasenseparation reinen Germaniums herrührt, die im umliegenden GaN Kristall eine charakteristische Braunfärbung verursacht. Schließlich ist mit den oberflächendiffusionseinschränkenden Dotanten, ob Si oder Ge, kein glattes Schichtwachstum in den ersten GaN Wachstumslagen erzielbar, warum die durchgängig dotierten Schichtstrukturen grundsätzlich aufrauen. Bevor die Dotierquelle zugeschaltet wird, muss das darunterliegende u-GaN vollständig koalesziert sein.

Als nächstes wird der Einfluss der Germaniumfremdatome auf die Spannungsänderung des Kristalls untersucht. Dazu werden zunächst die in-situ Krümmungsmessungen herangezogen (Abb. 5.17).

Bei der Betrachtung dieser für verschiedene Germaniumdotierungen (Abb. 5.17 a) ist insbesondere der Bereich zwischen undotiertem GaN (u-GaN) und dotiertem GaN (GaN:Ge) von Interesse. Bei allen Proben geht der Kurvenanstieg von undotierter zu dotierter Schicht änderungsfrei über. Der Germaniumeinbau führt demnach zu keinem zusätzlichen Spannungsaufbau, wie es bei der Siliziumdotierung der Fall ist. Die blaue Kurve mit der höchsten Ladungsträgerkonzentration von $5.1 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ lässt zwar eine leichte Änderung des Anstiegs bei Zuschalten des Germaniumdotanten vermuten, allerdings ist die Signal-zu-Rausch Qualität bei diesen Krümmungsmessungen schwach, weshalb der Übergang nicht eindeutig sichtbar ist. Nachfolgende Röntgenmessungen belegen, dass alle Germanium dotierten Proben den gleichen Spannungszustand wie der darunterliegende Puffer besitzen (siehe Abb. 5.18).

Außerdem sei angemerkt, dass der Krümmungsverlauf am Grenzflächenübergang deutlicher sichtbar gemacht wurde, indem die Krümmungskurven zueinander verschoben wurden. Deshalb sind die Krümmungswerte relativ zu einander zu betrachten. Des Weiteren ist der Beginn der Krümmungskurven für jede Probe unterschiedlich, was auf die Anlagenschwankungen und die daraus folgenden unterschiedlichen Pufferqualitäten zurückzuführen ist.

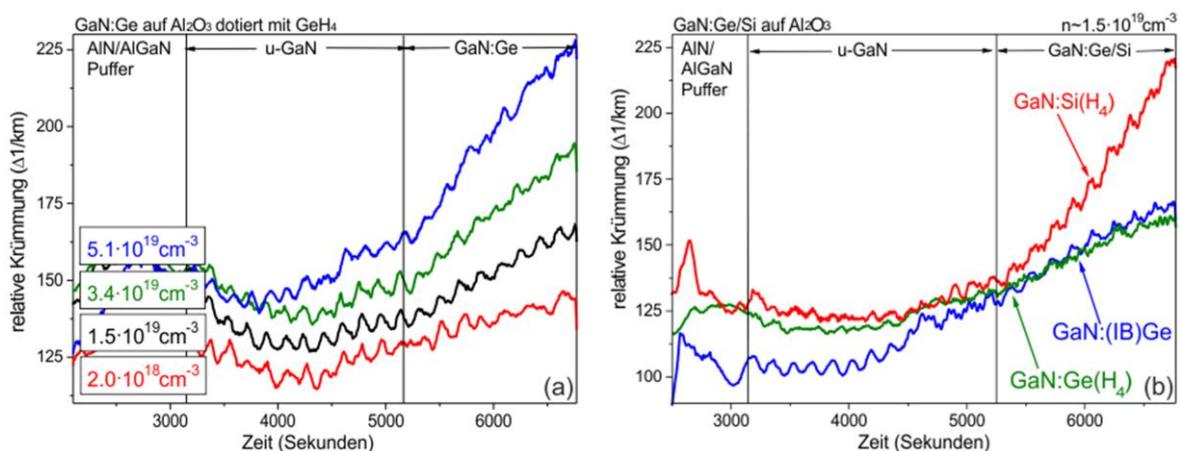


Abb. 5.17: In-situ Krümmungsmessungen der GaN Strukturen mit dotierter Abschlusschicht. (a) mit Germanium dotierten GaN Strukturen verschiedener Ladungsträgerkonzentrationen und (b) dotierte GaN Strukturen, die mit einer Ladungsträgerdichte von $n \sim 1.5 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ mithilfe von SiH_4 , GeH_4 und IBGe dotiert wurden.

Den Vergleich des Spannungseinflusses der unterschiedlichen Präkursoren gibt Abb. 5.17 (b) wieder. Bei gleicher Ladungsträgerkonzentration verhalten sich beide Germaniumquellen identisch und zeigen keinerlei Einfluss auf eine Spannungszunahme im dotierten Kristall. Im Vergleich dazu nimmt die Spannung durch die SiH_4 -Zugabe bei gleicher Dotierkonzentration erheblich zu (rote Kurve).

Eine weiterführende Spannungsanalyse wurde mit Röntgendiffraktometriemessungen durchgeführt (Abb. 5.18 (a und b)). Analog zu den Untersuchungen an den Si-dotierten Strukturen (Abschnitt 5.2) wurde die vertikale Verteilung aller im Schichtstapel vorhandenen c- und a-Gitterkonstanten der Germanium dotierten Proben verschiedener Ladungsträgerniveaus mit Hilfe der $\omega/2\theta$ Messungen sowohl in symmetrischer Bragg-Geometrie als auch in der Transmissionsgeometrie (Laue-Geometrie) vermessen.

Sowohl in der symmetrisch- als auch in der transmittierend-gebeugten Röntgensignatur ist für alle Ladungsträgerdichten keine Reflexaufspaltung zu beobachten.

Lediglich ein einzelner ausgeprägter Reflex ist erkennbar und entspricht der Überlagerung der beiden GaN Schichten, dem stark kompressiv verspannten undotierten Puffer und der Ge-dotierten Schicht darauf, welche infolge ihrer identischen Verzerrung zusammenfallen. Die Röntgenkurven der symmetrischen (0002) Messung (a) sind vergleichsweise schmal und weisen daher auf eine gute Kristallqualität mit wenig vertikalen Spannungsinhomogenitäten hin.

Die XTS Messungen in Abb. 5.18 (b) belegen anhand der fehlenden Aufspaltung des $(10\bar{1}0)$ GaN Reflexes, dass die Ge-dotierte Schicht vollständig kohärent auf dem darunterliegenden Puffer aufgewachsen ist. Kombiniert man die Ergebnisse der beiden Röntgenmethoden, zeigt sich trotz eines hohen Germaniumeinbaus eine durchgehend stabile GaN Einheitszelle mit unverändertem c/a Verhältnis.

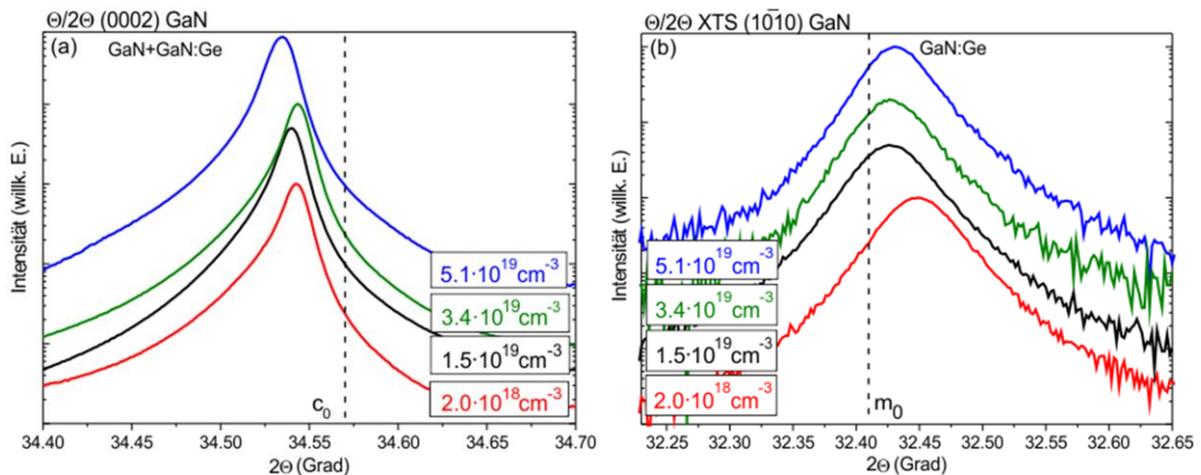


Abb. 5.18: $\omega/2\theta$ -Röntgenmessungen an Germanium dotiertem GaN in (a) symmetrischer Beugungsgeometrie und (b) in Transmissionsgeometrie (Laue-Geometrie) für verschiedene Ladungsträgerkonzentrationen. Die Proben wurden mit GeH_4 dotiert.

Eine leichte Reflexaufspaltung war ausschließlich bei den hochdotierten Proben zu verzeichnen, die eine sehr hohe Pittdichte wegen des defektreichen Puffers mit geringer Qualität besitzen. Die Verbesserung der Pufferqualität ließ auch die Reflexaufspaltung verschwinden. Die Schwankungen in der Reflexlage haben ihren Ursprung auch hier wieder in den unterschiedli-

chen Pufferqualitäten durch vor allem reaktorbedingte Temperaturschwankungen im initialen Wachstum.

Tieftemperatur-Photolumineszenzmessungen unterstützen die Aussagen der Röntgen- und der in-situ Krümmungsmessungen. Der Vergleich der bandkantennahen D^0X -Lumineszenz in Abb. 5.19 (a) zeigt deutlich den Spannungsunterschied zwischen den verschiedenen dotierten Proben in Abhängigkeit der eingesetzten Präkursoren. Während die Spektren der GaN:Ge Proben eine ausgeprägte Lumineszenz bei 356 nm aufweisen, ist die Lumineszenz der GaN:Si Schicht mit 356.7 nm rotverschoben. Alle Spektrenmaxima liegen im kurzwelligen Bereich relativ zur spannungsfreien GaN Lumineszenz, d.h. alle dotierten Schichten sind druckverspannt. Dennoch weist die Si-dotierte Probe eine deutlich geringere kompressive Spannung als die beiden GaN:Ge Strukturen auf. Die leichte Lumineszenzverbreiterung der beiden höher dotierten Proben (rot und grün) hat seine Ursache in der gesteigerten Anzahl freier Ladungsträger.

Interessanterweise besitzen die Schichten unterschiedlich starke Defektlumineszenzen, welche unmittelbar mit der Materialreinheit korrelieren, siehe Abb. 5.19 (b). Die Si-dotierte Probe weist eine um den Faktor 2 stärkere gelbe Lumineszenz auf als die beiden GaN:Ge Strukturen. Diese starke Defektlumineszenz geht mit einer geringeren Kristallqualität einher. Folglich führt der Si Einbau zu einer deutlicheren Verschlechterung der Materialqualität, der Ge Einbau dagegen weniger stark.

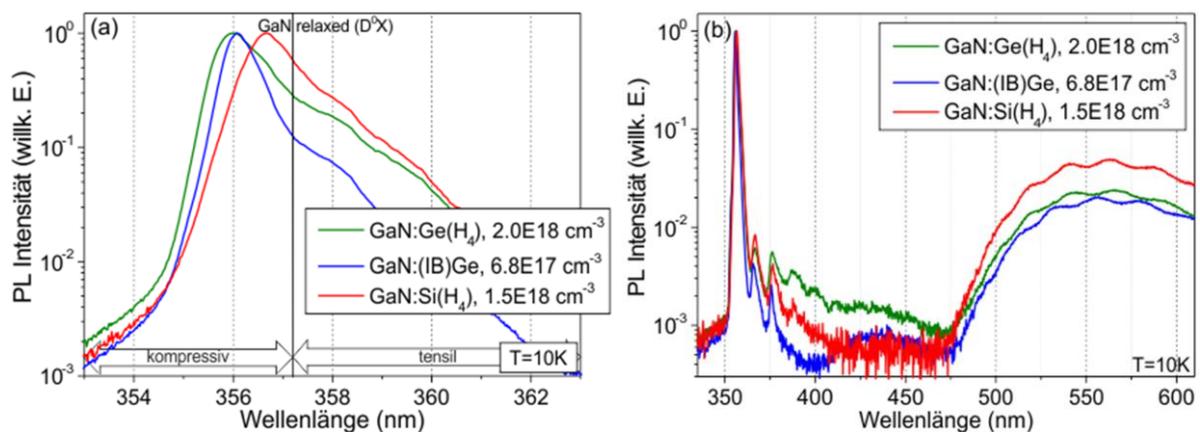


Abb. 5.19: Tieftemperatur PL-Messungen an den Si- und Ge-dotierten Strukturen. Die PL-Spektren in (a) zeigen die höher spektral aufgelösten Lumineszenzmaxima der GaN D^0X Lumineszenz. Der gesamte Spektralbereich der Probenlumineszenz ist in (b) dargestellt, in dem zusätzlich die Defektlumineszenz (gelbe Lumineszenz) zu sehen ist.

Eine genauere Aussage über die Materialgüte kann mit Hilfe der röntgenographischen ω -Messungen getroffen werden. Entsprechend der untersuchten Kristallebenen geben die ω -Halbwertsbreiten Aufschluss über den Tilt (Abb. 5.20 a) und den Twist (Abb. 5.20 b) der GaN Kristallite, welche wiederum ein Maß für die Dichte der Liniendefekte darstellen. Da mit erhöhtem Ge-Einbau vereinzelt Pits auf der Oberfläche durch mit Ge dekorierte Versetzungen auftauchen, kann hier nun eine Aussage darüber getroffen werden, welche Defekte vorwiegend in den dotierten Schichten vorliegen.

Betrachtet man die ω -Halbwertsbreiten der GaN:Ge Schichten, ist ein leichter Qualitätsvorteil durch die Verwendung des GeH_4 Präkursors zu erkennen. Zwar streuen die Werte recht stark

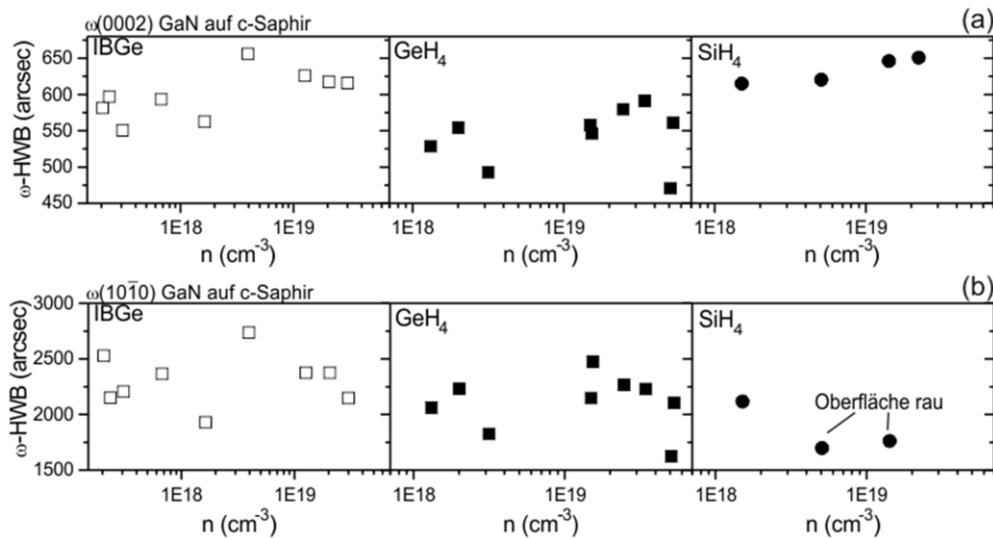


Abb. 5.20: ω -Halbwertsbreiten der verschieden dotierten GaN Schichten (a) gemessen am symmetrischen (0002) GaN Reflex und (b) am im streifenden Einfall gemessenen (10 $\bar{1}$ 0) GaN Reflex. Entsprechend der eingesetzten Dotierquellen (IBGe, GeH $_4$, SiH $_4$) sind die Daten symbolkodierte.

um 520 arcsec im Tilt und um 2200 arcsec im Twist, dennoch besitzen die mit GeH $_4$ dotierten Proben eine bessere Kristallqualität mit weniger Defekten als die übrigen Proben. Die Qualitäten der IBGe behandelten Schichten sind dagegen etwas geringer und bewegen sich um 600 arcsec im Tilt und 2400 arcsec im Twist. Die starke Schwankung insbesondere bei den Germanium dotierten Proben ist eine Folge der variierenden Pufferqualitäten aufgrund instabiler Wachstumsbedingungen und dem Zusammenführen mehrerer Wachstumsserien aus Reproduktionsexperimenten.

Bei den Messungen an den Si-dotierten Proben sind nur die Tiltwerte aussagekräftig. Die Messungen im streifenden Einfall sind wegen der aufgerauten Oberfläche durch Streueffekte verfälscht. Insgesamt bewegen sich alle Proben in demselben Qualitätsbereich. Trotz der Streuung ist kein Trend einer Kristallverschlechterung mit steigendem Ge-Einbau zu erkennen. Stattdessen bleibt die Kristallinität mit steigendem Ge-Gehalt gleichbleibend. Bei den Si-dotierten Schichten ist allerdings ein leichtes Ansteigen des Tilts mit steigender Konzentration zu verzeichnen.

Sowohl die Ge- als auch die Si-dotierten Schichten weisen anhand des hohen Twists einen vielfach höheren Anteil an a-Typ Versetzungen auf verglichen zur Anzahl der c-Typ Versetzungen, welche aus den Tiltmessungen hervorgehen. Dies ist auch bei undotierten GaN Strukturen der Fall, nur dass mit der Zugabe des Dotanten Silizium ein zusätzliches Ansteigen der Defektdichte beobachtet wurde [Mor09]. Aus den hier gewonnen Untersuchungen mit Germanium kann diese Beobachtung nicht bestätigt werden, solange die Konzentrationen im Bereich von 10 19 cm $^{-3}$ bleiben.

Die elektrischen Eigenschaften sind neben den strukturellen Eigenschaften die wesentlichsten, die es bei der Dotierung zu kennen gilt. Für eine gute n-Leitfähigkeit sind daher die Elektronenmobilität μ und der spezifische Widerstand ρ qualitätsentscheidend für ein geeignetes Bauelement. Eine hohe Mobilität mit einem geringen Widerstand sind bei möglichst hohen Ladungsträgerdichten das Ziel. Aus den Raumtemperatur-Hall-Effekt Messungen wurden entsprechend die elektrischen Eigenschaften gewonnen und in Abb. 5.21 über der Ladungsträgerdichte für Silizium und Germanium abgetragen. Aufgrund der Elektronenstreuung an

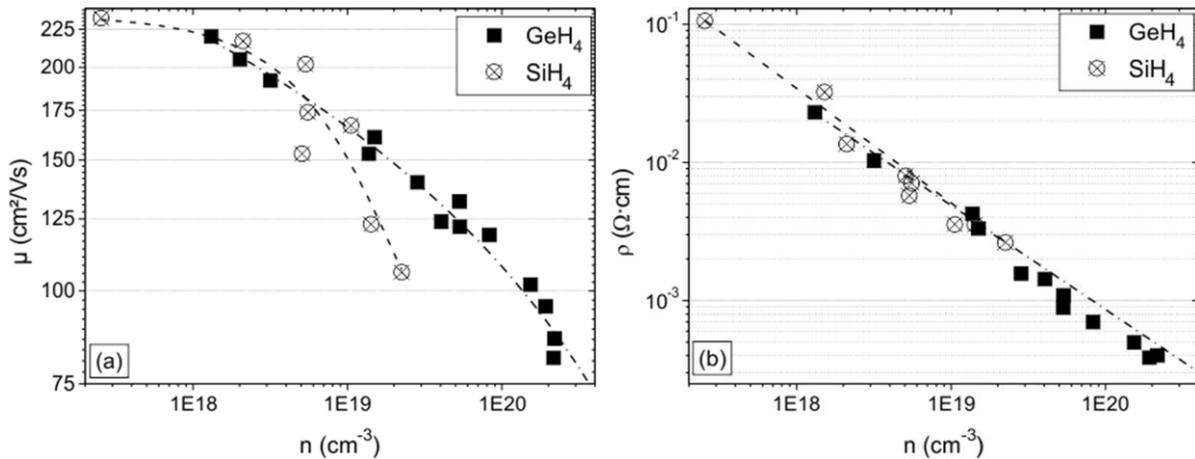


Abb. 5.21: Elektronenmobilität (a) und spezifischer Schichtwiderstand (b) als Funktion der freien Ladungsträgerkonzentration der Si- und Ge-dotierten Schichten.

ionisierten Donatorstörstellen, sinkt die Mobilität mit zunehmender Ladungsträgerdichte. In Abb. 5.21 (a) zeigt der Vergleich der Mobilitäten der SiH₄ und GeH₄ behandelten Proben, dass sich beide Donatoren im mittleren Dotierbereich bis $1 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ gleich verhalten. Erst bei höheren Konzentrationen wird deutlich, dass die Mobilität der Si-dotierten Proben stärker absinkt, als die der Ge-dotierten. Die Ursache dafür könnte in einer zunehmenden Defektstreuung liegen, da mit dem Si-Einbau mehr Defekte induziert werden, als mit Germanium. Deswegen besitzen die GaN:Ge Proben im hochkonzentrierten Bereich eine höhere Mobilität. Ein Blick auf Abb. 5.21 (b) zeigt dagegen, dass die spezifischen Widerstände der GaN:Si und GaN:Ge Proben gleich sind. Die Widerstände beider Serien fallen mit steigendem Ladungsträgergehalt. Die maximal dotierte GaN:Ge Struktur erreichte einen Widerstand von $0.4 \text{ m}\Omega \cdot \text{cm}$, was mit der Mobilität von $81.3 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ eine hervorragende Eignung für die Bauelementanwendung darstellt.

Im Vergleich zu dotierten HVPE GaN Proben, schneiden die hier vorgestellten Schichten bei einer Ladungsträgerkonzentration von $5.3 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ mit einem geringeren Widerstand von $0.89 \text{ m}\Omega \cdot \text{cm}$ etwas besser ab, als das entsprechende HVPE GaN:Ge, welches bei $n_{\text{Ge}} = 3.4 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ einen Widerstand von $1.3 \text{ m}\Omega \cdot \text{cm}$ besitzt [Osh10].

Welche elektrische Qualität die hier vorgestellten Dotierungen, insbesondere die Germaniumdotierung, tatsächlich besitzen, wird besonders in der Gegenüberstellung zu den Ergebnissen anderer Arbeitsgruppen deutlich (Abb. 5.22).

Betrachtet man die Mobilitäten der Ge-dotierten Schichten in Abb. 5.22 (a) schneiden die eigenen Proben nahezu mit der gleichen Beweglichkeit wie Ge-dotierte HVPE Proben ab. Die MOVPE-Referenzproben von Nakamura et al. zeigen sogar mit höherer Ladungsträgerdichte eine geringere Mobilität, was für die herausragende elektrische Qualität der eigenen Schichten spricht [Nak92].

Dagegen sind Mobilitäten der eigenen Dotierung mit Silan etwas schwächer im Vergleich zum den Si-dotierten HVPE GaN, vgl. Abb. 5.22 (b). Allerdings zeigen die eigenen GaN:Si Strukturen ab einem elektrisch aktiven Si-Gehalt von $2 \cdot 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ eine höhere Mobilität als die Resultate von Nakamura et al. [Nak92].

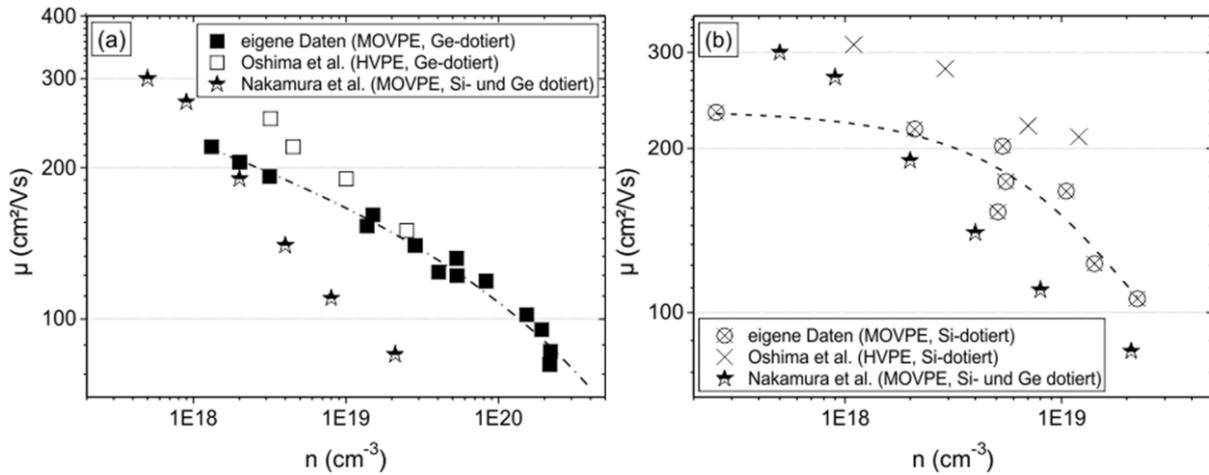


Abb. 5.22: Elektronenmobilität als Funktion der freien Ladungsträgerkonzentration für die Ge-dotierten Schichten (a) und Si-dotierten Schichten (b). Zusätzlich zu den eigenen Daten sind die Dotierungsergebnisse der anderen Forschergruppen zum Vergleich dargestellt [Nak92, Osh10].

Schlussfolgernd kann gesagt werden, dass die elektrischen Eigenschaften der vorgestellten Strukturen eine sehr hohe Qualität aufweisen und sogar an die Güte von reineren HVPE Proben heranreichen. Dabei besitzt die Germaniumdotierung insbesondere im Bereich höherer Leitfähigkeiten bessere elektrische Eigenschaften als das bisher etablierte Silizium.

Zusammenfassung

Abschließend ist festzustellen, dass die bisher etablierte Si-Dotierung gerade im hohen Dotierbereich keine ausreichende elektrische Leitfähigkeit, als auch Materialqualität liefert.

Für den Anspruch einer hohen n-Leitfähigkeit im GaN ist daher auf den Dotanten Germanium zurückzugreifen. Er steht den elektrischen Eigenschaften der Si-Dotierung im mittleren Dotierbereich in nichts nach, und weist bei hohen Dotierungen über $1 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ sogar deutlich bessere Eigenschaften bezüglich Spannungszunahme, Oberflächenmorphologie und Mobilität auf. In Tabelle 5.4 sind die vorteilhafteren Eigenschaften der Germaniumdotierung noch einmal den der Si-Dotierung gegenübergestellt.

Germanium ist deshalb eine hervorragende Alternative für die n-Leitfähigkeit im GaN und den übrigen Gruppe-III-Nitriden und sollte für die Ablösung der Siliziumdotierung dringend in Betracht gezogen werden.

Tabelle 5.4: Gegenüberstellung der Kerneigenschaften der Si-Dotierung und der Ge-Dotierung im GaN auf Saphir Substraten (Struktur siehe Abb. 5.1).

	Si-Dotierung	Ge-Dotierung
max. Ladungsträgerdichte	$2.2 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3}$	$2.2 \cdot 10^{20} \text{ cm}^{-3}$
Oberflächenaufräufung	ja	nein
Defektzunahme	stark	gering, bei hohem Ge-Gehalt
Verspannung (@ $1.4 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3}$)	0.42 GPa (zugverspannt)	-0.86 GPa (druckverspannt)
Mobilität (@ $1.4 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3}$)	$123 \text{ cm}^2/\text{Vs}$	$153 \text{ cm}^2/\text{Vs}$
spez. Widerstand (@ $1.4 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3}$)	$3.6 \text{ m}\Omega\text{cm}$	$3.3 \text{ m}\Omega\text{cm}$

6. Zusammenfassung und Ausblick

Das Thema dieser Arbeit war es ein umfassendes physikalisches Verständnis über die Herstellung, Optimierung und Charakterisierung von GaN basierten Pufferstrukturen auf Si-(111)-Substraten zu gewinnen. Im Fokus der Optimierungsarbeit hin zu einer optimalen GaN Pufferstruktur standen dabei sowohl die Mechanismen bei der Vielparameter-Variation für die Keimschicht, bei der systematischen Verbesserung spannungs- und defektreduzierender Zwischenschichten als auch bei der Auswahl der bestgeeigneten Dotierparameter.

Das Ziel bestand darin erstmals ein umfassendes physikalisches Bild zu entwickeln, mit welchem qualitativ hochwertige GaN Pseudosubstrate herstellbar sind, die mit Hilfe der metallorganischen Gasphasenepitaxie abgeschieden werden und die unmittelbar für das nachfolgende Überwachsen mit einer LED-Struktur verwendet werden können. Für die Gewinnung dieses vollständigen physikalischen Verständnisses bezüglich Spannungskontrolle und Defektreduktion wurden zahlreiche Charakterisierungsmethoden angewandt. Die Röntgendiffraktometrie bildete dabei einen besonderen Schwerpunkt, um die strukturellen Eigenschaften der Vielschichtsysteme zu analysieren.

Die Strukturoptimierung wurde zunächst auf 2“ Si Substraten vorgenommen. Den Ausgangspunkt bildeten dabei AlN-haltige Keimschichten mit vorangehender Al-Substratbenetzung. Die ausführliche Analyse der verschiedenen angewandten Keimschichtkonzepte zeigt, dass Tieftemperatur AlN Keimschichten zu den besseren GaN Qualitäten mit 692 und 1010 arcsec (Tilt und Twist) und einer Oberflächenspannung von 0.71 GPa führen. Im Vergleich dazu liegen Hochtemperatur Keimschichten (Tilt: 660 arcsec, Twist: 1324 arcsec) mit 0.97 GPa näher an der Rissgrenze. Eine Gegenüberstellung dieser beiden Keimschichtkonzepte eröffnete, dass die optimale Wachstumstemperatur weder im Tief- noch im Hochtemperaturbereich, sondern im mittleren Bereich um 800°C liegt. Des Weiteren zeigte sich ein enormer Einfluss der Ausheizzeit der Keimschicht auf den GaN Tilt, welche bei 2.5 min die Zahl der c-Typ Versetzung drastisch reduzieren kann. Ebenso filtert eine dickere auf die Keimschicht folgende HT-AlN Schicht zusätzlich a- und c-Typ Versetzungen.

Ternäre AlGaIn Keimschichten erwiesen sich im Vergleich zu reinen AlN Schichten als weniger geeignet, da sie zu einer erhöhten Defektbildung und Schichtspannung mit Rissbildung führen und bei Hochtemperaturbedingungen zusätzlich Meltback Etching aufwiesen. Erste Untersuchungen zu AlInN Keimschichten dagegen zeigten, dass diese eine geeignete Keimschichtalternative sein könnten, da sie in den Testversuchen fernab der bestgeeigneten Parameter bereits zu einer exzellenten glatten Oberflächenqualität führen.

Eine weitere wesentliche Verbesserung der Template-Qualität wurde mit dem Einfügen von Al-reichen AlGaIn Zwischenschichten erreicht. Dabei hat sowohl eine unzureichende als auch eine überhöhte Dicke der unteren GaN Schicht einen deutlich negativen Einfluss auf die Wirksamkeit dieser Zwischenschichten bezüglich Spannungskompensation und Defektreduktion im darauffolgenden GaN. Sind die basalen Gitter an der Grenzfläche zwischen unterer GaN Schicht und AlGaIn Zwischenschicht zueinander geeignet angepasst, so kann eine maximale Spannungsreduktion mit gleichzeitiger Defektfilterung erzielt werden. Darauf aufbauend sind Zwischenschichtdicke und auch ihr Relaxationsgrad, welcher durch die Wachstumstemperatur bestimmt wird, essentiell für die maximale Kompression im GaN. Eine Abscheidetemperatur von 750°C bei einer Wachstumszeit von 75 sek. führt unter den gewählten

Flussraten und der eingestellten Reaktoratmosphäre zu einer flachen GaN Struktur nach dem Abkühlen.

Um GaN Pufferstrukturen kostengünstig und mit hoher Prozessausbeute herstellen zu können, wird eine minimale Anzahl an Zwischenschichten angestrebt, wobei die vertikale elektrische Leitfähigkeit möglichst gering durch die Zwischenschichten beeinflusst werden sollte. Auf großflächigen GaN Pufferstrukturen bewies die Verwendung von 3 gradierten AlGaN Zwischenschichten mit einer Dicke von jeweils 20 nm eine optimale Spannungskompensation auf -0.43 GPa in der obersten GaN Schicht, bei einer rissfreien und ausgezeichneten Qualität von 370 arcsec im Tilt und 525 arcsec im Twist. Diese gradierten Zwischenschichten bestehen aus einem unteren und einem oberen AlGaN Gradienten, sowie einer hoch-aluminiumhaltigen AlGaN Kernschicht mit etwa 65-70% Aluminium. Mit Hilfe asymmetrischer reziproker Gitterkarten kombiniert mit TEM Analysen konnte die Funktionsweise der gradierten Zwischenschichten genau in einem dazu entwickelten Modell (Modell der partiellen Relaxation) veranschaulicht werden. Im unteren Gradienten nimmt die Relaxation mit zunehmendem Al-Gehalt kontinuierlich bis auf 75% zu. In diesem Bereich werden über den gradierten Schichtanteil verteilt Anpassungsversetzungen gebildet und gleichzeitig einlaufende Linienversetzungen geblockt. Darüber hinaus wurde nachgewiesen, dass jede der drei Zwischenschichten eine individuelle Wirkung auf die Folgeschicht hat, abhängig davon, wo die Zwischenschicht im GaN-Stapel eingefügt ist. So hat die erste Zwischenschicht einen enormen Einfluss auf die kompressive Vorspannung mit etwa 1.1 GPa Spannungsdifferenz, aber einen zunächst gerin-



Abb. 6.1.: Prototyp einer GaN on Si LED, die im Rahmen des Gemeinschaftsprojekts entwickelt wurde.

gen Einfluss auf die Verringerung der mit der Röntgendiffraktometrie erfassbaren Versetzungen. Die letzte Zwischenschicht filtert dagegen bis zu 36% der Schraubenversetzungen, hat aber nahezu keinen spannungsreduzierenden Einfluss mehr auf die abschließende Schicht.

Ein wesentlicher Vorteil der gradierten Zwischenschichten ist die Entkopplung von Spannungseinfluss und Defektfilterung. Während die Dicke der Keimschichten primär Einfluss auf den Spannungsaufbau in der Folgeschicht hat, bestimmt die Al-Konzentration im Zwischenschichtkern den Filtergrad der einlaufenden Linienversetzungen. Schließlich konnte mit

der Optimierung der doppelgradierten Zwischenschichten eine Defektdichte von $6.8 \cdot 10^8 \text{ cm}^{-3}$ in der obersten GaN Schicht erreicht werden, welche eine sehr hochwertige Pufferstruktur für das weitere Überwachsen mit einer MQW Struktur darstellt. Im Rahmen des Gemeinschaftsprojekts „GaNonSi“ konnte aufbauend auf diesen erfolgreichen Ergebnissen erstmals eine GaN auf Si Prototyp-LED hergestellt werden, welche eine externe Quanteneffizienz von 56% besitzt (siehe Abb. 6.1).

Die bisher verwendete und seit vielen Jahren etablierte Si-Dotierung für die n-Leitfähigkeit im GaN ist mit einer Vielzahl von qualitätsmindernden Nachteilen verbunden. Zum einen wird zusätzliche tensile Spannung durch den Si-Einbau verursacht. Des Weiteren konnte eine obere kritische Dotiergrenze von $1 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ für das Si nachgewiesen werden, ab der die Oberflächendegradation aufgrund der Bildung des wachstumshemmenden SiN beginnt. Noch

weiter steigendes Si-Angebot unter Wasserstoffatmosphäre führt sogar zum Rückätzen des GaN.

Im Rahmen dieser Arbeit konnte Germanium als eine hervorragende Alternative zur Si-Dotierung für n-GaN aufgezeigt werden. Mittels Ge wurde eine um den Faktor 10 höhere Dotierung ($2.2 \cdot 10^{20} \text{ cm}^{-3}$) erfolgreich realisiert, ohne eine zusätzliche tensile Spannung aufzubauen. Dabei blieb die GaN Oberfläche bei allen Dotierniveaus glatt und glänzend. Erst bei extrem hohen Ladungsträgerkonzentrationen von $2 \cdot 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ beginnt die Oberfläche durch das Auftreten von versetzungsinduzierten Kratern zu degradieren. Die Ge-dotierten Proben übertrafen die Si-Dotierung auch in den elektrischen Eigenschaften, denn bei einer Ladungsträgerkonzentration von $1.4 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ erzielte die Germanium Dotierung eine Elektronenmobilität von $153 \text{ cm}^2/\text{Vs}$, die Si-Dotierung hingegen nur $123 \text{ cm}^2/\text{Vs}$.

Weitere Optimierungsoptionen für die hier entwickelten und vorgestellten Pufferstrukturen wurden vorgeschlagen. Zum einen muss die laterale Homogenität der Pufferstruktur für die LED-Herstellung auf großflächigen Si-Substraten verbessert werden, denn eine Ablösung der Niederleistungs-LEDs ist preislich erst ab einer Substratgröße von 200 mm gerechtfertigt. Ein weiterer Optimierungsansatz ist die Reduktion der Zwischenschichten auf insgesamt 2 gradierte AlGaIn Schichten unter Beibehaltung der bisher erreichten kristallinen Qualität und Spannung, um die vertikale elektrische Leitfähigkeit zu verbessern. Dieser Ansatz wurde bereits im Rahmen des BMBF Projektes getestet und zeigte erste erfolgreiche Resultate.

In anschließenden Entwicklungsschritten muss die finale Pufferstruktur mit der aktiven Schicht, dem InGaIn-basierten MQW und der p-leitenden Deckschicht überwachsen und bis zur fertigen anwendbaren LED in einer fotolithografischen Weiterverarbeitung prozessiert werden. Eine kleine Serie von wenigen GaN-auf-Si LEDs wurde zum Projektabschluss bereits gefertigt. Jedoch ist eine standardisierte LED Herstellung in einem industriellen Fertigungsprozess für großflächige Substrate von 200 mm das langfristige Ziel.

Die Voraussetzungen dafür wurden hiermit geschaffen, da alle in dieser Arbeit adressierten Aufgabenstellungen zur Realisierung und Charakterisierung einer industrietauglichen LED-Pufferstruktur erfolgreich umgesetzt wurden.

7. Literaturverzeichnis

- [Abl04] A. Able, *Untersuchungen zur metallorganischen Gasphasenepitaxie von Gruppe III Nitriden auf Silizium (111)*, Dissertation, Uni Regensburg, 2004
- [Abl05] A. Able, W. Wegscheider, K. Engl, J. Zweck, *Growth of crack-free GaN on Si(111) with graded AlGa_N buffer layers*. J. Cryst. Growth **276**, 415 (2005)
- [Ama98] H. Amano, M. Iwaya, T. Kashima, M. Katsuragawa, I. Akasaki, J. Han, S. Hearne, J.A. Floro, E. Chason, and J. Figiel, *Stress and Defect Control in GaN Using Low Temperature Interlayers*, Jpn. J. Appl. Phys. **37**, L1540 (1998)
- [Amb99] O. Ambacher, J. Smart, J. R. Shealy, N. G. Weimann, K. Chu, M. Murphy, W. J. Schaff, L. F. Eastman, R. Dimitrov, L. Wittmer, M. Stutzmann, W. Rieger, and J. Hilsenbeck, *Two-dimensional electron gases induced by spontaneous and piezoelectric polarization charges in N- and Ga-face AlGa_N/GaN hetero-structures*, J. Appl. Phys. **85** (1999), 3222–3232.
- [Ars09] E. Arslan, M. K. Ozturk, S. Ozelik, E. Ozbay, *The effect of Si₃N₄ interlayer on the quality of GaN epitaxial layers grown on Si(111) substrates by MOCVD*, Appl. Phys. **9**, 472 (2009)
- [Asb97] P. M. Yu, S. S. Lau, G. J. Sullivan, J. Van Hove, J. Redwing, *Piezoelectric charge densities in AlGa_N/GaN HFETs*, **33**, 1230 (1997)
- [Ben10] S. E. Bennett, *Dislocations and their reduction in GaN*, Literature Review, Mat. Sci. Technol. **26**, 1017-1029 (2010)
- [Ber87] P. Bergman, G. Ying, B. Monemar and P.O. Holtz, *Time-resolved spectroscopy of Zn- and Cd-doped GaN*, J. Appl. Phys. **61**, 4589 (1987)
- [Ber10] C. Berger, *Bestimmung von Spannungen in GaN-basierten Schichten mittels in-situ und ex-situ Methoden*, Diplomarbeit, Otto-von-Guericke Universität Magdeburg, 2012
- [Ber13] W. Bergbauer, P. Drechsel, B. Galler, M. Binder, P. Rade, T. Markurt, T. Schulz, M. Albrecht, M. Sabathil, and P. Stauss, *High efficient InGa_N/GaN light emitting diodes grown on Si(111)*, DGKK Workshop, Ilmenau, 2013
- [Bla02] J. Bläsing, A. Reiher, A. Dadgar, A. Diez, and A. Krost, *The origin of stress reduction by low-temperature AlN interlayers*, Appl. Phys. Lett. **81**, 2722 (2002)
- [Böt01] T. Böttcher, S. Einfeldt, S. Figge, R. Chierchia, H. Heinke, D. Hommel, J. S. Speck, *The role of high-temperature island coalescence in the development of stresses in GaN films*, Appl. Phys. Lett. **78**, 1976 (2001)
- [Bri05] Leonard J. Brillson, *Surfaces and Interfaces of Electronic Materials*, John Wiley & Sons, 2012
- [Büg13] Max Bügler, *Optische und strukturelle Eigenschaften von InN und InGa_N und deren Wachstum mittels Hochdruck Gasphasen-Epitaxie*, Dissertationsschrift, TU-Berlin, 2013
- [Cao10] J. Cao, S. Li, G. Fan, Y. Zhang, S. Zheng, Y. Yin, J. Huang, J. Su, *The influence of the Al pre-deposition on the properties of AlN buffer layer and GaN layer grown on Si(111) substrate*. J. Cryst. Growth **312**, 2044 (2010)

- [Can03] P. Cantu, F. Wu, P. Waltereit, S. Keller, A. E. Romanov, U. K. Mishra, S. P. DenBaars, and J. S. Speck, *Si doping effect on strain reduction in compressively strained Al_{0.49}Ga_{0.51}N thin films*, Appl. Phys. Lett. **83**, 4, (2003)
- [Car90] O. N. Carlson, *The Ge-N (Germanium-Nitrogen) System*, Bulletin of Alloy Phase Diagrams Vol. **11**, No. 6 (1990)
- [Car05] J.-F. Carlin, C. Zellweger, J. Dorsaz, S. Nicolay, G. Christmann, E. Feltin, R. Butté, N. Grandjean, *Progresses in III-nitride distributed Bragg reflectors and microcavities using AlInN/GaN materials*, phys. stat. sol. (b) **242**, 2326, (2005)
- [Cas13] J. Cassell, *GaN-on-Silicon LEDs Forecast to Increase Market Share to 40 Percent by 2020*, Press release, HIS pressroom, 04. Dez. 2013
- [Che96] C.H. Chen, H. Liu, D. Steigerwald, W. Imler, C.P. Kuo, M.G. Craford, M. Ludowise, S. Lester, J. Amano, *A Study of Parasitic Reactions Between NH₃ and TMGa or TMAI*, J. Electron. Mater. **25**, 1004 (1996)
- [Che97] D. Cherns, W. T. Young, J. W. Steeds, F. A. Ponce, S. Nakamura, *Observation of coreless dislocations in α -GaN*, J. Cryst. Growth **178**, 201 (1997)
- [Chi96] S. Chichibu, T. Azuhata, T. Sota, S. Nakamura, „*Excitonic emissions from hexagonal GaN epitaxial layers*“, J. Appl. Phys. **79**, 2784 (1996)
- [Cho06] Y. S. Cho, H. Hardtdegen, N. Thilloßen, R. Steins, Z. Sofer, and H. Lüth, *Effect of carrier gas on GaN epilayer characteristics*, Phys. Stat. Sol. (c) **3**, 1408 (2006)
- [Cho07] Y. S. Cho, H. Hardtdegen, N. Kaluza, R. Steins, G. Heidelberger, and H. Lüth, *The growth mechanism of GaN with different H₂/N₂ carrier gas ratios*, J. Cryst. Growth **307**, 6 (2007)
- [Clo04] R. Clos, A. Dadgar, A. Krost, *Wafer curvature in the nonlinear deformation range*, Phys. Stat. Sol. (a) **201**, R75-R78 (2004)
- [Clo10] R. Clos, A. Krost, *In situ measurements, strains, and stresses in the case of large wafer bending and multilayers systems*, in *III-V Compound Semiconductors: Integration with Silicon-Based Microelectronics* (2010) herausgegeben von T. Li, M. Mastro, A. Dadgar, CRC Press
- [Con02] O. Contreras, F. A. Ponce, J. Christen, A. Dadgar, A. Krost, *Dislocation annihilation by silicon delta-doping in GaN epitaxy on Si*, Appl. Phys. Lett. **81**, 25, (2002)
- [Con05] G. Cong, Y. Lu, W. Peng, X. Liu, X. Wang, Z. Wang, *Design of the low-temperature AlN interlayer for GaN grown on Si (111) substrate*, J. Cryst. Growth **276**, 3–4 (2005)
- [Cot49] A. H. Cottrell, B. Bilby, *Dislocation theory of yielding and strain ageing of iron*, Proc. Phys. Soc., London Sect. A, Bd. 62, S. 49-62, (1949)
- [Dad00] A. Dadgar, J. Bläsing, A. Diez, A. Alam, M. Heuken, and A. Krost, *Metalorganic Chemical Vapor Phase Epitaxy of Crack-Free GaN on Si (111) Exceeding 1 μ m in Thickness*. Jpn. J. Appl. Phys. **39**, L1183 (2000)
- [Dad02a] A. Dadgar, M. Poschenrieder, J. Bläsing, K. Fehse, A. Diez, and A. Krost, *Thick, crack-free blue light-emitting diodes on Si(111) using low-temperature AlN interlayers and in-situ Si_xN_y masking*, Appl. Phys. Lett. **80**, 3670 (2002)
- [Dad02] A. Dadgar, M. Poschenrieder, A. Reiher, J. Bläsing, J. Christen, A. Krtschil, T. Finger, T. Hempel, A. Diez, and A. Krost, *Bright, crack-free InGaN/GaN light emitters on Si(111)*, Appl. Phys. Lett. **82**, 28 (2002)

- [Dad03] A. Dadgar, M. Poschenrieder, J. Bläsing, O. Contreras, F. Bertram, T. Riemann, A. Reiher, M. Kunze, I. Daumiller, A. Krtschil, A. Diez, A. Kaluza, A. Modlich, M. Kamp, J. Christen, F. A. Ponce, E. Kohn, A. Krost, *MOVPE growth of GaN on Si(111) substrates*. J. Cryst. Growth **248**, 556 (2003)
- [Dad03a] A. Dadgar, M. Poschenrieder, I. Daumiller, M. Kunze, A. Strittmatter, T. Riemann, F. Bertram, J. Bläsing, F. Schulze, A. Reiher, A. Krtschil, O. Contreras, A. Kaluza, A. Modlich, M. Kamp, L. Reißmann, A. Diez, J. Christen, F.A. Ponce, D. Bimberg, E. Kohn, A. Krost, *Gallium-nitride-based devices on silicon*, Phys. Stat. Sol. (c) **0**, 1940-1949 (2003)
- [Dad03b] A. Dadgar, M. Poschenrieder, A. Reiher, J. Bläsing, J. Christen, A. Krtschil, T. Finger, T. Hempel, A. Diez, and A. Krost, *Reduction of stress at the initial stages of GaN growth on Si(111)*, Appl. Phys. Lett. **82**, 28 (2003)
- [Dad04] A. Dadgar, R. Clos, G. Strassburger, F. Schulze, P. Veit, T. Hempel, J. Bläsing, A. Krtschil, I. Daumiller, M. Kunze, A. Kaluza, A. Modlich, M. Kamp, A. Diez, J. Christen, and A. Krost, *Strains and Stresses in GaN Heteroepitaxy - Sources and Control*, Adv. Solid State Phys. **44**, 1254 (2004)
- [Dad04a] A. Dadgar, F. Schulze, T. Zettler, K. Haberland, R. Clos, G. Straßburger, J. Bläsing, A. Diez, and A. Krost, *In situ measurements of strains and stresses in GaN heteroepitaxy and its impact on growth temperature*, J. Cryst. Growth **272**, 72 (2004)
- [Dad07] A. Dadgar, P. Veit, F. Schulze, J. Bläsing, A. Krtschil, H. Witte, A. Diez, T. Hempel, J. Christen, R. Clos, and A. Krost, *MOVPE growth of GaN on Si – Substrates and strain*, Thin Solid Films **515**, 4356 (2007)
- [Dad07a] A. Dadgar, F. Schulze, M. Wieneke, A. Gadanez, J. Bläsing, P. Veit, T. Hempel, A. Diez, J. Christen, and A. Krost, *Epitaxy of GaN on silicon — impact of symmetry and surface reconstruction*, New J. of Physics **9**, 389 (2007)
- [Dad11] A. Dadgar, T. Hempel, J. Bläsing, O. Schulz, S. Fritze, J. Christen, and A. Krost, *Improving GaN-on-silicon properties for GaN device epitaxy*, Phys. Stat. Sol. (c) **8**, 1503 (2011)
- [Dad11a] A. Dadgar, New Technology Approaches, bookchapter 4 of *III-V Compound Semiconductors – Integration with Silicon-Based Microelectronics*, CRC Press, Taylor & Francis Group, 2011
- [Dad11b] A. Dadgar, J. Bläsing, A. Diez, and A. Krost, *Crack-free, Highly Conducting GaN Layers on Si Substrates by Ge Doping*, Appl. Phys. Express **4**, 011001 (2011)
- [Dad13] A. Dadgar, S. Fritze, O. Schulz, J. Hennig, J. Bläsing, H. Witte, A. Diez, U. Heinle, M. Kunze, I. Daumiller, K. Haberland, and A. Krost, *Anisotropic bow and plastic deformation of GaN on Silicon*, J. Cryst. Growth **370**, 273 (2013)
- [Dad13a] Korrespondenz mit A. Dadgar über Einflüsse auf Koaleszenz und Oberflächendiffusion bei der GaN Epitaxie, Dez. 2013
- [Dai09] Q. Dai, M. F. Schubert, M. H. Kim, J. K. Kim, E. F. Schubert, D. D. Koleske, M. H. Crawford, S. R. Lee, A. J. Fischer, G. Thaler, and M. A. Banas, *Internal quantum efficiency and nonradiative recombination coefficient of GaInN/GaN multiple quantum wells with different dislocation densities*. Appl. Phys. Lett. **94**, 111109 (2009)

- [Dat04] R. Datta, M. J. Kappers, M. E. Vickers, J. S. Barnard, and C. J. Humphreys, *Growth and characterisation of GaN with reduced dislocation density*, Superlattices Microstruct. **36**, 393 (2004)
- [Dem10] A. Dempewolf, Fr. Bertram, J. Christen, *Mikro-optische Charakterisierung von GaN-auf-Si Substraten*, Vortrag Projekttreffen, Uni Magdeburg, März 2011
- [Dru82] M. Druminsky, H. D. Wolf, and K. H. Zschauer, K. Wittmaack, *Unexpectedly high energy photoluminescence of highly Si doped GaAs grown by MOVPE*, J. Cryst. Growth **57**, 318 (1982)
- [Edg94] J. H. Edgar (Ed.), *Properties of Group III Nitrides*, INSPEC, London, 1994
- [Efr05] A. A. Efremov, N. I. Bochkareva, R. I. Gorbunov, D. A. Lavrinovich, Y. T. Rebane, D. V. Tarkhin and Y. G. Shreter, *Effect of the joule heating on the quantum efficiency and choice of thermal conditions for high power blue InGaN/GaN LEDs*, Phys. Semicond. Devices **40** (5), 621-627 (2005)
- [Fel01] E. Feltn, B. Beaumont, M. Lüttig, P. de Mierry, P. Vennéguès, H. Lahèche, M. Leroux, and P. Gibart: *Stress control in GaN grown on silicon (111) by metalorganic vapor phase epitaxy*, Appl. Phys. Lett. **79**, 3230 (2001)
- [Fen07] M. Feneberg and K. Thonke, *Polarization fields of III-nitrides grown in different crystal orientations*, J. Phys. Condens. Matter **19**, 403201-1 – 403201-26 (2007)
- [Fig00] S. Figge, T. Böttcher, S. Einfeldt and D. Hommel, *In situ and ex situ evaluation of the film coalescence for GaN growth on GaN nucleation layers*, J. Cryst. Growth, **221**, 262–266 (2000)
- [Fig09] S. Figge, H. Kröncke, D. Hommel, B. M. Epelbaum, *Temperature dependence of the thermal expansion of AlN*, Apl. Phys. Lett. **94**, 101915 (2009)
- [Fin98] P. Fini, X. Wu, E. J. Tarsa, Y. Golan, V. Strikant, S. P. DenBaars and J. S. Speck, *The effect of growth environment on the morphological and extended defect evolution in GaN grown by metalorganic chemical vapor deposition*, Jpn. J. Appl. Phys. **37**, 4460-4466 (1998)
- [Fis69] V. I. Fistul, *Heavily Doped Semiconductors* (New York: Plenum), p. 26 (1969)
- [Flo01] J. A. Floro, E. Chason, *Curvature-Based Techniques for Real-Time Stress Measurement During Thin-Film Growth*, in *In situ Real-Time Characterization of Thin Films* (2001) herausgegeben von O. Auciello, A. R. Krauss, John Wiley & Sons, Inc.
- [Fol05] D.M. Follstedt, S. R. Lee, P. P. Provencio, A. A. Allerman, J. A. Floro, and M. H. Crawford, *Relaxation of compressively-strained AlGaIn by inclined threading dislocations*, Appl. Phys. Lett. **87**, 121112, (2005)
- [Fra11] E. Frayssinet, Y. Cordier, H. P. D. Schenk, A. Bavard, *Growth of thick GaN layers on 4-in. and 6-in. silicon (111) by metal-organic vapor phase epitaxy*, Phys. Stat. Sol. C **8** (5), pp. 1479-1482, 2011
- [Fre04] L. B. Freund, S. Suresh, *Thin Film Materials: Stress, Defect Formation and Surface Evolution* (2004) Cambridge University Press
- [Fri07] S. Fritze, *LED-Dünnschichttechnologie an GaN-basierten LEDs auf Si Substraten*, Belegarbeit, Uni Magdeburg (2007)

- [Fri09] S. Fritze, J. Bläsing, A. Dadgar, O. Schulz, A. Krost, *Röntgenographische Qualitäts- und Homogenitätsuntersuchungen von GaN Schichten auf Silizium*, Vortrag, DGKK Workshop 2009, Berlin
- [Fri12] S. Fritze, P. Drechsel, P. Stauss, P. Rode, T. Markurt, T. Schulz, M. Albrecht, J. Bläsing, A. Dadgar, and A. Krost, *Role of low-temperature AlGaIn interlayers in thick GaN on silicon by metalorganic vapor phase epitaxy*, J. Appl. Phys. **111**, 124505 (2012)
- [Fri12a] S. Fritze, A. Dadgar, H. Witte, M. Bügler, A. Rohrbeck, J. Bläsing, A. Hoffmann, and A. Krost, *High Si and Ge n-type doping of GaN doping - Limits and impact on stress*, Appl. Phys. Lett. **100**, 122104 (2012)
- [Gib04] P. Gibart, *Metal organic vapour phase epitaxy of GaN and lateral overgrowth*, Rep. Prog. Phys. **67**, 667-715 (2004)
- [Gil98] B. Gil (Ed.), *Group III Nitride Semiconductor Componds*, Physics and Applications, Clarendon, Oxford, 1998.
- [Gil99] B. Gil, Chapter 6 Stress Effect on Optical Properties, Gallium Nitride (GaN) II, Semiconductors and Semimetals **57**, 209 (1999)
- [Goo01] P. J. Goodhew, J. Humphreys, R. Beanland, *Electron Microscopy and Analysis*, 3. Auflage, Taylor & Francis, London – New York, 2001
- [Gro11] L. Groh: *(Al, Ga, In)N Schichten und Schichtstrukturen für Polarisationsanpassung*, Otto-von-Guericke-Universität Magdeburg, Diplomarbeit (2011)
- [Gro12] R. Gross und A. Marx, *Festkörperphysik*, Oldenbourg-Verlag München, 1. Auflage, 2012
- [Gru91] M. Grundmann, A. Krost, and D. Bimberg, *Low-temperature metalorganic chemical vapor deposition of InP on Si(001)*, Appl. Phys. Lett. **58**, 284(1991)
- [Guo95] J. D. Guo, M. S. Feng and F. M. Pang, *Se-doped GaN Films Grown by Low-Pressure Metalorganic Chemical Vapor Deposition*, Jpn. J. Appl. Phys. **34**, 5510 (1995)
- [Göt96] W. Götz, N. M. Johnson, C. Chen, H. Liu, C. Kuo, W. Imler, *Activation energies of Si donors in GaN*, Appl. Phys. Lett. **68**, 3144 (1996)
- [Göt99] W. Götz, R. S. Kern, C. H. Chen, H. Liu, D. A. Steigerwald, R. M. Fletcher, *Hall-effect characterization of III-V nitride semiconductors for high efficiency light emitting diodes*, Mater. Sci. Eng. B **59**, 211 (1999)
- [Hae10] M. Haeberlen, D. Zhu, C. McAleese, M. J. Kappers, and Humphreys, *Dislocation reduction in MOVPE grown GaN layers on (111)Si using SiN_x and AlGaIn layers*. J. Phys.: Conference Series **209**, 012017 (2010)
- [Hag04] P.R. Hageman, W.J. Schaff, J. Janinski, Z. Liliental-Weber, *n-type doping of wurtzite GaN with germanium grown with plasma-assisted molecular beam epitaxy*, J. Cryst. Growth **267**, 123 (2004)
- [Hal06] I. Halidou, Z. Benzarti, T. Boufaden, B. El Jani, *Thermodynamic analysis of Si doping in GaN*, Superlattices and Microstructures **49**, 496-500, (2006)
- [Haw06] M. Hawkrige, D. Cherns, and T. Myers, *Lateral migration of dislocations in oxygen-doped GaN grown by molecular beam epitaxy*, Appl. Phys. Lett. **89**, 251915 (2006)

- [Hir68] J. P. Hirth, J. Lothe, *Theory of Dislocations*, McGraw-Hill Book Company, New York (1968)
- [Hua07] G.S. Huang*, H.H. Yao, H.C. Kuo, S.C. Wang, *Effect of growth conditions on the Al composition and quality of AlGa_N film*, Materials Science and Engineering B **136**, 29 (2007)
- [Hui04] Y. Hui-Qiang, C. Lin, Z. Rong, X. Xiang-Qian, X. Zi-Li, Y. Yu-Da, G. Shu-Lin, S. Bo, S. Yi, *GaN Growth with Low-Temperature GaN Buffer Layers Directly on Si(111) by Hydride Vapour Phase Epitaxy*. Chin. Phys. Lett. **21**, 1825 (2004)
- [Iba09] H. Ibach und H. Lüth, *Festkörperphysik, Einführung in die Grundlagen*, Springer Lehrbuch, 7. Auflage (2009)
- [Ide02] T. Die, M. Shimizu, X. Q. Shen, K. Jeganathan, H. Okumura, T. Nemoto, *Improvement of film quality using Si-doping in AlGa_N/Ga_N heterostructure grown by plasma-assisted molecular beam epitaxy*, J. Cryst. Growth **245**, 15 (2002)
- [IKZ10] T. Markurt, *STEM-HAADF und EDXS Analyse*, Leibniz-Institut für Kristallzüchtung Berlin, Vortrag Projekttreffen GaNonSi (2010)
- [IKZ11] T. Markurt, T. Schluz, M. Albrecht, *TEM-investigations of relaxation mechanisms in Ga_N on Si*, Leibniz-Institut für Kristallzüchtung Berlin, Vortrag Projekttreffen GaNonSi (2011)
- [Ish98] H. Ishikawa, K. Yamamoto, T. Egawa, T. Soga, T. Jimbo, M. Umeno, *Thermal stability of Ga_N on (111) Si substrate*. J. Cryst. Growth **178**, 189–190 (1998)
- [Kag97] V. M. Kaganer, R. Köhler, M. Schmidbauer, B. Jenichen, and R. Opitz: *X-ray diffraction peaks due to misfit dislocations in heteroepitaxial structures*, Physical Review B **55**, 1793 (1997)
- [Kap07] M. J. Kappers, R. Datta, R. A. Oliver, F. D. G. Rayment, M. E. Vickers and C. J. Humphreys, *Threading dislocation reduction in (0001) Ga_N thin films using Si_{N_x} interlayers*, J. Cryst. Growth, **300**, 70–74 (2007)
- [Kar84] J. Karpinski, J. Jun, and S. Porowski, *Equilibrium pressure of N₂ over Ga_N and high pressure solution growth of Ga_N*, J. Cryst. Growth **66**, 1 (1984)
- [Kar02] S. Y. Karpov and Y. N. Makarova, *Dislocation effect on light emission efficiency in gallium nitride*, Appl. Phys. Lett. **81**, 4721-4723 (2002)
- [Kim01] M.-H. Kim, Y.-G. Do, H. C. Kang, D. Y. Noh, S.-J. Park, *Effects of step-graded Al_xGa_{1-x}N interlayer on properties of Ga_N grown on Si(111) using ultrahigh vacuum chemical vapor deposition*. Appl. Phys. Lett. **79**, 2713 (2001)
- [Kim09] D. K. Kim and H. B. Kim, *Properties of a Ga_N Layer on a Si(111) Substrate with Low-temperature AlN Interlayers*, J. Korean Phys. Soc. **55**, 1483 (2009)
- [Kim10] J. O. Kim, S. K. Hong, H. Kim, K. W. Moon, C. J. Choi and K. Y. Lim, *Correlations of a High-temperature AlN Buffer Layer and Al-Preseeding with the Structural and the Optical Properties of Ga_N on a Si(111) Substrate*, J. Korean Phys. Soc., **58**, 5, 1374-1379 (2011)
- [Kim10a] J. O. Kim, S. K. Hong, and K. Y. Lim, *Crack formation in Ga_N on Si(111) substrates grown by MOCVD using HT-Al-preseeding and HT AlN buffer layers*. Phys. Stat. Sol. (c) **7**, 2052 (2010)

- [Kis96] C. Kisielowski, J. Krüger, S. Ruvimov, T. Suski, J. W. Ager, III, E. Jones, Z. Lilliental-Weber, M. Rubin, and E. R. Weber, M. D. Bremser and R. F. Davis, *Strain-related phenomena in GaN thin films*, Phys. Rev. B **54**, 24, 17745-17753 (1996)
- [Koi91] N. Koide, H. Kato, M. Sassa, S. Yamasaki, K. Manabe, M. Hashimoto, H. Amano, K. Hiramatsu, I. Akasaki, *Doping of GaN with Si and properties of blue m/i/n/n⁺ GaN LED with Si-doped n⁺-layer by MOVPE*, J. Cryst. Growth. **115**, 639 (1991)
- [Kom09] J. Komiyama, Y. Abe, S. Suzuki, H. Nakanishi, A. Koukitu, *MOVPE of AlN-free hexagonal GaN/cubic SiC/Si heterostructures for vertical devices*. J. Cryst. Growth **311**, 2840 (2009)
- [Kor99] R. Y. Korotkov and B. W. Wessels, *Electrical Properties of Oxygen Doped GaN Grown by Metalorganic Vapor Phase Epitaxy*, Mater. Res. Soc. Symp. Proc. **595** (1999)
- [Koz98] P. Kozodoy, J. P. Ibbetson, H. Marchand, P. T. Fini, S. Keller, J. S. Speck, S. P. DenBaars, and U. K. Mishra, *Electrical characterization of GaN p-n junctions with and without threading dislocations*, Appl. Phys. Lett. **73**, 975 (1998)
- [Kro95] A. Krost, G. Bauer, J. Woitok, High Resolution X-Ray Diffraction, in *Optical characterization of epitaxial semiconductor layers* (1995) herausgegeben von G. Bauer, W. Richter, Springer-Verlag
- [Kro02] A. Krost and A. Dadgar, *GaN based devices on Si*. Phys. Stat. Sol. (a) **194**, 361 (2002)
- [Kro02a] A. Krost, A. Dadgar, *GaN-based optoelectronics on silicon substrates*, Mat. Sci. Eng. B **93**, 77 (2002)
- [Kro03] A. Krost, A. Dadgar, G. Strassburger, and R. Clos, *GaN-based epitaxy on silicon: stress measurements*, Phys. Stat. Sol. (a) **200**, No. 1, 26–35 (2003)
- [Kro05] A. Krost, F. Schulze, A. Dadgar, G. Straßburger, K. Haberland, and T. Zettler, *Simultaneous measurement of wafer curvature and true temperature during metalorganic growth of group-III nitrides on silicon and sapphire*, Phys. Stat. Sol. (b) **242**, 2570 (2005)
- [Kro09] A. Krost und J. Bläsing, *Fast, micrometer scale characterization of group-III nitrides with laboratory X-ray diffraction*, Mat. Sci. Engin. A **524**, 82 (2009)
- [Kuh09] B. Kuhn, *AlGaIn/GaN Heterostrukturen: Epitaxie und elektrische Eigenschaften*, Dissertationsschrift, Universität Stuttgart (2002)
- [Kun95] P. Kung, A. Saxler, X. Zhang, D. Walker, T. C. Wang, I. Ferguson, M. Razeghi, *High quality AlN and GaN epilayers grown on (00-1) sapphire, (100), and (111) silicon substrates*. Appl. Phys. Lett. **66**, 2958 (1995)
- [Kur98] N. Kuroda, C. Sasaoka, A. Kimura, A. Usui, Y. Mochizuki, *Precise control of pn-junction profiles for GaN-based LD structures using GaN substrates with low dislocation densities*, J. Cryst. Growth, **189/190**, 551 (1998)
- [Kwa05] H.-S. Kwack, Y.-H. Cho, S. B. Bae, D. K. Oh, K. S. Lee, C. S. Kim, *Effect of Si Doping on the Structural and the Optical Properties in High-Quality Al_xGa_{1-x}N/GaN Heterostructures Grown by Metalorganic Chemical Vapor Deposition*, J. Kor. Phys. Soc. **46**, No. 5, pp. 1137-1141 (2005)

- [Kwo05] Y. B. Kwon, J. H. Je, P. Ruterana, G. Nouet, *On the origin of a-type threading dislocations in GaN layers*. J. Vac. Sci. Technol. A **23**, 1588 (2005)
- [Lah99] H. Lahrèche, P. Vennèguès, B. Beaumont, P. Gibart, *Growth of high-quality GaN by low-pressure metal-organic vapour phase epitaxy (LP-MOVPE) from 3D islands and lateral overgrowth*, J. Cryst. Growth **205**, 245 (1999)
- [Lay09] LayTec Manual, *EpiCurveTT - Reflectance measurements for real-time optical control of epitaxial growth*, Information Note LayTec (2009)
- [Lee97] I. H. Lee I.-H. Choi, C.-R. Lee, S.-J. Son, J.-Y. Leem, S. K. Noh, *Mobility enhancement and yellow luminescence in Si-doped GaN grown by metalorganic chemical vapor deposition technique*, J. Cryst. Growth **182**, 314 (1997)
- [Lee01] K. Lee and K. Auh, *Dislocation density of GaN grown by hydride vapor phase epitaxy*, MRS Internet J. Nitride Semicond. Res. **6** (9), 1-6 (2001)
- [Lee05] S. R. Lee, A. M. West, A. A. Allermann, K. E. Waldrip, D. M. Follstedt, P. P. Provencio, D. D. Koleske, C. R. Abernathy, *Effect of threading dislocations on the Bragg peakwidth of GaN, AlGa_xN and AlN heterolayers*, Appl. Phys. Lett. **86**, 241904 (2005)
- [Lee07] S.-N. Lee, H.S. Paek, H.Y. Ryu, J.K. Son, T. Sakong, T. Jang, K.K. Choi, Y.J. Sung, Y.H. Kim, H.K. Kim, S.H. Chae, K.H. Ha, J.H. Chae, K.S. Kim, J.S. Kwak, O.H. Nam, Y. Park, *Micro-crack-free high power blue-violet GaN-based laser diodes grown on maskless epitaxial lateral overgrown GaN/sapphire*, J. Cryst. Growth **298**, 695 (2007)
- [Lil95] Z. Liliental-Weber, S. Ruvimov, C. Kisielowski, Y. Chen, W. Swider, J. Washburn, N. Newman, A. Gassmann, X. Liu, Schloss. L, E. R. Weber, I. Grzegory, M. Bockowski, J. Jun, T. Suski, K. Pakula, J. Baranowski, S. Porowski, H. Amano, I. Akasaki, *Structural Defects in Heteroepitaxial and Homoepitaxial GaN*, Mat. Res. Soc. Symp. Proc. 395, 351 (1995)
- [Lil96] Z. Liliental-Weber, S. Ruvimov, Y. Chen, W. Swider, J. Washburn, *Nanotubes in GaN*, Mat. Res. Soc. Symp. Proc. 449, 417 (1996)
- [Lil97] Z. Liliental-Weber, Y. Chen, S. Ruvimov, J. Washburn, *Formation Mechanism of Nanotubes in GaN*, Phys. Rev. Lett. **79**, 2835 (1997)
- [Lin09] K.-L. Lin, E.-Y. Chang, Y.-L. Hsiao, W.-C. Huang, T.-T. Luong, and Y.-Y. Wong, *Effects of Al_xGa_{1-x}N interlayer for GaN epilayer grown on Si substrate by metal-organic chemical-vapor deposition*. J. Vac. Sci. Technol. **B 28**, 473 (2010)
- [Liu08] F. Liu, R. Collazo, S. Mita, Z. Sitar, S. J. Pennycook, and G. Duscher, *Direct Observation of Inversion Domain Boundaries of GaN on c-Sapphire at Sub-Ångstrom Resolution*, Adv. Mater. **20**, 2162-2165 (2008)
- [Mar11] T. Markurt, T. Schulz, M. Albrecht, *TEM-investigations of relaxation mechanisms in GaN on Si*, Arbeitstreffen Magdeburg, März 2011
- [Mar14] T. Markurt, Thema: *HRTEM und STREM Analysen an GaN Strukturen auf Si(111)*, Dissertation, IKZ, noch nicht abgeschlossen
- [Mat00] S. K. Mathis, A. E. Romanov, L. F. Chen, G. E. Beltz, W. Pompe, and J. S. Speck, *Modeling of Threading Dislocation Reduction in Growing GaN Layers*, Phys. Stat. Sol. (a) **179**, 125 (2000)

- [Mat01] S. K. Mathis, A. E. Romanov, L. F. Chen, G. E. Beltz, W. Pompe and J. S. Speck, *Modeling of threading dislocation reduction in growing GaN layers*, J. Cryst. Growth 231, 371-390 (2001)
- [Men10] W. Meng, W. Xiao-Liang, X. Hong-Ling, W. Cui-Mei, P. Xu, H. Qi-Feng, W. Zhan-Guo, *Growth of 2 μm Crack-Free GaN on Si(111) Substrates by Metal Organic Chemical Vapor Deposition*, Chin. Phys. Lett. **28**, 048102 (2011)
- [Met98] T. Metzger, R. Höpler, E. Born, O. Ambacher, M. Stutzmann, R. Stömmer, M. Schuster, H. Göbel, S. Christiansen, M. Albrecht, H. P. Strunk, *Defect structure of epitaxial GaN films determined by transmission electron microscopy and triple-axis X-ray diffractometry*, Philosophical Magazine A **77** (4) 1998, pp. 1013-1025.
- [Mil80] D. Miller, G. Rozgonyi, *Defect characterization by etching, optical microscopy and x-ray topography*, in „Handbook on semiconductors 3“, Editor: T. Moss, North-Holland Publishing Company, Amsterdam-New York-Oxford (1980)
- [Mil84] D. A. B. Miller, D. S. Chemla, T. C. Damen, A. C. Gossard, W. Wiegmann, T. H. Wood, C. A. Burrus, *Band-Edge Electroabsorption in Quantum Well Structures: The Quantum Confined Stark Effect*, Phys. Rev. Lett. **53**, 2173 (1984)
- [Mor01] H. Morkoc, *Comprehensive characterization of hydride VPE grown GaN layers and templates*, Mater. Sci. Eng. R33, 135-207 (2001)
- [Mor08] H. Morkoc, *Handbook of Nitride Semiconductors and Devices - Materials Properties, Physics and Growth*, Wiley-VCH Verlag Weinheim, 2008, p. 446
- [Mor09] M. A. Moram, C. S. Ghedia, D. V. S. Rao, J. S. Barnard, Y. Zhang, M. J. Kappers, and C. J. Humphreys, *On the origin of threading dislocations in GaN films*, J. Appl. Phys. **106**, 073513 (2009)
- [Mor09a] M. A. Moram, C. F. Johnston, J. L. Hollander, M. J. Kappers, and C. J. Humphreys, *Understanding x-ray diffraction of nonpolar gallium nitride films*, J. Appl. Phys. **105**, 113501 (2009)
- [Mor09b] M. A. Moram, M. E. Vickers, *X-ray diffraction of III-Nitrides*, Rep. Prog. Phys. **72**, (2009), 036502
- [Mor10] M. A. Moram, T. C. Sadler, M. Häberlen, M. J. Kappers, and C. J. Humphreys, *Dislocation movement in GaN films*, Appl. Phys. Lett. **97**, 261907 (2010)
- [Mor11] M. A. Moram, M. J. Kappers, F. Massabuau, R. A. Oliver, and C. J. Humphreys, *The effects of Si doping on dislocation movement and tensile stress in GaN films*, J. Appl. Phys. **109**, 073509 (2011)
- [Mue13] Korrespondenz mit M. Müller über KL-Messverfahren und Apparatur, Febr. 2013
- [Mur91] H. Murakami, T. Asahi, H. Amano, K. Hiramatsu, N. Sawaki, I. Akasaki, *Growth of Si-doped $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ on (0001) sapphire substrate by metalorganic vapor phase epitaxy*, J. Cryst. Growth **115**, 648 (1991)
- [Nak91] S. Nakamura, *GaN growth using GaN buffer layer*, Jpn J. Appl. Phys., Part 2, 1991, 30, (10A), L1705–L1707
- [Nak92] S. Nakamura, T. Grown, and M. Senoh, *Si- and Ge-doped GaN Films Grwon with GaN buffer Layers*, Jpn. J. Appl. Phys. **31**, 2883 (1992)

- [Nak98] S. Nakamura, *The role of structural imperfections in InGaN-based blue light emitting diodes and laser diodes*, Science **281**, 956-961 (1998) [Nin95] X. J. Ning, F. R. Chien, P. Pirouz, J. W. Yang and M. A. Khan, *Growth defects in GaN films on sapphire: the probable origin of threading dislocations*, J. Mater. Res. **11** (3), 580-592 (1995)
- [Nak10] S. Nakamura, *What Are the Limits for SSL?*, talk , DOE Solid-State Lighting R&D Workshop, February 2-4, 2010, Raleigh, NC
- [Nar01] V. Narayanan, K. Lorenz, W. Kim and S. Mahajan, *Origins of threading dislocations in GaN epitaxial layers grown on sapphire by metalorganic chemical vapor deposition*, Appl. Phys. Lett. **78** (11), 1544-1546 (2001)
- [Neu94] J. Neugebauer and C. G. Van de Walle, *Atomic geometry and electronic structure of native defects in GaN*, Phys. Rev. B **50**, 8067 (1994)
- [Neu96] J. Neugebauer and C. G. Van de Walle, *Gallium vacancies and the yellow luminescence in GaN*, Appl. Phys. Lett. **69**, 503 (1996)
- [Nin96] X. J. Ning, F. R. Chien, P. Pirouz, C. W. Yang, and M. A. Khan, *Growth defects in GaN films on sapphire, The probable origin of threading dislocations*, J. Mater. Res. **11** (3), 580-592 (1996)
- [Nis00] S. Nishimura, K. Terashima, *Low temperature growth interface for growing Boron Monophosphide on Si substrates*. Appl. Surf. Sci. **159–160**, 288 (2000) [Nis02] S. Nishimura, S. Matsumoto, K. Terashima, *Growth of GaN on Si substrates – roles of BP thin layer*, Optical Materials **19**, 223 (2002)
- [Nix99] W. D. Nix, B. M. Clemens, *Crystallite coalescence: A mechanism for intrinsic tensile stresses in thin films*, J. Mater. Res. **14**, 3467 (1999)
- [Nye85] J. F. Nye, *Physical Properties of Crystals*, Oxford University Press (1985)
- [Ohs99] N. Ohshima, A. Wakahara, M. Ishida, K. Pak, A. Yoshida, and H. Yonezu, *GaN Epitaxial Growth on a Si(111) Substrate Using γ -Al₂O₃ as an Intermediate Layer*. J. Korean Phys. Soc., **34**, 359 (1999)
- [Oli06] R. A. Oliver, M. J. Kappers, J. Sumner, R. Datta and C. J. Humphreys, *Highlighting threading dislocations in MOVPE-grown GaN using an in-situ treatment with SiH₄ and NH₃*, J. Cryst. Growth **289**, 506-514 (2006)
- [Oli06a] R. A. Oliver, M. J. Kappers and C. J. Humphreys, *Insights into the origin of threading dislocations in GaN/Al₂O₃ from atomic force microscopy*, Appl. Phys. Lett. **89**, 011914 (2006)
- [Oli07] James D. Oliver and Russ Kremer, *Status of SEMI Standardization Efforts in Compound Semiconductors*, CS MANTECH Conference Proceeding, May 14-17, 2007, Austin, Texas, USA
- [Osh10] Y. Oshima, T. Yoshida, K. Watanabe, T. Mishima, *Properties of Ga-doped, high-quality bulk GaN crystals fabricated by hybride vapor phase epitaxy*, J. Cryst. Growth **312**, 3569 (2010)
- [Pak04] K. Pakula, R. Bozek, J. M. Baranowski, J. Jasinski and Z. Liliental-Weber, *Reduction of dislocation density in heteroepitaxial GaN: role of SiH₄ treatment*, J. Cryst. Growth, 2004, 267, 1–7 [Pan98] D. M. Pankove, Jaques I.; Theodore et al., *Gallium Nitride (GaN) I*, Bd. 50, Academic Press (1998)
- [Pal04] S. Pal and C. Jacob, *Silicon - a new substrate for GaN growth*. Bull. Mater. Sci. **27**, 501 (2004)

- [Par00] G. Parish, S. Keller, S. P. DenBaars, and U. K. Mishra, *SIMS Investigations into the effect of Growth Conditions on Residual Impurity and Silicon Incorporation in GaN and Al_xGa_{1-x}N*, J. Electr. Mat. **29**, 15 (2000)
- [Pas10] P. Paskov, IWN Tampa, Session C1: Optical and Magnetic Properties, *Donor Bound Excitons in GaN* (2010)
- [Pen11] S. J. Pennycook, P. D. Nellist, *Scanning Transmission Electron Microscopy: Imaging and Analysis*, New York, Springer Science + Business Media, LLC, , online resource (2011)
- [Pol96] A. Polian, M. Grimsditch, and I. Grzegory, *Elastic constants of gallium nitride*, J. Appl. Phys., **79**, 3343-3344 (1996)
- [Pon96] F. A. Ponce, S. P. Bour, W. Gotz, and P. J. Wright, *Spatial distribution of the luminescence in GaN thin films*, Appl. Phys. Lett. **95**, 57-59 (1996)
- [Pta01] A. J. Ptak, L. J. Holbert, L. Ting, C. H. Swartz, M. Moldovan, N. C. Giles, T. H. Myers, P. Van Lierde, C. Tian, R. A. Hockett, and S. Mitha, A. E. Wickenden, D. D. Koleske, R. L. Henry, *Controlled oxygen doping of GaN using plasma assisted molecular-beam epitaxy*, Appl. Phys. Lett. **79**, 17 (2001)
- [Qi08] Y. Qi, S. T. King, S. H. Cheung, M. Weinert, L. Li, *Incorporation of Ge on GaN (0001)*, Appl. Phys. Lett. **92**, 111918 (2008)
- [Rag05] S. Raghavan, X. Weng, E. Dicky, J. M. Redwing, *Effect of AlN interlayers on growth stress in GaN layers deposited on (111)Si*, Appl. Phys. Lett. **87**, 142101 (2005)
- [Rah08] R. O. Rahmatalla und M. Boota, *Growth of GaN on lattice matched AlInN substrates*, Linköping University, Schweden, Masterarbeit, (2008)
- [Rat00] V. Ratnikov, R. Kyutt, T. Shubina, T. Paskova, E. Valcheva, B. Monnemar, *Bragg and Laue x-ray diffraction study of dislocations in thick hydride vapor phase epitaxy GaN films*, J. Appl. Phys. **88**, No. 11, (2000)
- [Rav12] R. Ravash, P. Veit, M. Müller, G. Schmidt, A. Dempewolf, T. Hempel, J. Bläsing, F. Bertram, A. Dadgar, J. Christen, A. Krost, *Growth and stacking fault reduction in semi-polar GaN films on planar Si(112) and Si(113)*, Phys. stat. sol.C **9** (3/4), 507-510 (2012)
- [Rei03] A. Reiher, J. Bläsing, A. Dadgar, A. Diez, A. Krost, *Efficient stress relief in GaN heteroepitaxy on Si(111) using low-temperature AlN interlayers*, J. Cryst. Growth **248**, 563 (2003)
- [Rei07] A. Reiher, *Elektrische Anregung von Zellsystemen mit zweidimensionalen Elektrodenstrukturen*, Dissertation, Uni Magdeburg, 2007
- [Rei09] F. Reiher, *Wachstum von Galliumnitrid-basierten Bauelementen auf Silizium(001)-Substraten mittels metallorganischer Gasphasenepitaxie*, Dissertation, Universität Magdeburg, 2009
- [Rod05] C. Roder, S. Einfeldt, S. Figge, D. Hommel, *Temperature dependence of the thermal expansion of GaN*, Phys. Rev. B **72**, 085218 (2005)
- [Rod07] C. Roder, *Analyse struktureller Eigenschaften von GaN mittels hochauflösender Röntgenbeugung*, Dissertation, Uni Bremen, 2007
- [Rom96] L. T. Romano, J. E. Northrup, M. A. O'Keefe, *Inversion domains in GaN grown on sapphire*, Appl. Phys. Lett. **69**, 2394 (1996).

- [Rom97] A. E. Romanov, W. Pompe, G. Beltz, J. S. Speck, *Modeling of Threading Dislocation Density Reduction in Heteroepitaxial Layers*, Phys. Stat. Sol. (b) **199** (1), 33-49 (1997)
- [Rom99] L. T. Romano, C. G. Van d Walle, B. S. Krsor, R. Lau, J. Ho, T. Schmidt, J. W. Ager III, W. Götz, R. S. Kern, *Effect of Si doping on the strain and defect structure of GaN thin films*, Physica B **273-274**, 50 (1999)
- [Rom00] L. T. Romano, C. G. Van de Walle, J. W. Ager III, W. Götz, R. S. Kern, *Effect of Si doping on strain, cracking, and microstructure in GaN thin films grown by metalorganic chemical vapor deposition*, J. Appl. Phys. **87**, 7745 (2000)
- [Rom03] A. E. Romanov and J. S. Speck, *Stress relaxation in mismatched layers due to threading dislocation inclination*, Appl. Phys. Lett. **83**, 2569 (2003)
- [Ros97] S. J. Rosner, E. C. Carr M. J. Ludowise, G. Girolami, and H. I. Erikson, *Correlation of cathodoluminescence inhomogeneity with microstructural defects in epitaxial GaN grown by metalorganic chemical-vapor deposition*, Appl. Phys. Lett. **70**, 420 (1997)
- [Ros02] A. L. Rosa, J. Neugebauer, J. E. Northrup, Chae-Deok Lee, and R. M. Feenstra, *Adsorption and incorporation of silicon at GaN(0001) surfaces*, Appl. Phys. Lett. **80**, 2008 (2002)
- [Ros06] A. L. Rosa und J. Neugebauer, *Understanding Si adsorption on Ga(0001) surfaces using first-principles calculations*, Phys. Rev. B **73**, 205314 (2006)
- [Rut01] P. Ruterana and G. Nouet, *Atomic structure of extended defects in wurtzite GaN epitaxial layers*, Phys. Stat. Sol. B **227B** (1), 177-228 (2001)
- [Ruv98] S. Ruvimov, Z. Liliental-Weber, J. Washburn, H. Amano, I. Akasaki, M. Koike, Mat. Res. Soc. Symp. Proc. **482**, 387 (1998).
- [Seo12] http://www.seoulsemicon.com/en/html/company/press_view.asp?Idx=223, Press Release vom 04. Juli 2012
- [Sch10] R. Schreiner, A. R. Boyd, O. Rockenfeller, J. Kaeppler, B. Schineller, M. Heuken, CS Mantech Conference **18.4**, 333 (2010)
<http://www.csmantech.org/Digests/2010/index2010.html>
- [Sch11] E. Schlücker, *Die Nachkommen der Glühbirne*, Uni-Erlangen 2011,
<http://www.uni-erlangen.de/infocenter/meldungen/forschung/2011/9/27/80.shtml>
- [Sie98] H. Siegle, *Gitterdynamik und Defekte in Gallium- und Aluminiumnitrid (Doktorarbeit)*, TU-Berlin, Wissenschaft und Technik Verlag, 1998
- [She02] J. K. Sheu and G. C. Chi, *The doping process and dopant characteristics of GaN*, J. Phys.: Condens. Matter **14**, R657 (2002)
- [Spi09] L. Spieß, G. Teichert, R. Schwarzer, H. Behnken, C. Genzel, *Moderne Röntgenbeugung – Röntgendiffraktometrie für Materialwissenschaftler, Physiker und Chemiker*, 2. Auflage, Vieweg + Teubner, GWV Fachverlage GmbH, Wiesbaden 2009
- [Sto09] G. Stoney, Proc. R. Soc. London, Ser. **A82** 172 (1909)
- [Str97] A. Strittmatter, A. Krost, K. Schatke, D. Bimberg, J. Bläsing, J. Christen, Proc. 7 ICSCIII-N `97, 1145 (1997)

- [Str99] A. Strittmatter, A. Krost, V. Türck, M. Straßburg, D. Bimberg, J. Bläsing, T. Hempel, J. Christen, B. Neubauer, D. Gerthsen, T. Christmann, B. K. Meyer, *LP-MOCVD growth of GaN on silicon substrates - comparison between AlAs and ZnO nucleation layer*. Mat. Sci. Eng. **B59**, 29 (1999)
- [Str99a] A. Strittmatter, A. Krost, M. Straßburg, V. Türck, D. Bimberg, J. Bläsing, and J. Christen, *Low-pressure metal organic chemical vapor deposition of GaN on silicon(111) substrates using an AlAs nucleation layer*, Appl. Phys. Lett. **74**, 1242 (1999)
- [Sug98] T. Sugahara, H. Sato, M. Hao, Y. Naoi, S. Kurai, S. Tottori, K. Yamashita, K. Nishino, L. T. Romano, and S. Sakai, *Direct Evidence that Dislocations are Non-Radiative Recombination Centers in GaN*, Jpn. J. Appl. Phys. **37**, L398 (1998)
- [Sun02] X. L. Sun, S. H. Goss, L. J. Brillson, D. C. Look, R. J. Molnar, *Depth-dependent investigation of defects and impurity doping in GaN on sapphire using scanning electron microscopy and cathodoluminescence spectroscopy*, J. Appl. Phys. **91** (10), (2002), pp. 6729- 6738
- [Sun12] Qian Sun and Jung Han, *Chapter 1: Heteroepitaxy of Nonpolar and Semipolar GaN* from S. Pearton (ed.), *GaN and ZnO-based Materials and Devices*, Springer Series in Materials Science 156, Springer-Verlag Berlin Heidelberg (2012)
- [Tak91] T. Takeuchi, H. Amano, K. Hiramatsu, N. Sawaki, I. Akasaki, *Growth of single crystalline GaN film on Si substrate using 3CSiC as an intermediate layer*. J. Crystal Growth, **115**, 634 (1991)
- [Tak97] S. Sota, M. Katsuragawa, M. Komori, H. Takeuchi, H. Amano and I. Akasaki, *Quantum-Confined Stark Effect due to Piezoelectric Fields in GaInN Strained Quantum Wells*, Jpn. J. Appl. Phys. (1997) pp. L382-L385
- [Tak06] K. Takemoto, H. Murakami, T. Iwamoto, Y. Matsuo, Y. Kangawa, Y. Kumagai, A. Koukitu, *GaN growth directly on Si (111) substrate by controlling atomic configuration of Si surface by metalorganic vapor phase epitaxy*. Jpn. J. Appl. Phys. **45**, L478 (2006)
- [Tal01] R.A. Talalaeva, E.V. Yakovleva, S.Yu. Karpova, Yu.N. Makarov, *On low temperature kinetic effects in metal-organic vapor phase epitaxy of III-V compounds*, J. Cryst. Growth **230**, 232-238 (2001)
- [Tan00] S. Tanaka, M. Takeuchi and Y. Aoyagi, *Anti-surfactant in III-nitride epitaxy - quantum dot formation and dislocation termination*, Jpn J. Appl. Phys., Part 2, 2000, **39**, (8B), L831-L834
- [Tin11] T. Li, M. Mastro, A. Dadgar, *III-V Compound Semiconductors – Integration with Silicon-Based Microelectronics*, Part II / 4: New Technology Approaches, CRS Press Taylor & Francis Group, 1. Auflage, 2011
- [Tok08] Y. Tokumoto, N. Shibata, T. Mizoguchi, M. Sugiyama, Y. Shimogaki, J. S. Yang, T. Yamamoto, Y. Ikuhara, *High-resolution transmission electron microscopy (HRTEM) observation of dislocation structures in AlN thin films*, J. Mater. Res. **23** (8), 2188-2194 (2008)
- [Tou09] A. Touré, I. Halidou, Z. Benzarti, T. Boufaden, *Growth temperature effect on MOVPE Si-doped GaN: Thermodynamic modeling*, Microelectronics Journal **40**, 363-366 (2009)
- [Tri12] S. Tripathy, Gespräch über GaN on Si Pufferschichten für das MOCVD-Wachstum auf 8“ Si Substraten, Mai 2012

- [Vur03] I. Vurgaftman, J. R. Meyer, *Band parameters for nitrogen-containing semiconductors*, J. Appl. Phys. **94** 3675 (2003)
- [Ven97] P. Vennegues, B. Beaumont, M. Vaille and P. Gibart, *Microstructure of GaN epitaxial films at different stages of the growth process on sapphire (0001)*, J. Cryst. Growth, 1997, **173**,(3–4), 249–259
- [Wak04] A. Wakahara, R. Tanaka, S. Hatakenaka, H. Okada, A. Yoshida, and M. Ishida, *Growth of GaN on Si substrate using γ -Al₂O₃ epitaxial template for MEMS applications*. ICEE Conference Paper **223** (2004)
- [Wal04] C. G. van de Walle and J. Neugebauer, *First-principles calculations for defects and impurities: Applications to III-nitrides*, Appl. Phys. Lett. **95**, 3851-3879 (2004)
- [Wat93] A. Watanabe, T. Takeuchi, K. Hirosawa, H. Amano, K. Hiramatsu, I. Akasaki, *The growth of single crystalline GaN on a Si substrate using AlN as an intermediate layer*. J. Cryst. Growth **128**, 391(1993)
- [Wei98] N. G. Weimann, L. F. Eastman, D. Doppalapudi, H. M. Ng, and T. D. Moustakas, *Scattering of electrons at threading dislocations in GaN*, J. Appl. Phys. **83**, 3656 (1998)
- [Wei11] M. Wei, X. Wang, X. Pan, H. Xiao, C. Wang, M. Zhang, Z. Wang, *Influence of AlGaIn Buffer Growth Temperature on GaN Epilayer based on Si(111) Substrate*. J. Physics: Conference Series **276**, 012094 (2011)
- [Wic95] A. E. Wickenden, L. B. Rowland, K. Doverspike, D. K. Gaskil, J. A. Jr. Freitas, N. D. S. Simons and P. H. Chi, *Doping of gallium nitride using disilane*, J. Electron. Mater. **24**, 1547 (1995)
- [Wie11] M. Wieneke, M. Noltemeyer, B. Bastek, A. Rohrbeck, H. Witte, P. Veit, J. Bläsing, A. Dadgar, J. Christen, and Al. Krost, *Heavy Si doping: The key in heteroepitaxial growth of a-plane GaN without basal plane stacking faults?*, Phys. Stat. Solidi (b), **248**, 3, pp. 578–582, (2011)
- [Wie13] M. Wieneke, H. Witte, K. Lange, M. Feneberg, A. Dadgar, J. Bläsing, R. Goldhahn, A. Krost, *Ge as a surfactant in metal-organic vapor phase epitaxy growth of a-plane GaN exceeding carrier concentrations of 10^{20} cm^{-3}* , Appl. Phys. Lett. **103**, 012103 (2013)
- [Wik14] Wikipedia – Online Enzyklopädie: Energiesparende Leuchtmittel;
http://de.wikipedia.org/wiki/Energiesparende_Leuchtmittel
- [Wri98] A. F. Wright, U. Grossner, *The effect of doping and growth stoichiometry on the core structure of a threading edge dislocation in GaN*, Appl. Phys. Lett. **73**, 19, (1998)
- [Wu96] X.-H. Wu, L. M. Brown, D. Kapolnek, S. Keller, S. P. DenBaars, and J. S. Speck, *Defect structure of metal-organic chemical vapor deposition-grown epitaxial (0001) GaN/Al₂O₃*, J. Appl. Phys. **80** 3228 (1996)
- [Wu98] X. H. Wu, P. Fini, E. J. Tarsa, B. Heying, S. Keller, U. K. Mishra, S. P. DenBaars and J. S. Speck, *Dislocation generation in GaN heteroepitaxy*, J. Cryst. Growth **189/190**, 231-243 (1998)

- [Wu05] J. Wu, X. Han, J. Li, D. Li, Y. Lu, H. Wei, G. Cong, X. Liu, Q. Zhu, Z. Wang, *Crack-free GaN/Si(111) epitaxial layers grown with InAlGaN alloy as compliant interlayer by metalorganic chemical vapor deposition*, J. Cryst. Growth **279**, pp. 335-340, (2005)
- [Wu07] Liang-Wen Wu und Fen-Ren Chien, *Nitride based semiconductor device having multiple layer buffer structure and fabrication method thereof*, United States Patent Application Publication, Pub. No.: US2007/0090384 A1, Pub. Date: 16. April 2007
- [Wu08] J. Wu, L. Zhao, G. Zhang, X. Liu, Q. Zhu, Z. Wang, Q. Jia, L. Guo, T. Hu, *Effect of indium-doped interlayer on the strain relief in GaN films grown on Si(111)*, Phys. Stat. Sol. (a) **205**, No. 2, pp. 294-299, (2008)
- [Xin98] Y. Xin, S. J. Pennycook, N. D. Browning, P. D. Nellist, S. Sivananthan, F. Omnès, B. Beaumont, J. P. Faurie and P. Gibart, *Direct observation of the core structures of threading dislocations in GaN*, Appl. Phys. Lett. **72**, 2680 (1998)
- [Xie11] J. Xie, S. Mita, a. Rice, J. Tweedie, L. Hussey, R. Collazo, Z. Sitar, *Strain in Si doped GaN and the Fermi level effect*, Appl. Phys. Lett. **98**, 202101 (2011)
- [Xie11a] J. Xie, S. Mita, L. Hussey, A. Rice, J. Tweedie, J. LeBeau, R. Collazo, and Z. Sitar, *On the strain in n-type GaN*, Appl. Phys. Lett. **99**, 141916 (2011)
- [Xio10] J. Xiong, J. Tang, Y. Wang, C. Xue, W. Shi, W. Zhang, *Characterization of crystal lattice constant and dislocation density of crack-free GaN films grown on Si(111)*, Appl. Surf. Sci. **257** (4), pp. 1161-1165 (2010)
- [Yam79] H. Yamashita, K. Fukui, K., S. Misawa, S. Yoshida, *Optical properties of AlN epitaxial thin films in the vacuum ultraviolet region*, J. Appl. Phys. **50** (1979) 896.
- [Yan96] J. W. Yang, C. J. Sun, Q. Chen, M.Z. Anwar, M.S. Khan, S. A. Nikishin, G.A. Seryogin, A. V. Osinsky, L. Chernyak, H. Temkin, C. Hu, S. Mahajan, *High quality GaN-InGaN heterostructures grown on (111) silicon substrates*. Appl. Phys. Lett. **69**, 3566 (1996)
- [Yan00] J. W. Yang, A. Lunev, G. Simin, A. Chitnis, M. Shatalov, M. Asif Khan, J. E. Nostrand, and R. Gaska, *Selective area deposited blue GaN-InGaN multiple quantum well light emitting diodes over silicon substrates*. Appl. Phys. Lett. **76**, 273 (2000)
- [Yi96] G. C. Yi and B. W. Wessels, *Compensation of n-type GaN*, Appl. Phys. Lett. **69** 3028 (1996)
- [Yod01] T. Yodoa, H. Andoa, H. Tsuchiyaa, D. Noseia, M. Shimenoa, Y. Haradab, *Influence of substrate nitridation before growth on initial growth process of GaN heteroepitaxial layers grown on Si(001) and Si(111) substrates by ECR-MBE*. J. Cryst. Growth **227–228**, 431 (2001)
- [Yol12] Yole development, *Power GaN - GaN technologies for power electronic applications: Industry and market status & forecasts*, 2012 edition,
- [Yue09] T. Yuebin, C. Zhizhang, Y. Zhijian, S. Liwen, C. Zhitao, L. Ding, F. Hao, P. Yaobo, Y. Jianfeng, Z. Guangmin, C. Cheng, L. Shitao, H. Moasheng, and Z. Guoyi, *Improvement of crystal quality of GaN grown on AlN template by MOCVD using HT-AlN interlayer*, Phys. Stat. Sol. (c) **6**, S317 (2009)
- [Zha95] X. Zhang, P. Kung, A. Saxler, D. Walker, T. C. Wang, and M. Razeghi, *Growth of AlGaIn on sapphire and silicon substrates*, Appl. Phys. Lett. **67**, 1745 (1995)

8. Anhang

8.1. Lebenslauf

Schulische Ausbildung

1990 - 1994	Grundschule Ottersleben in Magdeburg
1994 - 2003	Ökumenisches Domgymnasium Magdeburg Abschluss: Abitur 6/2003

Studium

10/2003 - 5/2009	Otto-von-Guericke-Universität Magdeburg Physik (Diplom) Abschlussnote: 1,5 Titel der Belegarbeit: „LED-Dünnschichttechnologie auf der Basis von GaN auf Si“ Titel der Diplomarbeit: „Entwicklung eines Messplatzes für Röntgen-Fluoreszenzanalyse an dünnen Schichten“
seit 6/2009	Promotionsstudium an der Otto-von-Guericke-Universität Magdeburg Titel der Dissertation: „Wachstumsoptimierung und Charakterisierung von MOVPE- basierten GaN Pufferstrukturen auf Si(111) Substraten“

Zusätzlich zum Studium

seit 2006	Mitglied des Fachschaftsrates für Naturwissenschaften
seit 2008	Studentisches Mitglied des Prüfungsausschusses der FNW
seit 2008	Studentisches Mitglied zahlreicher Berufungskommissionen für die Besetzung von W3-Professuren in der Physik
2009	Mitglied des Konvertierungsgremiums für die Bachelor/Master Akkreditierung

Berufseinstieg

seit 05/2012	Technischer Vertrieb bei der Firma LayTec AG
--------------	--

8.2. Publikationsliste

Eigene Publikationen:

- **S. Fritze**, A. Dadgar, H. Witte, M. Bügler, A. Rohrbeck, J. Bläsing, A. Hoffmann, A. Krost, *High Si and Ge n-type doping of GaN doping - Limits and impact on stress*, Appl. Phys. Lett. **100** (12), 122104 (2012)
- **S. Fritze**, P. Drechsel, P. Stauss, P. Rode, T. Markurt, T. Schulz, M. Albrecht, J. Bläsing, A. Dadgar, and A. Krost, *Role of low-temperature AlGa_N interlayers in thick GaN on silicon by metalorganic vapor phase epitaxy*, J. Appl. Phys. **111** (12), 124505 (2012)

Publikationen als Koautor:

- Dadgar, T. Hempel, J. Bläsing, O. Schulz, S. Fritze, J. Christen, A. Krost, *Improving GaN-on-silicon properties for GaN device epitaxy*, Phys. Stat. Solidi c **8** (5), 1503–1508, May 2011
- P. Drechsel, P. Stauss, W. Bergbauer, P. Rode, S. Fritze, A. Krost, T. Markurt, T. Schulz, M. Albrecht, H. Riechert, U. Steegmüller, *Impact of buffer growth on crystalline quality of GaN grown on Si(111) substrates*, Phys. Status Solidi A **209**, No. 3, 427–430 (2012)
- Dadgar, **S. Fritze**, O. Schulz, J. Hennig, J. Bläsing, H. Witte, A. Diez, U. Heinle, M. Kunze, I. Daumiller, K. Haberland, and A. Krost, *Anisotropic bow and plastic deformation of GaN on silicon*, J. Cryst. Growth, **370**, 278–281 (2013)
- M. Feneberg, S. Osterburg, K. Lange, C. Lidig, R. Goldhahn, E. Richter, C. Netzel, M. D. Neumann, N. Esser, **S. Fritze**, H. Witte, J. Bläsing, A. Dadgar, A. Krost, *Band gap renormalization and Burstein-Moss effect in wurtzite GaN*, Phys. Rev. B **90**, 075203 (2014)

Eidesstattliche Erklärung

Hiermit erkläre ich eidesstattlich, dass ich die vorliegende Dissertationsschrift selbständig verfasst und keine anderen als die aufgeführten Hilfsmittel und Quellen verwendet habe.

Berlin, den 31.07.2014

Dipl.-Phys. Stephanie Fritze