



ulm university universität
uulm

Transmissionselektronenmikroskopische Analysen zur Defektreduktion mittels SiN_x Zwischenschichten in AlGaN Heterostrukturen

Dissertation

zur Erlangung des Doktorgrades
Dr. rer. nat.
der Fakultät für Naturwissenschaften der Universität Ulm

vorgelegt von
Dipl.-Phys. oec. Oliver Klein
aus Günzburg

2011

Eingereicht am 12.12.2011

bei der Fakultät für Naturwissenschaften der Universität Ulm

amtierender Dekan: Prof. Dr. Axel Groß

1. Gutachter: Prof. Dr. Ute Kaiser

2. Gutachter: Prof. Dr. Ferdinand Scholz

Tag der Promotion: 19.04.2012

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung.....	1
2	Materialsystem	5
2.1	Eigenschaften der Gruppe III-Nitride	5
2.2	Wachstum der Gruppe III-Nitride	8
3	Versetzungen	12
3.1	Grundlagen.....	12
3.2	Ursachen für die Bildung von Versetzungen in Al(Ga)N	14
3.3	Einfluss von Versetzungen auf optoelektronische Bauelemente.....	16
3.4	Möglichkeiten der Defektreduktion	19
3.4.1	Defektreduktion mittels ex-situ gewachsener ELO- und FACELO-Strukturen	20
3.4.2	Defektreduktion mittels in-situ gewachsener SiN _x Zwischenschichten.....	21
3.5	Typen von Versetzungen in der hcp- und Wurtzitstruktur	24
4	Transmissionselektronenmikroskopie (TEM).....	26
4.1	Theoretische Grundlagen	26
4.1.1	Aufbau eines TEMs.....	26
4.1.2	Elektronenbeugung.....	29
4.1.3	Kikuchilinien	32
4.1.4	Kontrastentstehung im TEM	34
4.1.5	Hochauflösende Transmissionselektronenmikroskopie (HRTEM).....	37
4.1.6	Bestimmung von Verspannungsfeldern in HRTEM Abbildungen mittels geometrischer Phasenanalyse (GPA)	44
4.1.7	Rastertransmissionselektronenmikroskopie (STEM)	46
4.1.8	Energiedispersive Röntgenspektroskopie (EDXS).....	47
4.2	Kristallprojektionen von Al(Ga)N im TEM.....	48
4.3	Probenpräparation	49
4.3.1	Querschnittspräparation.....	50
4.3.2	Aufsichtspräparation.....	51
4.4	Versetzungsanalysen mit der weak-beam dark-field (WBDF) Technik	51
4.5	Bildsimulation	56
5	Untersuchungen zur defektreduzierenden Wirkung von SiN_x Nano-Masken in AlGaIn.....	59
5.1	Charakterisierung des untersuchten Schichtsystems	59
5.2	Querschnittsuntersuchungen im Bereich der SiN _x Zwischenschicht	60
5.3	Einfluss der SiN _x Nano-Maske auf die Propagation von Versetzungsdipolen.....	64
5.3.1	Entwicklung eines Versetzungsmodells aus experimentellen Aufsichtsuntersuchungen	64
5.3.2	Vergleichende Bildsimulation	69
5.3.3	SiN _x bedingte Interaktion der Versetzungsdipole und Erweiterung des Versetzungsmodells..	71
5.3.4	Verifizierung der betrachteten Dipolinteraktion im Experiment	76

5.4	Bestimmung der Versetzungsdichten.....	78
5.5	Zusammenfassung.....	80
6	Entwicklung eines Modells für das Wachstum von AlGaIn auf SiN_x.....	82
6.1	Untersuchung wachstumsunterbrochener Schichten – Zusammenhang zwischen Versetzungspromagation und Variationen im epitaktischen Wachstum.....	82
6.2	Ursache variierender defektreduzierender Effizienz von SiN _x und wechselnder epitaktischer Wachstumsmodi	86
6.3	Veranschaulichung des AlGaIn Wachstums auf SiN _x im Modell	92
6.4	Bildung von Stapelfehlern und deren Bezug zum Wachstumsmodell	93
6.5	Zusammenfassung.....	96
7	Abschließende Darstellung der Ergebnisse und Ausblick.....	98
7.1	Zusammenfassung der Ergebnisse	98
7.2	Ausblick - Möglichkeiten der dreidimensionalen Analyse von Versetzungen in AlGaIn mittels Elektronentomographie.....	100
7.2.1	Aspekte der Versetzungstomographie und experimentelle Voraussetzungen	100
7.2.2	Aufnahme der Kippserie und erste Ergebnisse.....	102
8	Literaturverzeichnis.....	105
	Eigene wissenschaftliche Publikationen sowie Posterbeiträge und Vorträge.....	114
	Ehrenwörtliche Erklärung.....	115
	Danksagung.....	116
	Lebenslauf.....	118

1 Einleitung

Seit den letzten 20 Jahren ist das Materialsystem der Gruppe III-Nitride einer der am umfangreichsten untersuchten Halbleiter. Als Gruppe III-Nitride werden hierbei die binären Verbindungshalbleiter Aluminiumnitrid (AlN), Galliumnitrid (GaN) und Indiumnitrid (InN) bezeichnet. Die intensiven Forschungsbemühungen an diesem Materialsystem liegen primär in den elektronischen Eigenschaften der Gruppe III-Nitride begründet, die das Material vor allem für optoelektronische Anwendungen wie LEDs und Laserdioden interessant machen. Mit den direkten Bandlücken von 6.1eV für α -AlN, 3.4eV für α -GaN und 0.7eV für α -InN lässt sich mit nur einem Materialsystem durch Mischung der Materialien zu den ternären Legierungen $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$, $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ und $\text{Al}_x\text{In}_{1-x}\text{N}$ abhängig vom Konzentrationsverhältnis der Metallatome hinsichtlich der Emission und Detektion elektromagnetischer Strahlung das komplette Wellenlängenspektrum vom tiefen IR (1800nm) über den sichtbaren Bereich bis zum tiefen UV (200nm) abdecken. Darüber hinaus weisen die Materialien aufgrund ihrer großen Bindungsenergien eine hohe thermische und chemische Stabilität auf, was neben der Herstellung von optoelektronischen Bauelementen mit hoher Leistungsdichte auch die Realisierung elektronischer Komponenten wie Hochleistungs-FETs und deren Einsatz bei widrigen Umgebungsbedingungen ermöglicht [1, 2]. Bereits in den 1960er Jahren wurde das Potential der Gruppe III-Nitrid Halbleiter erkannt, allerdings blieb trotz intensiver Forschungen die Herstellung von optoelektronischen Bauelementen zunächst in weiter Ferne. Dies ist im Wesentlichen auf zwei Probleme zurückzuführen, die nach wie vor die Wissenschaft vor große Herausforderungen stellt. Ein Problem betrifft die Herstellung und Epitaxie von qualitativ hochwertigen Gruppe III-Nitrid Schichtsystemen selbst. Da nitridbasierende Substrate in industriellem Umfang noch nicht verfügbar sind, werden die Gruppe III-Nitride nach wie vor auf Fremdsubstrate wie Saphir oder SiC abgeschieden. Aufgrund der bei hohen Wachstumstemperaturen schlechten Hafteigenschaften der Gruppe III-Nitride auf der glatten Fremdsubstratoberfläche, der von Substrat und Schicht unterschiedlichen thermischen Ausdehnung und nicht zuletzt der hohen Gitterfehlانpassung ist es lange Zeit nicht gelungen, zunächst für reines GaN überhaupt ein geordnetes epitaktisches Wachstum zu erzielen. Ein großer Durchbruch zur Herstellung qualitativ hochwertiger GaN Epitaxieschichten auf Saphir gelang 1986 der Gruppe um Amano [3] und 1991 Nakamura [4] mit der Einführung von bei niedrigen Temperaturen gewachsenen AlN bzw. GaN Nukleationsschichten. Trotz der erfolgreichen Verwendung eines zweistufigen Wachstumsprozesses zur Abscheidung hochwertiger GaN Schichten mit geringen Oberflächenrauigkeiten und einer verschwindenden Dichte an zweidimensionalen Defekten wie Korngrenzen, waren die Schichten für optoelektronische Anwendungen zunächst noch ungeeignet. Neben den Schwierigkeiten in der Epitaxie war die Realisierung einer p-Leitfähigkeit durch Dotierung mit Magnesium lange Zeit ebenfalls ein ungelöstes Problem. Dies liegt zum einen daran, dass die während des Wachstums von GaN eingebauten n-dotierenden Defekte Magnesium als Akzeptor kompensieren. Erst als allerdings Amano 1989 erkannt hatte, dass die Ausbildung von Wasserstoff-Magnesium-Komplexen eine p-Leitfähigkeit durch Passivierung des Akzeptors verhindert und diese durch Beschuss mit Elektronen geringer Energie aufgebrochen werden können, wurde eine brauchbare p-Leitfähigkeit in GaN erzielt [5]. Noch höhere Aktivierungsraten des Akzeptors wurden von Nakamura et al. durch nachträgliches Tempern von GaN erreicht [6]. Die nun vorhandene Möglichkeit, das Wachstum von GaN auf Fremdsubstrate zu kontrollieren und darüber hinaus eine p-Leitfähigkeit zu realisieren, führten zu einem massiven Aufschwung speziell in der Forschung an GaN und InGaN Heterostrukturen, in dessen Folge 1989 die erste GaN LED [7] und 1996 die ersten blauen Laserdioden [8] hergestellt wurden.

Die Kommerzialisierung blau und grün emittierender LEDs ebenfalls von Nakamura und seinen Kollegen Mitte der 1990er Jahre [9] ist auch der Eigenschaft der auf GaN basierenden Bauelemente zu verdanken, dass diese erstaunlicherweise trotz hoher Versetzungsdichten im Bereich von 10^{10}cm^{-2} vergleichbare Leuchteffizienzen aufweisen wie nahezu defektfreie LEDs auf Basis von AlGaInP [10], obwohl die an der Grenzfläche Substrat/Schicht entstehenden und bis zur Oberfläche propagierenden Durchstoßversetzungen dafür bekannt sind, als Zentren nicht-strahlender Rekombination die Quanteneffizienz und Lebensdauer des Bauteils zu reduzieren [11, 12]. Die Ursache für die in Relation zu den hohen Versetzungsdichten annehmbaren Lichtausbeuten in GaN LEDs wird nach wie vor kontrovers diskutiert. Dabei wird u.a. vermutet, dass es in den aus InGaIn bestehenden Quantentrogstrukturen grüner und blauer LEDs während des Wachstums zu einem Indium-Clustering kommt, wobei die damit verbundene Bildung von Exzitonenniveaus die nicht-strahlende Rekombination an den Durchstoßversetzungen kompensiert [13]. Eine andere Möglichkeit wird von Cherns et al. beschrieben [14], wonach die Durchstoßversetzungen negativ geladen sind und somit eine Streuung der Elektronen an den Versetzungen verhindert wird. Um allerdings die Lichtausbeute von grünen und blauen GaN LEDs weiter zu verbessern und auch eine akzeptable Lebensdauer für blaue GaN Laserdioden zu erzielen, die aufgrund der hohen Stromdichten deutlich empfindlicher auf hohe Versetzungsdichten reagieren, wurden in den letzten 20 Jahren enorme Anstrengungen zur Verringerung der Versetzungsdichten unternommen. Speziell im Bereich der GaN-Forschung wurden mittels spezieller Epitaxieverfahren, wie ELO (epitaxial lateral overgrowth) und FACELO (facet controlled epitaxial lateral overgrowth) [15-20], sowie mittels in-situ gewachsener SiN_x Zwischenschichten [21-29], die Dichte der Durchstoßversetzungen beim Wachstum von reinem GaN auf Fremdsubstrate mit hoher Effizienz reduziert. So konnte die Lebensdauer bei blauen GaN/InGaIn Laserdioden mit durch ELO reduzierten Versetzungsdichten von nur $2 \cdot 10^7\text{cm}^{-2}$ von nur wenigen Stunden auf über 1150h erhöht werden [30]. Mittlerweile ermöglichen blaue GaN/InGaIn Laserdioden im Rahmen des sogenannten Blu-Ray Formats die Speicherung von Daten auf optischen Medien mit einer im Vergleich zur DVD (Digital Versatile Disc) fünffachen Speicherkapazität von 25 Gigabytes. Auf Basis blauer GaN/InGaIn LEDs sind inzwischen für den Bereich der Allgemeinbeleuchtung unter Verwendung gelbemittierender Konverterstoffe weiße LEDs kommerziell erhältlich. Top-Lichtausbeuten für weiße Hochleistungs-LEDs im Bereich von 200lm/W [31] ermöglichen mittlerweile sogar deren Einsatz in Form von Voll-LED-Scheinwerfern in der Automobilindustrie [32].

Während durch intensive Forschung speziell an GaN/InGaIn Heterostrukturen große Erfolge bis hin zur Kommerzialisierung entsprechender Bauelemente erzielt wurden, gibt es für das Materialsystem AlN/AlGaIn noch großen Nachholbedarf. Hohe Aluminiumkonzentrationen bis hin zum reinen AlN bieten das Potential zur Herstellung kurzwelliger Lichtemitter im Ultraviolett. In einem Wellenlängenbereich zwischen 350 und 200nm ergibt sich eine Vielzahl neuer Anwendungsmöglichkeiten, wie zum Beispiel der Einsatz von UV-LEDs in der Medizin zur Behandlung von Hautkrankheiten, als nicht-chemische und effiziente Möglichkeit der Wasserentkeimung oder in der Automobilindustrie zur Schnelltrocknung von Lacken. Allerdings hat sich das Material AlGaIn mit hohen Aluminiumkonzentrationen noch herausfordernder erwiesen als GaN, weswegen der größte Teil der bislang erschienenen Publikationen im Bereich der Nitridforschung dem Materialsystem GaN/InGaIn zukommt. Aufgrund der mit größeren Bandlücken zunehmenden Aktivierungsenergien des Dotierstoffs Magnesium ist vor allem die geringe p-Leitfähigkeit von AlGaIn nach wie vor ein großes Problem [33, 34]. Zur Realisierung von UV-LEDs mit optischen Lichtleistungen von mehreren mW ist darüber hinaus die Reduzierung der Versetzungsdichte in den auf Fremdsubstraten gewachsenen AlGaIn Heterostrukturen unerlässlich. So wird in [35] durch

Simulation gezeigt, dass die interne Quanteneffizienz (IQE) bei einer 280nm AlGaIn LED bei typischen Versetzungsdichten im Bereich von 10^{10} bis 10^{11}cm^{-2} nur noch im einstelligen Prozentbereich liegt und für eine IQE von über 50% Versetzungsdichten von 10^9cm^{-2} und weniger erreicht werden müssen. Es hat sich allerdings herausgestellt, dass gerade die Epitaxie von versetzungsarmen AlGaIn Schichten mit hohen Aluminiumkonzentrationen eine besondere Herausforderung darstellt. Die Möglichkeit, versetzungsarmes AlGaIn auf eine zuvor auf Saphir gewachsene reine GaN Pufferschicht abzuscheiden, in der die Versetzungsdichte mittels des erfolgreich eingesetzten ELO Verfahrens oder einer SiN_x Zwischenschicht reduziert wurde, ist wenig zielführend, da GaN das UV Licht aufgrund der geringeren Bandlücke absorbieren würde. Es ist deshalb das Ziel, AlGaIn mit geringen Versetzungsdichten direkt auf Saphir abzuscheiden. Demzufolge wurde von mehreren Forschungsgruppen versucht, die in reinem GaN zur Defektreduktion erfolgreich eingesetzten Verfahren ELO, FACELO und der Deposition von SiN_x Zwischenschichten auf AlGaIn zu übertragen. Aufgrund der zu GaN variierenden selektiven und lateralen Wachstumseigenschaften von AlGaIn mit zunehmenden Aluminiumkonzentrationen gelang dies allerdings bislang nur mit mäßigem Erfolg. So kamen Kato et al. [36] und Mochizuki et al. [37] zu dem Ergebnis, dass die klassischen ELO und FACELO Methoden zur Defektreduktion in AlGaIn ungeeignet sind. Auch wird in [38] berichtet, dass bereits in $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ Schichten mit $x = 0.1$ in-situ gewachsene SiN_x Zwischenschichten nahezu keine defektreduzierende Wirkung auf die Durchstoßversetzungen haben. Die hohe Empfindlichkeit der auf AlGaIn basierenden Bauelemente auf Versetzungen und die gleichzeitige Problematik, die bei GaN erfolgreich eingesetzten defektreduzierenden Maßnahmen auch in der AlGaIn Epitaxie anzuwenden, stellen die Wissenschaft hinsichtlich des Wachstums von versetzungsarmen AlGaIn Schichten auf Fremdsubstrate momentan vor die größte Herausforderung.

Ziel der vorliegenden Arbeit und Kapitelübersicht

Die vorliegende Arbeit entstand in enger Kooperation mit dem Institut für Optoelektronik der Universität Ulm, das im Rahmen des vom BMBF geförderten „Deep UV-LED“ Projekts die in dieser Arbeit analysierten Proben zur Verfügung stellte. Eine wesentliche Zielsetzung des Projekts bestand in der Defektreduktion von mittels metallorganischer Gasphasenepitaxie (MOVPE) auf Fremdsubstrate abgeschiedenen AlGaIn Strukturen für LEDs mit einer Emissionswellenlänge im tiefen UV-Bereich. Zwar wurde bislang, wie oben erwähnt, keine oder nur eine geringe defektreduzierende Wirkung von SiN_x Zwischenschichten in AlGaIn erzielt. Die Tatsache allerdings, dass es im Rahmen des „Deep UV-LED“ Projekts durch Optimierung der Wachstumsparameter gelungen ist, mittels in-situ abgeschiedener SiN_x Zwischenschichten in $\text{Al}_{0.2}\text{Ga}_{0.8}\text{N}$ durchaus hohe defektreduzierende Effizienzen zu erreichen, hat gezeigt, dass trotz des bereits 10 Jahre zurückliegenden ersten erfolgreichen Einsatzes von SiN_x in reinem GaN noch wenig über die defektreduzierenden Mechanismen und die Wirkungsweise der SiN_x Zwischenschicht bekannt ist. Die vorliegende Arbeit hat es sich deshalb zum Ziel gesetzt, mittels transmissionselektronenmikroskopischer Analysemethoden die defektreduzierende Wirkung von SiN_x Zwischenschichten im Materialsystem AlGaIn im Detail zu untersuchen. Durch die Möglichkeit, bei höchsten Auflösungen Volumeninformationen zu erfassen, erlaubt es die Transmissionselektronenmikroskopie (TEM), Schicht- und Defektstrukturen zu analysieren und Zusammenhänge zum epitaktischen Wachstumsverhalten herzustellen. Die wesentlichen Fragen, die in dieser Arbeit beantwortet werden sollen, lassen sich wie folgt zusammenfassen:

- Wie kann der eigentliche Mechanismus der Defektreduktion mittels einer in-situ abgeschiedenen SiN_x Zwischenschicht in den untersuchten AlGaIn Heterostrukturen beschrieben werden?
- Was ist die Ursache für eine variierende defektreduzierende Effizienz der SiN_x Zwischenschicht, bzw. besteht ein Zusammenhang zwischen der defektreduzierenden Effizienz der Zwischenschicht und deren Nanostrukturierung?
- Wie beeinflusst die SiN_x Deposition das Wachstum der AlGaIn Deckschicht?

Die vorliegende Arbeit gliedert sich wie folgt: Das nachfolgende Kapitel fasst die grundlegenden Eigenschaften der Gruppe III-Nitride und deren Herstellungsverfahren zusammen. Kapitel 3 befasst sich mit der Theorie zur Entstehung von Versetzungen und den Möglichkeiten, diese speziell in den Gruppe III-Nitriden zu reduzieren. Da die auf Saphir gewachsenen AlGaIn Schichten als Quasisubstrate für das Wachstum von LED Heterostrukturen dienen sollen, werden auch die Auswirkungen von Versetzungen auf optoelektronische Bauelemente beschrieben. Kapitel 4 erläutert die Grundlagen der Transmissionselektronenmikroskopie und die Kontrastentstehung im TEM. Darüber hinaus werden die in dieser Arbeit verwendeten Analysemethoden erklärt und die Grundprinzipien der vergleichenden Bildsimulation dargestellt. In Kapitel 5 wird der defektreduzierende Mechanismus der SiN_x Zwischenschicht im Detail untersucht. Die wesentlichen Erkenntnisse hinsichtlich des Propagationsverhaltens der Durchstoßversetzungen an der SiN_x Zwischenschicht wurden hierbei aus experimentellen TEM Untersuchungen aus verschiedenen Projektionsrichtungen in Kombination mit vergleichenden Bildsimulationen an einem entwickelten Versetzungsmodell gewonnen. Kapitel 6 beschäftigt sich mit der Frage variierender defektreduzierender Effizienz der SiN_x Zwischenschicht und der Auswirkung der Zwischenschicht auf das nachfolgende Wachstum der AlGaIn Deckschicht anhand von Untersuchungen an wachstumsunterbrochenen Schichten. Im letzten Kapitel werden zunächst die erzielten Ergebnisse nochmals im Zusammenhang dargestellt und in einem Ausblick weiterführende Experimente zur dreidimensionalen Darstellung von Versetzungen mittels Elektronentomographie diskutiert. Erste Experimente hierzu und die daraus erhaltenen Ergebnisse werden ebenfalls vorgestellt.

2 Materialsystem

Gegenstand der Untersuchungen in der vorliegenden Arbeit waren Halbleiter-Heterostrukturen auf Basis der Gruppe III-Nitride. Im vorliegenden Kapitel werden deshalb die grundlegenden physikalischen Eigenschaften dieses Materialsystems und deren Herstellung näher beschrieben.

2.1 Eigenschaften der Gruppe III-Nitride

Unter den Gruppe III-Nitriden versteht man die Verbindungshalbleiter aus den Metallen Aluminium (Al), Gallium (Ga) und Indium (In) der 3. Hauptgruppe des Periodensystems mit Stickstoff (N). Neben den binären Verbindungen Aluminiumnitrid (AlN), Galliumnitrid (GaN) und Indiumnitrid (InN) können durch Substitution der Gruppe III-Elemente untereinander auch ternäre Verbindungen ($\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$, $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$, $\text{Al}_x\text{In}_{1-x}\text{N}$) und quaternäre Verbindungen ($(\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x})_y\text{In}_{1-y}\text{N}$) gewachsen werden. Abhängig vom Substrat lassen sich die Gruppe III-Nitride grundsätzlich in zwei verschiedenen kristallinen Strukturen abscheiden. Auf kubischen Substraten ist das Wachstum der kubischen Zinkblendestruktur (β -Phase) möglich, welche allerdings metastabil ist. Diese lässt sich beschreiben durch zwei ineinander verschobene kubisch flächenzentrierte (fcc, face centered cubic) Gitter mit den Basispunkten bei $(000)a$ für die Metallatome und $(\frac{1}{4} \frac{1}{4} \frac{1}{4})a$ für Stickstoff. Die thermodynamisch stabilste Modifikation stellt die hexagonale Wurtzitstruktur (α -Phase) dar, deren Kristallgitter durch zwei um $\frac{3}{8}c$ entlang der c-Achse verschobene hexagonal dicht gepackte (hcp, hexagonal closed packed) Gitter beschrieben werden kann. Zinkblende- und Wurtzitstruktur unterscheiden sich aus kristallographischer Sicht nur durch die Stapelfolge der dicht gepackten Atomlagen. So weist die Zinkblendestruktur eine 3-fache Stapelfolge auf (AaBbCc AaBbCc...), sodass man auch von 3C Al(Ga,In)N spricht. Hingegen bildet die Wurtzitstruktur eine 2-fache Stapelfolge (AaBb AaBb...), was zur Bezeichnung 2H Al(Ga,In)N führt. Aa, Bb und Cc beschreiben dabei die zweiatomige Basis, welche aus einem Metallatom und einem Stickstoffatom besteht. Im Folgenden werden nur die Eigenschaften der Gruppe III-Nitride in der Wurtzitstruktur beschrieben, da die Zinkblendestruktur im Rahmen dieser Arbeit nicht von Bedeutung war. Abbildung 2.1 zeigt die Atompositionen der Metall- und Stickstoffatome und deren Bindungen in der Einheitszelle der hexagonalen

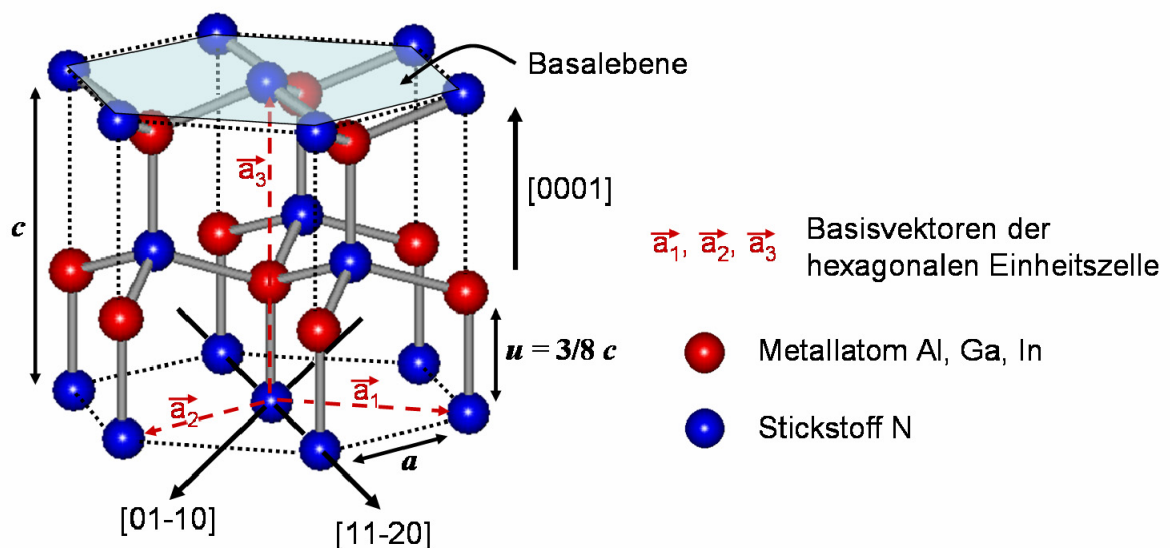


Abb. 2.1: Hexagonale Wurtzitstruktur der Gruppe III-Nitride mit Angabe der wichtigsten Gitterparameter und kristallinen Richtungen.

	Gitterkonstante [$\text{\AA}$]		therm. Ausdehnungskoeff. [10^{-6}K^{-1}]		therm. Leitfähigkeit [$\text{Wcm}^{-1}\text{K}^{-1}$]
	a	c	α_a	α_c	
AlN	3.112	4.982	3.0	2.2	3.20
GaN	3.189	5.185	4.2	3.8	1.70
InN	3.545	5.703	3.8	2.9	0.45

Tab. 2.1: Übersicht über die Gitterkonstanten bei $T = 300\text{K}$, die thermischen Ausdehnungskoeffizienten bei $T = 300\text{K}$ und die thermischen Leitfähigkeiten der binären Verbindungshalbleiter AlN, GaN und InN.

Wurtzitstruktur. Des Weiteren werden die Gitterparameter und kristallographischen Richtungen definiert. Tabelle 2.1 listet einige wichtige Materialgrößen der binären Verbindungshalbleiter AlN, GaN und InN in der Wurtzitstruktur auf [1, 39-42].

Für optoelektronische Anwendungen wie Laserdioden und LEDs sind die Gruppe III-Nitride aufgrund ihrer großen direkten Bandlücke interessant. Mit einer Bandlücke bei 300K von 6.1eV für AlN, 3.4eV für GaN und 0.7eV für InN lässt sich durch Mischen der Metallatome zu ternären Verbindungen das komplette Spektrum vom tiefen UV über den sichtbaren Bereich bis zum tiefen IR für optoelektronische Bauelemente realisieren. Abbildung 2.2 zeigt in Anlehnung an [1] die Bandlückenenergien E_g und deren Korrelation zum Emissionsspektrum für die binären und ternären Verbindungshalbleiter der Gruppe III-Nitride in Abhängigkeit vom a-Parameter der hexagonalen Einheitszelle, welcher vom Konzentrationsverhältnis der Metallatome abhängig ist. Die Abhängigkeit der Bandlückenenergie E_g einer ternären Verbindung $\text{A}_x\text{B}_{1-x}\text{C}$ von der Konzentration x und den Bandlücken der binären Verbindung AC und BC ist durch die folgende empirische Formel gegeben [43].

$$E_g(x) = x \cdot E_g(\text{AC}) + (1-x) \cdot E_g(\text{BC}) - b \cdot x \cdot (1-x) \quad (2.1)$$

Der nicht-lineare Term enthält noch den sogenannten bowing-Parameter b , welcher für AlGa₃N, InGa₃N und AlIn₃N jeweils zu 0.7eV, 1.4eV und 2.5eV angegeben wird [42, 44, 45].

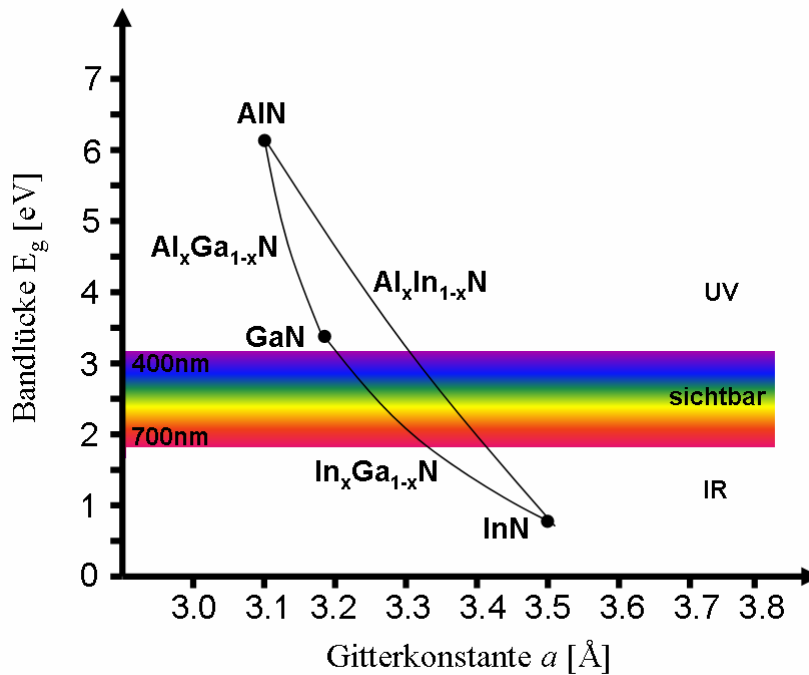


Abb. 2.2: Abhängigkeit der Bandlückenenergien E_g vom a-Parameter der hexagonalen Einheitszelle der ternären Verbindungen AlGa₃N, InGa₃N und AlIn₃N. Ebenfalls angegeben ist das mit der Bandlücke korrelierte Emissionsspektrum.

	Bandlücke E_g [eV]	α [meVK ⁻¹]	β [K]		b [eV]
AlN	6.1	1.799	1462	AlGaN	0.7
GaN	3.4	0.909	830	InGaN	1.4
InN	0.7	0.245	624	AlInN	2.5

Tab. 2.2: Zusammenfassung der Bandlückenenergien bei $T=300\text{K}$ und der Varshni-Parameter für die binären Gruppe III-Nitride sowie der bowing-Parameter der ternären Verbindungen.

Neben dem Konzentrationsverhältnis x in der ternären Verbindung hängt die Bandlücke auch von der Temperatur ab. Dieser Zusammenhang wird empirisch in [46] folgendermaßen angegeben:

$$E_g(T) = E_g(T = 0\text{K}) - \frac{\alpha \cdot T^2}{\beta + T} \quad (2.2)$$

Die beiden Konstanten α und β sind hierbei die sogenannten Varshni-Parameter. In Tabelle 2.2 sind die Bandlückenenergien E_g bei Raumtemperatur und die Varshni-Parameter für die binären Gruppe III-Nitride wie auch die bowing-Parameter für AlGaN, InGaN und AlInN zusammengefasst [42, 44, 45, 47-51].

Wie bereits aus der Einheitszelle in Abbildung 2.1 zu erkennen ist, besitzt die Wurtzitstruktur keine Inversionssymmetrie. Das Fehlen eines Inversionszentrums führt zur Definition zweier unterschiedlicher Polaritäten in Richtung der polaren c -Achse. Abhängig von der oben liegenden Atomsorte der Basisatomdoppellage kann Al(Ga,In)N Al/Ga/In-polar oder N-polar sein. Man spricht dann auch von „Al/Ga/In-face“ bzw. von „N-face“. Nach Konvention werden die beiden Polaritäten auch als $[0001]$ und $[000\bar{1}]$ -Polarität bezeichnet [1, 52]. Dabei ist der Begriff der Polarität, welcher die Reihenfolge der Atomsorten in der Basisatomdoppellage in Richtung der c -Achse angibt, nicht zu verwechseln mit der Terminierung einer epitaktisch gewachsenen Al(Ga,In)N Schicht, mit der die oberste Atomsorte einer Kristalloberfläche gemeint ist. So kann Ga-polares GaN stickstoffterminiert und N-polares GaN auch galliumterminiert sein. Für das Wachstum der Gruppe III-Nitride wie auch in dieser Arbeit mittels metallorganischer Gasphasenepitaxie (MOVPE, metal organic vapor phase epitaxy) ist allerdings bekannt, dass die Oberfläche der Schicht nach dem Wachstum grundsätzlich durch die Metallatome terminiert ist, da sich bei den hohen

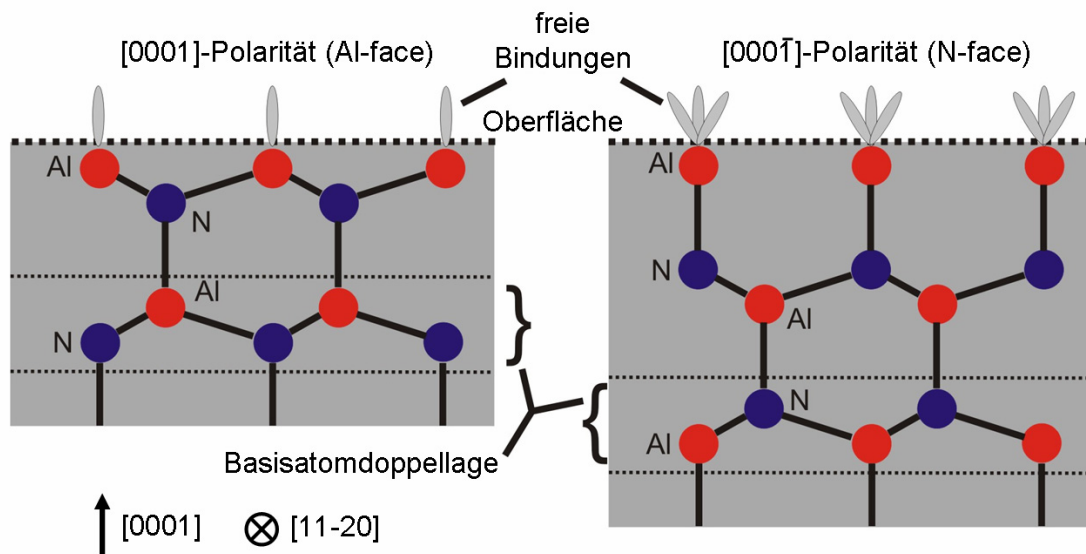


Abb. 2.3: Anordnung der Metall- und Stickstoffatome für die beiden möglichen Polaritäten in der Wurtzitstruktur, dargestellt für AlN in der $[11-20]$ -Projektion. Liegt Aluminium in der Basisatomdoppellage oben, so liegt das Material Al-polar vor, andernfalls N-polar.

Substrattemperaturen der atomare Stickstoff an der Oberfläche zu N_2 Molekülen verbindet und desorbiert [53]. Darüber hinaus wird berichtet, dass die Polarität der Gruppe III-Nitride unter anderem vom Herstellungsprozess abhängt. So ist mittels MOVPE hergestelltes GaN auf (0001) Saphir Substraten für gewöhnlich [0001]-polar, während mit Molekularstrahlepitaxie (MBE, molecular beam epitaxy) gewachsenes GaN $[000\bar{1}]$ -polar vorliegt [54-56]. Neben dem epitaktischen Wachstumsverhalten kann die Polarität auch Oberflächeneigenschaften wie Ätzverhalten und Oberflächenrauigkeit entscheidend beeinflussen. Die Anordnung der Atome für die beiden in der Wurtzitstruktur möglichen Polaritäten ist in Abbildung 2.3 am Beispiel von AlN veranschaulicht.

Eine weitere Eigenschaft der Gruppe III-Nitride stellt die Bildung spontaner und piezoelektrischer Felder dar [1, 57]. Die ideale Wurtzitstruktur weist aufgrund der hexagonal dicht gepackten Atomlagen ein Verhältnis der Gitterkonstanten c/a von $(8/3)^{1/2} = 1.633$ auf. Aufgrund der hohen Elektronegativität des Stickstoffs von 3.07 [58] sind die Bindungselektronen der Metallatome stark zum Stickstoff hingezogen, wodurch zur kovalenten Metall-Stickstoffbindung ein hoher ionischer Bindungsanteil hinzukommt. Dadurch sind in der tetraedrischen Koordination der Wurtzitstruktur die Bindungslängen und -winkel nicht mehr identisch. Das c/a -Verhältnis weicht in den Gruppe III-Nitriden von dem in der idealen Wurtzitstruktur um bis zu 2% für AlN ab [59]. Die atomaren Dipolmomente, welche durch die hohe Elektronegativität des Stickstoffs und der damit verbundenen Trennung der Ladungsschwerpunkte in der Metall-Stickstoffbindung entstehen, werden nicht mehr kompensiert. Dies führt zur Bildung spontaner Polarisationsfelder im völlig unverspannten „bulk“ $Al(Ga,In)N$, die entsprechend der Polarität des Materials parallel oder anti-parallel entlang der c -Achse ausgerichtet sind [1]. Die spontanen Polarisationsfelder können noch zusätzlich von piezoelektrischen Feldern überlagert werden, welche durch Verspannungen an den Grenzflächen einer $Al(Ga,In)N$ Heterostruktur aufgrund der unterschiedlichen Gitterkonstanten von AlN, GaN und InN entstehen. Dabei hängt die Orientierung der piezoelektrischen Felder davon ab, ob das Material kompressiv oder tensil verspannt vorliegt. So kann das spontane Polarisationsfeld durch das piezoelektrische Feld verstärkt oder abgeschwächt werden. Problematisch können hohe Polarisationsfelder für optoelektronische Bauelemente werden, wenn die $Al(Ga,In)N$ Heterostruktur polar in Richtung der c -Achse epitaktisch aufgewachsen wird. Im Bereich der aktiven Zone des p - n -Übergangs einer LED oder Laserdiode kann es durch die senkrecht zur Substratoberfläche gerichteten elektrischen Felder zu einer zusätzlichen Bandverbiegung kommen, was als „quantum confined Stark effect“ (QCSE) bezeichnet wird [60]. Die Verbiegung von Valenz- und Leitungsband im Bereich einer Quantentrogstruktur führt zur Verkleinerung der effektiven Bandlücke und damit zu einer Rotverschiebung im Emissionsspektrum. Des Weiteren wird die Rekombinationswahrscheinlichkeit von Elektronen und Löchern reduziert, da die quantenmechanischen Wellenfunktionen für die Aufenthaltswahrscheinlichkeiten der Elektronen und Löcher im Quantentrog einen geringeren räumlichen Überlapp haben. Um diese Effekte zu vermeiden, entstanden in den letzten Jahren auch intensive Bemühungen, von dem relativ gut kontrollierbaren und deshalb auch industriell durchgeführten polaren Wachstum der Gruppe III-Nitride auf Saphir, insbesondere für $InGaN$ Heterostrukturen, auf nicht- oder semipolare Wachstumsrichtungen überzugehen [61-65].

2.2 Wachstum der Gruppe III-Nitride

Im Rahmen dieser Arbeit wurden im Bereich der Gruppe III-Nitride im Speziellen $AlGaIn$ Schichten untersucht, welche auf „ c -plane“ / (0001)-Saphir polar – also in [0001]-Richtung – abgeschieden wurden. Deshalb soll in diesem Kapitel das Wachstum und die Herstellung der Gruppe III-Nitride näher erläutert werden.

Für die Strukturierung von Halbleiterschichtsystemen zur Herstellung elektronischer und optoelektronischer Bauelemente muss im Allgemeinen das Ausgangsmaterial auf geeigneten Unterlagen – den Substraten – aufgewachsen werden. Es liegt dabei nahe, Substrate zu verwenden, deren chemische und kristallographische Eigenschaften mit denen des zu wachsenden Materials möglichst gut übereinstimmen. Idealerweise wären also Substratmaterial und Schicht identisch. So werden z.B. sämtliche elektronischen Bauelemente auf Siliziumbasis wie Dioden und Transistoren auf Siliziumsubstrate gewachsen. Große Siliziumeinkristalle mit niedrigen Defektdichten können zur Herstellung von Siliziumwafern in großen Mengen und preisgünstig z.B. mittels des Czochralski-Verfahrens direkt aus der Schmelze gezogen werden [66]. Derartige Schmelzverfahren sind zur Herstellung von Gruppe III-Nitrideinkristallen nicht oder nur unter extremen Bedingungen möglich. Da sich der Stickstoff bei Schmelztemperatur und Atmosphärendruck bereits in der flüchtigen Gasphase befindet, wäre ein extrem hoher Druck notwendig, um $\text{Al}(\text{Ga},\text{In})\text{N}$ am Zerfall zu hindern. Es gibt zwar Ansätze, GaN-Einkristalle aus der flüssigen Phase unter extrem hohen Drücken von mehreren kbar herzustellen, allerdings sind die gewonnenen Kristallvolumina sehr klein [67-69]. Ein anderes in jüngster Zeit verfolgtes Verfahren zur Züchtung von GaN-Einkristallen stellt der sogenannte ammonothermale Wachstumsprozess dar, bei dem GaN in einem Autoklav bei relativ niedrigen Temperaturen von ca. 500°C und Drücken im unteren kbar-Bereich aus einer überkritischen Ammoniaklösung gewonnen wird, in welcher GaN als Ausgangsmaterial zuvor gelöst wurde. In einem zweiten Bereich mit unterschiedlicher Temperatur befinden sich GaN-Keime. Über Konvektion im Temperaturgradienten wird die Ammoniaklösung zu den Keimen transportiert und kristallisiert dort [70, 71]. Mit diesem Verfahren hergestellte qualitativ hochwertige 2-Zoll GaN-Wafer mit Defektdichten im Bereich von 10^5cm^{-2} sind bereits kommerziell erhältlich. Ein umfassender industrieller Einsatz dieser Substrate ist allerdings aufgrund der geringen Verfügbarkeit und dem sehr hohen Preis von mehreren 1000 US\$ für einen 2-Zoll Wafer noch nicht möglich. Hinzu kommt, dass speziell beim Wachstum von AlGaIn für LED- und Laserstrukturen im UV-Bereich reines GaN als Substrat ungeeignet ist, da GaN aufgrund der niedrigeren Bandlücke das UV-Licht absorbieren würde. Beim Wachstum von Halbleiterstrukturen auf Basis der Gruppe III-Nitride verwendet man deshalb nach wie vor Fremdsubstrate.

Die grundlegenden Anforderungen an die Substrate für das Wachstum der Gruppe III-Nitride liegen in einer geeigneten kristallinen Symmetrie mit ähnlichen Gitterparametern und vergleichbaren thermischen Eigenschaften. Bei der Heteroepitaxie werden zwei Schichten mit unterschiedlichen Gitterkonstanten aufeinander gewachsen. Der Unterschied in den Gitterkonstanten wird durch die Gitterfehlانpassung f_{Gitter} folgendermaßen angegeben:

$$f_{\text{Gitter}} = \frac{a_{\text{Substrat}} - a_{\text{Schicht}}}{a_{\text{Schicht}}} \quad (2.3)$$

Dabei bezeichnet a_{Substrat} und a_{Schicht} jeweils die Gitterkonstante des Substrats und der zu wachsenden Schicht. Ist $f_{\text{Gitter}} > 0$, so wird auf die Schicht ein biaxialer Zug ausgeübt und die Schicht wächst tensil verspannt auf. Bei einem negativen Wert für f_{Gitter} wirkt auf die Schicht ein biaxialer Druck und die Epitaxieschicht ist kompressiv verspannt. Analog zur Definition der Gitterfehlانpassung ist der relative Unterschied $f_{\text{therm.}}$ in den thermischen Ausdehnungskoeffizienten gegeben zu:

$$f_{\text{therm.}} = \frac{\alpha_{\text{Substrat}} - \alpha_{\text{Schicht}}}{\alpha_{\text{Substrat}}} \quad (2.4)$$

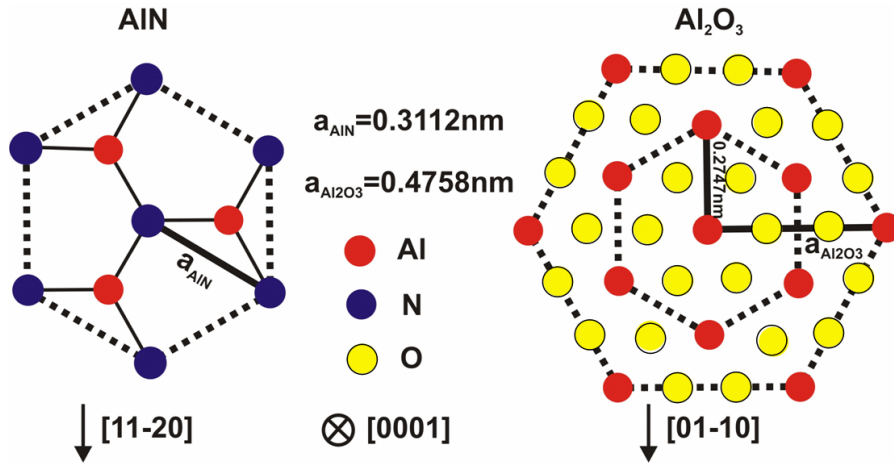


Abb. 2.4: [0001]-Projektionen der hexagonalen Einheitszellen von AlN und Saphir. Für das Wachstum der Gruppe III-Nitride ist die kleinere Zelle im Saphir mit einem Gitterparameter von 2.747 Å relevant.

Die Parameter α_{Substrat} und α_{Schicht} sind hierbei die thermischen Ausdehnungskoeffizienten des Substrats und der Epitaxieschicht.

Für das Wachstum der Gruppe III-Nitride in der stabilen hexagonalen Phase haben sich vor allem Saphir (Al_2O_3) und hexagonales Siliziumkarbid (SiC) durchgesetzt. Da in der vorliegenden Arbeit polares AlGaN ausschließlich auf (0001)/c-plane orientiertes Saphir gewachsen wurde, beschränken sich die folgenden Ausführungen bezüglich der Herstellung der Gruppe III-Nitride auf das Wachstum auf Saphirsubstrate.

Kristallographisch weist Saphir eine rhomboedrische Symmetrie auf. Allerdings lässt sich Saphir durch Definition einer größeren Einheitszelle als hexagonale Kristallstruktur beschreiben [72]. Abbildung 2.4 zeigt die beiden Einheitszellen von AlN und Saphir in der [0001]-Projektion, der Richtung des epitaktischen Wachstums. Die hexagonale Einheitszelle von Saphir enthält zwei hexagonale Untergitter, die um 30° entlang der c-Achse gegeneinander verdreht sind. Das größere Untergitter gibt den a -Parameter der hexagonalen Einheitszelle ($a_{\text{Al}_2\text{O}_3} = 4.758 \text{ Å}$) und die Kristallrichtungen vor. Für das epitaktische Wachstum der Gruppe III-Nitride ist allerdings aufgrund der deutlich geringeren Gitterfehlانpassung das kleinere Untergitter mit einer Gitterkonstanten von 2.747 Å von Bedeutung. Dies führt dazu, dass beim epitaktischen Wachstum der Gruppe III-Nitride auf (0001)-Saphir gemäß der Definition der kristallographischen Richtungen die Einheitszelle von Al(Ga,In)N um 30° verdreht gegenüber der von Saphir aufwächst. Betrachtet man also im Querschnitt des Schichtsystems Al(Ga,In)N aus der [11-20]-Richtung, so liegt Saphir in der [01-10]-Projektion vor. In Tabelle 2.3 sind die wichtigsten Parameter für das Substratmaterial Saphir im Zusammenhang zu den Gruppe III-Nitriden zusammengefasst [1, 72].

Die wichtigsten Verfahren zu Abscheidung kristalliner Schichten auf Substraten stellen die Molekularstrahlepitaxie (MBE, molecular beam epitaxy), die Hydridgasphasenepitaxie (HVPE, hydrid vapor phase epitaxy) und die metallorganische Gasphasenepitaxie (MOVPE,

Gitterkonstante Al_2O_3 [Å]				f_{Gitter} [%]	therm. Ausdehnungskoeff. Al_2O_3 [10^{-6} K^{-1}]			$f_{\text{therm.}}$ [%]
a	c	Untergitter			α_a	α_c		
4.758	12.991	2.747	AlN	-11.7	7.3	8.5	AlN	58.9
			GaN	-13.9			GaN	42.5
			InN	-22.5			InN	46.7

Tab. 2.3: Zusammenfassung der wichtigsten Materialparameter für Saphir bei Raumtemperatur. Die Gitterfehlانpassungen und relativen Unterschiede im thermischen Ausdehnungskoeffizient beziehen sich auf die relevanten lateralen Materialparameter für das Wachstum von (0001) Al(Ga,In)N auf (0001) Saphir.

metal organic vapor phase epitaxy) dar. In der Industrie wird vor allem die MOVPE eingesetzt, da sie bei akzeptablen Wachstumsraten von 3 bis $4\mu\text{m h}^{-1}$ [3, 73] qualitativ hochwertige Schichten liefert. Alle in dieser Arbeit auf Saphir gewachsenen AlGaIn Schichten wurden mittels MOVPE hergestellt, weshalb dieses Wachstumsverfahren im Folgenden genauer erläutert werden soll.

Im Gegensatz zur MBE findet das Kristallwachstum nicht im UHV, sondern aus der Gasphase bei moderaten Drücken im Bereich von 10 bis 1000mbar statt. Da die Metalle Aluminium, Gallium und Indium für die Verbindungshalbleiter Al(Ga,In)N bei niedrigen Temperaturen nicht in elementarer Form in die Gasphase eingeleitet werden können, liegen die benötigten Elemente als metallorganische Verbindungen in der Gasphase vor. Die sogenannten Präkursoren Trimethylgallium (TMG, $(\text{CH}_3)_3\text{Ga}$), Trimethylaluminium (TMA, $(\text{CH}_3)_3\text{Al}$) und Trimethylindium (TMI, $(\text{CH}_3)_3\text{In}$) werden in abgeschlossenen Behältern aufbewahrt und bilden darin einen gesättigten Dampf über der Flüssigkeit, welcher mittels eines durchströmenden Trägergases (H_2 oder N_2) in den Reaktor transportiert wird. Die Abscheidung der Gruppe III-Elemente wird durch thermisches Aufbrechen der Verbindungen in den Metallorganylen über dem geheizten Substrat erreicht. Der Stickstoff wird normalerweise in Form von Ammoniak (NH_3) im gasförmigen Zustand direkt in den Reaktor geleitet. Die hohe thermische Stabilität von Ammoniak erfordert hohe Substrattemperaturen, um eine ausreichende Menge an Stickstoff während des Wachstums zur Verfügung zu stellen. Die Substrattemperaturen liegen typischerweise im Bereich zwischen 1000 und 1300°C , was eine hohe thermische Stabilität der Substrate erfordert, die vom bereits beschriebenen Material Saphir erfüllt wird. Die Schicht wächst im Reaktor aufgrund der Gitterfehlانpassung zwischen Substrat und Schicht zunächst verspannt auf. Oberhalb einer bestimmten Schichtdicke, der sogenannten kritischen Dicke, baut sich die Verspannungsenergie in Form von plastischen Deformationen ab. Den bekanntesten Mechanismus zur plastischen Relaxation stellt dabei die Bildung von Gitterfehlانpassungsversetzungen (MDs, misfit dislocations) dar, wodurch sich in der Regel der Verspannungsgrad während des weiteren Wachstumsprozesses auf ein Minimum reduziert [74, 75]. Allerdings können durch den Unterschied im thermischen Ausdehnungskoeffizienten zwischen Substrat und Schicht nach dem Abkühlen von Wachstums- auf Raumtemperatur zusätzliche Verspannungen in das Material induziert werden. Entsprechend der Unterschiede im thermischen Ausdehnungskoeffizienten ist AlGaIn auf Saphir nach dem Abkühlen üblicherweise kompressiv verspannt.

3 Versetzungen

Aufgrund der bereits in Kapitel 2.2 beschriebenen Probleme bei der Herstellung von freistehenden Al(Ga)N Einkristall-Wafern werden die Gruppe III-Nitride industriell weiterhin auf Fremdsubstrate wie Saphir mittels HVPE und MOVPE abgeschieden. Das Ziel dabei ist die Bereitstellung von qualitativ hochwertigen Al(Ga)N Schichten auf Saphir als Quasi-Substrate für das Wachstum von Gruppe III-Nitrid basierenden LED Heterostrukturen. Eine der großen Herausforderungen stellt hier nach wie vor die Verringerung der hohen Versetzungsdichte dar, welche sowohl verspannungsbedingt durch die Gitterfehlانpassung zwischen Al(Ga)N und Substrat als auch wachstumsbedingt durch die Nukleation unterschiedlich orientierter Al(Ga)N Facetten entsteht. Im Folgenden sollen die Grundlagen zu Versetzungen erläutert werden, die zum Verständnis der in dieser Arbeit durchgeführten Analysen zur Defektreduzierung notwendig sind. Dabei wird auch auf die Ursachen der Bildung von Versetzungen und die Möglichkeiten defektreduzierender Maßnahmen beim Wachstum von Al(Ga)N auf Saphir eingegangen. In diesem Zusammenhang sollen auch die von anderen Gruppen bislang erzielten Ergebnisse hinsichtlich der Defektreduktion speziell in reinen GaN Schichten beleuchtet werden, um gleichermaßen die Probleme aufzuzeigen, die sich für die defektreduzierenden Maßnahmen in AlGaN mit hohem Aluminiumanteil ergeben.

3.1 Grundlagen

Als Versetzung wird ein linienförmig gestörter Bereich in einem kristallinen Festkörper bezeichnet, welcher durch eine Versetzungslinie mit Linienvektor $\mathbf{u}$ in Versetzungsrichtung und durch den Burgers-Vektor $\mathbf{b}$ beschrieben wird. Der Burgers-Vektor ergibt sich aus dem sogenannten Burgers-Umlauf, welcher die Versetzungslinie durch das Abzählen der Atompositionen im Kristall umschließt, dargestellt in Abbildung 3.1. In einem versetzungsfreien Kristallgitter ist der Burgers-Umlauf stets geschlossen, während sich beim Umlauf um eine Versetzungslinie ein offener Kreis ergibt. Derjenige Vektor, der zur Schließung des Umlaufs notwendig ist, wird als Burgers-Vektor $\mathbf{b}$ bezeichnet. Zusammen mit der Versetzungslinie $\mathbf{u}$ ist damit der Typ der Versetzung eindeutig definiert. Wie auch in dieser Arbeit durchgeführt, kann der Burgers-Vektor einer Versetzung direkt aus einer hochauflösenden transmissionselektronenmikroskopischen Aufnahme mittels eines Burgers-Umlaufs um den Versetzungskern entlang der Atompositionen ermittelt werden. Ist der

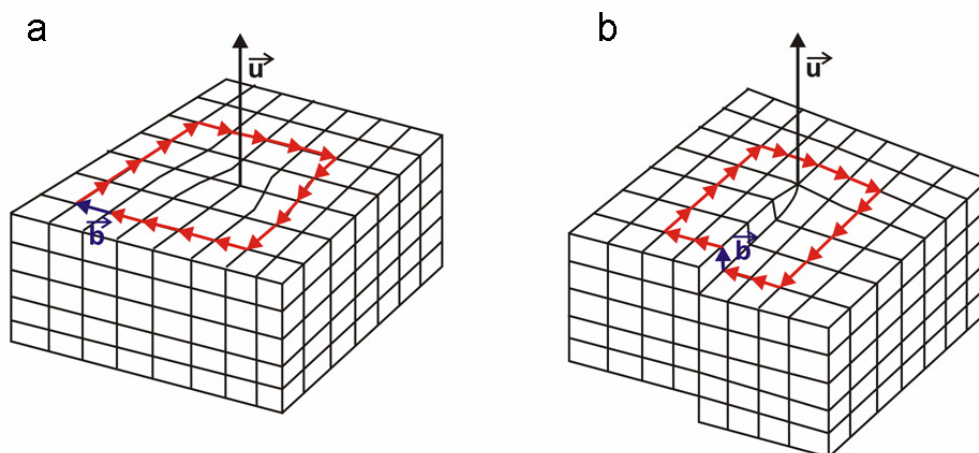


Abb. 3.1: Schematische Darstellung zur Konstruktion einer reinen Stufenversetzung (a) und einer reinen Schraubenversetzung (b). Die Orientierung des sich aus dem ebenfalls eingezeichneten Burgers-Umlauf ergebenden Burgers-Vektors $\mathbf{b}$ zur Versetzungslinie $\mathbf{u}$ definiert den Typ der Versetzung.

Burgers-Vektor $\mathbf{b}$ senkrecht zur Versetzungslinie orientiert, so handelt es sich um eine reine Stufenversetzung (Abbildung 3.1a). Versetzungen mit einem Burgers-Vektor $\mathbf{b}$ parallel zur Versetzungslinie $\mathbf{u}$ werden als reine Schraubenversetzungen bezeichnet (Abbildung 3.1b). Wenn der Burgers-Vektor eine parallele und senkrechte Komponente zum Linienvektor $\mathbf{u}$ hat, liegt eine gemischte Versetzung vor, die sowohl eine Stufen- als auch eine Schraubenkomponente hat. Entspricht der Burgers-Vektor einer Linearkombination aus den Basisvektoren des direkten Gitters, so wird die zugehörige Versetzung als perfekte Versetzung bezeichnet. Ist hingegen der Burgers-Vektor kein Translationsvektor des direkten Gitters, so spricht man von einer Partialversetzung. Diese führt immer zu einer Änderung in der Stapelfolge, wodurch ein planarer Defekt entsteht, der als Stapelfehler bezeichnet wird.

Wie in [76] ausgeführt, können innerhalb eines Kristalls Versetzungen weder beginnen noch enden. Deshalb bilden sie innerhalb des Kristalls entweder geschlossene Schleifen oder beginnen bzw. enden an der Kristalloberfläche, an Wachstumsgrenzflächen oder an Korngrenzen. Versetzungen stellen die einzige Möglichkeit dar, einen kristallinen Festkörper plastisch zu deformieren. Die Plastische Deformation erfolgt beim Einwirken einer äußeren Kraft durch die Bildung und Bewegung vorhandener Versetzungen im Festkörper. Bei der Bewegung einer Versetzung im Kristall beispielsweise aufgrund eines induzierten Spannungsfeldes unterscheidet man grundsätzlich zwischen dem Gleiten und dem Klettern einer Versetzung. Beim Gleitprozess bewegt sich die Versetzung entlang der sogenannten Gleitebene, welche durch den Linienvektor $\mathbf{u}$ und dem Burgers-Vektor $\mathbf{b}$ aufgespannt wird. Die Gleitebene definiert dabei die Fläche, entlang derer ein plastisches Abgleiten des Kristalls möglich ist. Da bei einer reinen Schraubenversetzung $\mathbf{b}$ und $\mathbf{u}$ parallel zueinander sind, kann jede Ebene im Kristall, welche die Versetzungslinie enthält, Gleitebene sein. Bei einer Stufenversetzung hingegen erfolgt ein Klettern in einer Ebene, welche die Versetzungslinie enthält aber senkrecht zum Burgers-Vektor steht. Somit wird durch den Kletterprozess die Bewegung einer Stufenversetzung auch senkrecht zur Gleitebene ermöglicht.

Die Ursache für die Entstehung von Versetzungen beim epitaktischen Schichtwachstum auf Fremdsubstrate kann sowohl wachstums- als auch verspannungsbedingt sein, wie im nachfolgenden Kapitel explizit für das Wachstum der Gruppe III-Nitride auf Saphir noch genauer ausgeführt wird. Verspannungsinduzierte Versetzungen entstehen beim Wachstum auf Fremdsubstrate durch die Gitterfehlانpassung zwischen Substrat und Schicht, weswegen diese Versetzungen auch als Gitterfehlانpassungsversetzungen (MDs, misfit dislocations) bezeichnet werden (siehe Kapitel 2.2). Während des epitaktischen Wachstums auf das Fremdsubstrat wird der Schicht die für sie nicht natürliche Gitterkonstante des Substrats aufgezwungen. Dadurch wächst die Schicht zunächst verspannt auf und mit zunehmender Schichtdicke nimmt die durch die Verspannung gespeicherte potentielle Energie des Kristalls zu. Ab einer bestimmten Schichtdicke, der sogenannten kritischen Schichtdicke, ist die potentielle Energie im Kristall so groß, dass sie durch die Bildung von Versetzungen abgebaut wird. Energetisch ist die Bildung einer Gitterfehlانpassungsversetzung möglich, wenn die durch die Bildung der Versetzung abgebaute Verspannungsenergie größer ist, als die zur Bildung der Versetzung notwendige Energie. Die Bildungsenergie pro Längeneinheit einer Versetzung E_{disloc} ist in [77] angegeben zu:

$$E_{\text{disloc}} = \frac{G|\bar{\mathbf{b}}|^2}{4\pi} \left[\frac{\sin^2 \theta}{(1-\nu)} + \cos^2 \theta \right] \left(\ln \frac{h}{r_0} - 1 \right) \quad (3.1)$$

Dabei bezeichnet G den Schermodul, ν die Poissonzahl, h die Schichtdicke und r_0 den Radius des Versetzungskerns, also die Ausdehnung der eigentlichen plastischen Deformation. Zu beachten ist, dass die in Gleichung (3.1) angegebene Versetzungsenergie nur die Energie aufgrund der elastischen Deformation des Kristalls berücksichtigt, welche allerdings den

größten Anteil darstellt. Kennzeichnend für die elastische Versetzungsenergie ist die Proportionalität zum Betragsquadrat des Burgers-Vektors $\mathbf{b}$. Mit dem Winkel θ zwischen Versetzungslinie und Burgers-Vektor wird über $\sin(\theta)$ die Stufenkomponente und über $\cos(\theta)$ die Schraubenkomponente der Versetzung berücksichtigt. Ebenfalls in [77] angegeben ist die mit einer Versetzung der Länge L abgebaute Verspannungsenergie δW :

$$\delta W = L \frac{2G(1+\nu)}{1-\nu} |f_{\text{Gitter}}| \cdot h \cdot |\bar{\mathbf{b}}| \sin \theta \cos \varphi \quad (3.2)$$

Dabei bezeichnet f_{Gitter} die bereits in Kapitel 2.2 eingeführte Gitterfehlانpassung zwischen Substrat und Schicht. θ ist wiederum der Winkel zwischen $\mathbf{u}$ und $\mathbf{b}$. Mit φ wird der Winkel zwischen Gleitebene und Wachstumsgrenzfläche angegeben. Die kritische Schichtdicke h_c , ab welcher ein bestimmter Versetzungstyp entstehen kann, ist dann erreicht, wenn die durch die Bildung der Versetzung abgebaute Verspannungsenergie δW gerade so groß ist wie die zur Bildung der Versetzung notwendige Energie E_{disloc} . Damit würde sich h_c durch Gleichsetzen von Gleichung (3.1) und (3.2) berechnen lassen. Aufgrund der großen Gitterfehlانpassung zwischen Saphir und Al(Ga)N (siehe Kapitel 2.2), sind die kritischen Dicken sehr klein und werden in [78] unterhalb weniger Nanometer angegeben. Für die verspannungsinduzierten Gitterfehlانpassungsversetzungen lassen sich aus Gleichung (3.2) grundlegende Eigenschaften ablesen, die zur Erklärung des Ursprungs von Versetzungen an epitaktischen Grenzflächen wichtig sind. Mit $|\mathbf{b}|\sin(\theta)$ geht nur die Stufenkomponente in Gleichung (3.2) ein. Reine Schraubenversetzungen bauen also keine Verspannung ab. Dasselbe gilt allgemein für Versetzungen, die senkrecht zur Wachstumsgrenzfläche propagieren (die sogenannten Durchstoßversetzungen (TDs, threading dislocations)), da deren Gleitebenen immer senkrecht zur Grenzfläche stehen und somit $\cos(\varphi)$ null ist. Die Versetzungslinie einer Gitterfehlانpassungsversetzung verläuft somit typischerweise parallel zur Wachstumsgrenzfläche und hat eine Stufenkomponente. Da nach Gleichung (3.1) die Bildungsenergie einer Versetzung proportional zu $|\mathbf{b}|^2$ ist, werden bei Erreichen der kritischen Dicke Gitterfehlانpassungsversetzungen mit den kürzesten Burgers-Vektoren zuerst gebildet. Dies bedeutet, dass Gitterfehlانpassungsversetzungen typischerweise Partialversetzungen sind. Die Bildung von parallel zur Wachstumsgrenzfläche verlaufenden Gitterfehlانpassungsversetzungen zum Abbau der Verspannung in auf Saphir gewachsenem AlN wurde im TEM durch direkte Abbildung der Gitterfehlانpassungsversetzungen knapp oberhalb des Substrates in der Hochauflösung in [74, 75, 79] bestätigt.

3.2 Ursachen für die Bildung von Versetzungen in Al(Ga)N

Aufgrund der bereits in Kapitel 2.2 beschriebenen Problematik der Herstellung geeigneter nitrid-basierender Substrate zur Abscheidung von Al(Ga)N Heterostrukturen muss auf Fremdsubstrate wie Saphir ausgewichen werden. Bis in die 1980er Jahre hinein war es allerdings nicht möglich, qualitativ hochwertige Al(Ga)N Schichten mittels Gasphasenepitaxie auf Fremdsubstrate abzuscheiden, weswegen optoelektronische Bauelemente auf Basis der Gruppe III-Nitride nicht realisiert werden konnten. Der Grund liegt in der generell hohen Mobilität von Al(Ga)N auf dem Saphirsubstrat zu Beginn des Wachstums einer Al(Ga)N Hochtemperaturschicht direkt auf Saphir. Durch den geringen Haftungskoeffizienten nukleiert Al(Ga)N bei hohen Substrattemperaturen nicht oder nur sehr schlecht auf Saphir. Hohe Substrattemperaturen von über 1000°C im MOVPE Reaktor sind allerdings notwendig, um überhaupt ein qualitativ hochwertiges Schichtwachstum zu ermöglichen. Den sich dennoch bildenden Wachstumskeimen wird bei hohen Temperaturen jedoch nicht die Orientierung des Saphirsubstrats aufgezwungen, weswegen sich Al(Ga)N Facetten in unterschiedlichen Orientierungen ausbilden, die bei lateraler Koaleszenz im

weiteren Wachstumsprozess zu hohen Defektdichten (Korngrenzen) und hohen Oberflächenrauigkeiten führen. Ein geordnetes epitaktisches Wachstum wird somit verhindert [80].

Ein großer Durchbruch zur Herstellung qualitativ hochwertiger Al(Ga)N Epitaxieschichten gelang Amano et al. [3] und Nakamura [4] mit der Einführung von AlN bzw. GaN Nukleationsschichten. Dabei wird bei der MOVPE in einem zweistufigen „two-step“ Wachstumsprozess zunächst eine dünne 10 bis 50nm dicke AlN oder GaN Nukleationsschicht bei niedrigen Temperaturen (500 bis 800°C) auf Saphir aufgewachsen. Diese Niedertemperatur (LT, low temperature) - Nukleationsschicht hat entscheidenden Einfluss auf die Epitaxie der anschließend gewachsenen qualitativ hochwertigen Hochtemperatur (HT, high temperature) Al(Ga)N Schicht. Grundsätzlich können der Nukleationsschicht drei wesentliche Effekte zugeschrieben werden, die zu einem geordneten epitaktischen Wachstum der HT-Schicht führen. Durch eine erhöhte Oberflächenrauigkeit der Nukleationsschicht vergrößert sich der Haftungskoeffizient zur HT-Al(Ga)N Schicht. Die Nukleationsschicht bildet also Kondensationskeime aus, die das Anwachsen von HT-Al(Ga)N Facetten erleichtern (Abbildung 3.2a). Einen weiteren Effekt stellt der Abbau der durch die Gitterfehlانpassung bedingten Verspannung in der HT-Schicht dar. Nukleationsschichten sind typischerweise sehr defektreich, was auf die Bildung der in Kapitel 3.1 beschriebenen Gitterfehlانpassungsversetzungen (MDs) zurückgeführt werden kann. Da bereits die Nukleationsschicht die kritische Dicke erreicht, ist diese durch die Ausbildung von Gitterfehlانpassungsversetzungen bis auf ein mögliches schwaches Restverspannungsfeld relaxiert, wodurch die HT-Schicht ebenfalls nahezu unverspannt aufwächst. Da die partialen Gitterfehlانpassungsversetzungen typischerweise parallel zur Wachstumsgrenzfläche propagieren (siehe Kapitel 3.1), wird diesen praktisch keine Bedeutung im weiteren Wachstumsprozess der HT-Schicht zugeschrieben [81]. Der wohl wichtigste Beitrag der Nukleationsschicht zu einem geordneten epitaktischen Wachstum ist allerdings die Eigenschaft, dass den bei niedrigen Temperaturen gewachsenen Nukleationskeimen die Orientierung und Symmetrie der Substratoberfläche aufgezwungen wird, wodurch sich im weiteren Wachstum der HT-Schicht nur sehr geringe Fluktuationen in der Orientierung der

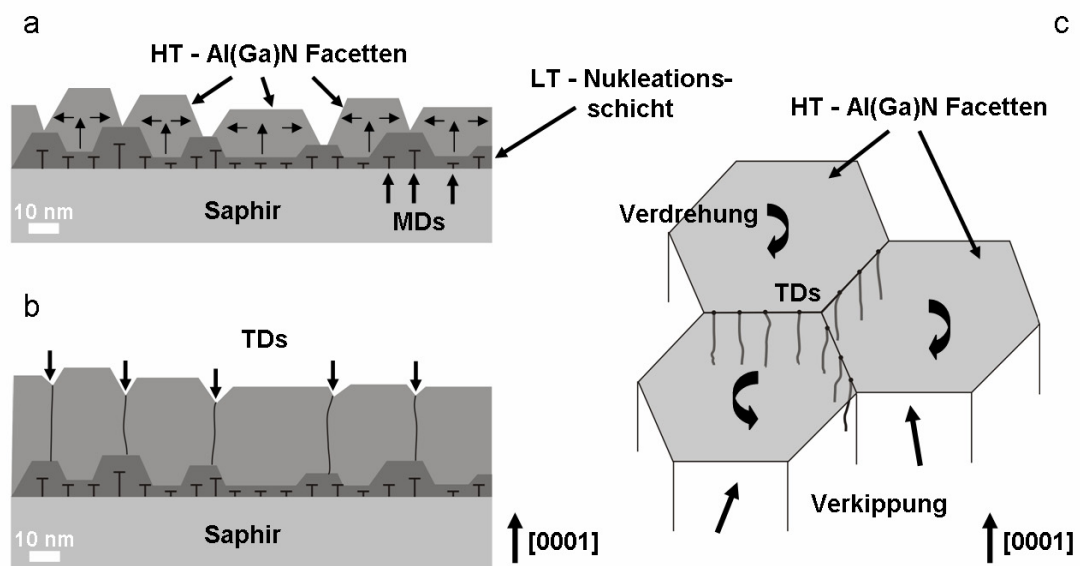


Abb. 3.2: Schematische Darstellung zur Entstehung der Durchstoßversetzungen (TDs) (a) & (b) in Anlehnung an [85]. Der angegebene Maßstab stellt keinen absoluten Wert dar und dient nur zur Orientierung. Durch geringe Fehlorientierungen (Verdrehung, Verkippung) der Al(Ga)N Facetten entstehen an den Grenzflächen der lateralen Koaleszenz TDs, dargestellt in (c) gemäß den Ausführungen in [84].

HT-Al(Ga)N Facetten ergeben [80, 82]. Im weiteren Wachstumsprozess wachsen die HT-Al(Ga)N Facetten lateral zusammen und bilden eine geschlossene Schicht (Abbildung 3.2b), deren Dicke im Idealfall gleichmäßig durch ein geordnetes zweidimensionales Frank-van der Merwe (FVM) Wachstum im weiteren Wachstumsverlauf zunimmt [83]. Zwar wird durch den beschriebenen zweistufigen Wachstumsprozess ein geordnetes epitaktisches Wachstum mit hoher Kristallqualität für die HT-Schichten erreicht, allerdings weisen die so gewachsenen Al(Ga)N Schichten eine hohe Anzahl an sogenannten Durchstoßversetzungen (TDs, threading dislocations) auf, die als perfekte Versetzungen beim Wachstum von (0001) Al(Ga)N auf (0001) Saphir parallel zur c-Achse in epitaktischer Wachstumsrichtung bis zur Oberfläche propagieren. Typische Versetzungsdichten der TDs liegen im Bereich von 10^9 bis 10^{10} cm^{-2} , wobei die Versetzungsdichte D_v allgemein definiert ist als die Länge L sämtlicher Versetzungslinien pro Kristallvolumen V :

$$D_v = \frac{L}{V} \quad (3.3)$$

Da im Gegensatz zu den Gitterfehlpassungsversetzungen die TDs in Richtung des epitaktischen Wachstums mitwachsen und bis zur Oberfläche der Schicht propagieren, nehmen sie direkt Einfluss auf die Eigenschaften eines auf diese Schicht gewachsenen optoelektronischen Bauelements, wie im folgenden Kapitel noch genauer erläutert wird. Eine mögliche Ursache für die Bildung der Durchstoßversetzungen beim Wachstum von (0001) Al(Ga)N auf (0001) Saphir durch einen zweistufigen Wachstumsprozess in der Gasphasenepitaxie wurde von Ning et al. [84] gegeben. Danach werden die Durchstoßversetzungen durch das laterale Zusammenwachsen leicht gegeneinander verdrehter (twist) und verkippter (tilt) Al(Ga)N Facetten an deren Grenzflächen gebildet, da die Al(Ga)N Inseln mit geringen Fehlorientierungen relativ zum Substrat auf der Nukleationsschicht aufwachsen (Abbildung 3.2c). Dieses Ergebnis wurde von Wu et al. [85] bestätigt. Abgesehen von der Möglichkeit, dass durch Interaktion zweier partieller Gitterfehlpassungsversetzungen eine perfekte Durchstoßversetzung entstehen kann, sind somit im Gegensatz zu den verspannungsinduzierten Gitterfehlpassungsversetzungen die Durchstoßversetzungen wachstumsinduziert. Es bleibt zu erwähnen, dass der Ursprung der Durchstoßversetzungen beim epitaktischen Wachstum von Al(Ga)N auf Fremdsubstrate nach wie vor kontrovers diskutiert wird [81]. So wurden in der Arbeit von Narayanan et al. [86] bei TEM Untersuchungen an wachstumsunterbrochenen HT-GaN Schichten auf LT-GaN Nukleationsschichten die Durchstoßversetzungen nicht an den Grenzflächen zusammengewachsener GaN Inseln beobachtet sondern in den zentralen Bereichen innerhalb der GaN Facetten. Eine alternative Erklärung lieferte hier die Beobachtung von basalen Stapelfehlern nahe der Substrat/Schicht-Grenzfläche im TEM, aus denen perfekte Durchstoßversetzungen durch Koaleszenz zweier Frank-Partialversetzungsschleifen hervorgingen. Grundsätzlich hat sich gezeigt, dass ohne die Verwendung von Nukleationsschichten Versetzungsdichten unterhalb einer Größenordnung von 10^{10} cm^{-2} nicht realisierbar sind, weswegen sich die Anwendung eines zweistufigen Wachstumsprozesses generell durchgesetzt hat [87-93].

3.3 Einfluss von Versetzungen auf optoelektronische Bauelemente

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurde das Wachstum von AlGaIn auf Saphirsubstrate mit dem Ziel untersucht, qualitativ hochwertige AlGaIn Pufferschichten mit niedrigen Defektdichten als Quasisubstrat für das Wachstum von LED Heterostrukturen zu Verfügung zu stellen. Abbildung 3.3 zeigt schematisch das Schichtsystem einer im Rahmen des vom BMBF geförderten „Deep UV-LED“ Projekts mittels MOVPE auf eine $\text{Al}_{0.2}\text{Ga}_{0.8}\text{N}$

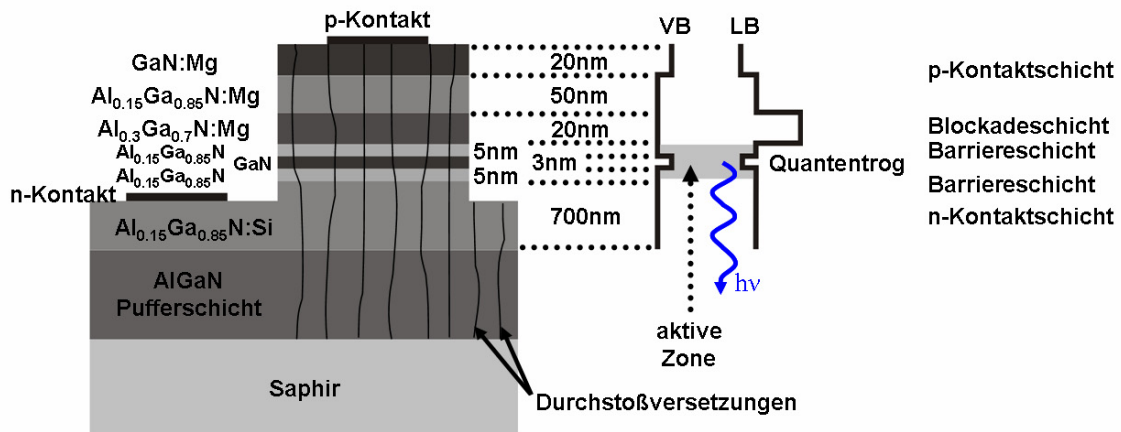


Abb. 3.3: Schematische Darstellung des Schichtsystems einer im Rahmen des „Deep UV-LED“ Projekts mittels MOVPE gewachsenen 350 nm LED Struktur auf eine $\text{Al}_{0.2}\text{Ga}_{0.8}\text{N}$ Pufferschicht.

Pufferschicht gewachsenen LED Struktur mit einer Emissionswellenlänge von 350 nm [94, 95]. Ebenfalls dargestellt ist das vereinfachte Bänderschema von Valenzband (VB) und Leitungsband (LB) entlang des LED Schichtsystems. Zentraler Bestandteil einer LED ist ein p-n Übergang, an dem bei Anlegen einer Spannung in Durchlassrichtung zwischen n- und p-Kontakt strahlende Rekombination stattfindet. Die Elektronen im Leitungsband der n-dotierten Schicht rekombinieren dabei mit den Löchern im Valenzband der p-dotierten Schicht unter Emission eines Photons mit einer Energie, die der Bandlücke zwischen Valenz- und Leitungsband entspricht. Der p-n Übergang wird in der dargestellten LED Schichtstruktur durch eine n- und p-dotierte $\text{Al}_{0.15}\text{Ga}_{0.85}\text{N}$ Kontaktschicht (700nm bzw. 50nm) realisiert. Die n-Dotierung erfolgt mittels Silizium, während für die p-Dotierung Magnesium verwendet wird. Typische Dotierdichten liegen dabei im Bereich von 10^{19}cm^{-3} . Um den Kontaktwiderstand zwischen Halbleiter und Metallkontakt zu reduzieren, wird auf die p-dotierte AlGaIn Schicht eine noch höher dotierte 20 nm dicke GaN Schicht gewachsen. Theoretisch würde für eine LED, bei welcher nur spontane Emission gefordert wird, ein einfacher p-n Übergang aus einem direkten Halbleiter ausreichen, um strahlende Rekombination zu erreichen. Allerdings wäre ein derartiges optoelektronisches Bauteil hinsichtlich der optischen Ausgangsleistung und der sogenannten externen Quanteneffizienz (EQE, external quantum efficiency) unbrauchbar. Ein Problem stellt die im Vergleich zu den Löchern hohe Mobilität der Elektronen aufgrund ihrer niedrigeren effektiven Masse dar. Dies hätte bei einem einfachen p-n Übergang zur Folge, dass beim Anlegen einer Durchlassspannung zwischen n- und p-Kontakt ein großer Teil der Elektronen von der n-dotierten Schicht über die p-dotierte Schicht zum p-Kontakt abfließen würde, ohne dabei strahlend zu rekombinieren, was die Lichtausbeute stark reduzieren würde. Aus diesem Grund wird im p-dotierten Teil der LED grundsätzlich eine Blockadeschicht (EBL, electron blocking layer) gewachsen. Im dargestellten Schichtsystem wird die EBL durch eine 20nm dicke $\text{Al}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{N}$ Schicht gebildet, welche ebenfalls p-dotiert ist. Aufgrund der höheren Aluminiumkonzentration weist diese Schicht eine größere Bandlücke auf (siehe Abbildung 2.2), was im Leitungsband aufgrund der entstandenen Potentialbarriere die Elektronen am Abfließen hindert und die strahlende Rekombinationswahrscheinlichkeit erhöht. Allerdings ergibt sich bei der Verwendung eines einfachen p-n Übergangs ein zusätzliches Problem. Die durch strahlende Rekombination erzeugten Photonen weisen eine Energie auf, die der Energie der Bandlücke des p-n Übergangs entspricht. Dadurch würde nur ein sehr geringer Anteil der erzeugten Photonen die LED Struktur aufgrund der Absorption der Photonen durch Anregung von Elektronen im Valenzband ins Leitungsband verlassen. Dies macht das Einbringen von

sogenannten Quantentrogstrukturen (QWs, quantum wells) im Bereich des p-n Übergangs notwendig. Ein einfacher Quantentrog (SQW, single quantum well) wird aus einer nur wenige Nanometer dicken Schicht gebildet, deren Bandlücke geringer ist als die des p-n Matrixmaterials. In der so gebildeten aktiven Zone der LED werden durch strahlende Rekombination der Elektronen und Löcher Photonen erzeugt, deren Energie geringer ist als die der Bandlücke des Matrixmaterials, wodurch die Absorption des erzeugten Lichts stark reduziert wird. Zusätzlich wird durch das Einbringen von Quantentrogstrukturen eine hohe Besetzungsinversion von Elektronen und Löchern erreicht, da beim Anlegen einer Durchlassspannung Elektronen und Löcher im lokalen Potentialminimum des Quantentrogs eingefangen werden, was die strahlende Rekombinationswahrscheinlichkeit erhöht. Über die Bandlücke des Quantentrogs kann die emittierte Wellenlänge der LED eingestellt werden. In der vorliegenden LED Struktur wird der SQW durch eine 3 nm dicke GaN Schicht gebildet. Mit einer Bandlücke von 3.4 eV für GaN wird die LED im UV-Bereich bei einer Wellenlänge von 350nm emittieren. Da wie bereits erwähnt der Quantentrog eine geringere Bandlücke haben muss als das LED Matrixmaterial, wird die Notwendigkeit für das Wachstum von AlGaIn Schichten mit entsprechend hoher Aluminiumkonzentration aufgrund der größeren Bandlücke deutlich, um nitridbasierende LEDs mit Emissionswellenlängen von 350 nm und weniger herzustellen. Da bei der Fabrikation eines MESA-LED Chips mit Flip-Chip Architektur der größte Anteil des nutzbaren Lichts von der aktiven Zone durch das Saphirsubstrat emittiert wird, ist es beim Wachstum von AlGaIn Quasisubstraten auf Saphir notwendig, gänzlich auf reine GaN Schichten z.B. für die Nukleationsschicht oder als zusätzliche Pufferschicht zwischen Saphir und AlGaIn zu verzichten, um eine Absorption des UV-Lichts durch derartige Schichten zu vermeiden, weswegen als Nukleationsschicht für die in dieser Arbeit gewachsenen und untersuchten AlGaIn Schichten reines AlN verwendet wurde [87, 88, 96].

Wie bereits in Kapitel 3.2 erläutert wurde, entstehen bei Wachstum von AlGaIn Pufferschichten als Quasisubstrate für LED Heterostrukturen auf Saphir Durchstoßversetzungen, die entsprechend der epitaktischen Wachstumsrichtung senkrecht zum Substrat bis zur Oberfläche propagieren. Beim anschließenden Wachstum eines LED Schichtsystems werden sich diese Versetzungen bis zur p-Kontaktschicht fortpflanzen, wie in Abbildung 3.3 dargestellt ist. Das eigentliche Problem hinsichtlich der optischen Eigenschaften eines optoelektronischen Bauelements stellt die folgerichtige Propagation der Durchstoßversetzungen durch die aktive Zone der LED dar. Es ist bekannt, dass Versetzungen als Zentren nicht-strahlender Rekombination von Ladungsträgern hauptverantwortlich für die Degradation von optoelektronischen Bauelementen sind [11, 12], weswegen große Anstrengungen unternommen werden, die Versetzungsdichten beim Wachstum von nitridbasierenden Quasisubstraten auf Fremdsubstrate zu minimieren. Zur Beschreibung nicht-strahlender Übergänge dient meist das Shockley-Read-Hall-Modell (SRH) [97]. Hierbei wird die Rekombination eines Ladungsträgers über ein diskretes Energieniveau in der verbotenen Zone zwischen Leitungsband und Valenzband beschrieben. Ursache für die Bildung dieser sogenannten „deep-level traps“ können Kristalldefekte wie Punktdefekte oder Versetzungen sein. Propagiert eine Durchstoßversetzung bis zum p-Kontakt einer LED, so werden auch im Bereich der aktiven Zone Defektniveaus in der verbotenen Zone gebildet. Beim Anlegen einer Durchlassspannung an die LED wird bei hohen Versetzungsdichten ein großer Anteil der Leitungsbandelektronen im Bereich der aktiven Zone über Defektniveaus ins Valenzband rekombinieren. Bei der SRH-Rekombination handelt es sich um einen sequenziellen Prozess, bei welchem jeweils ein Phonon beim Übergang des Elektrons vom Leitungsband ins Defektniveau und vom Defektniveau ins Valenzband angeregt wird. Neben der Verschlechterung der externen Quanteneffizienz des Bauteils durch nicht-strahlende Rekombination an Versetzungen geht die Anregung von Phononen einher mit der Erhöhung der Temperatur des Bauteils, wodurch zusätzliche Defekte während der Betriebsdauer in den

Kristall induziert werden, was die Lebensdauer des optoelektronischen Bauelements stark reduziert. Einen weiteren negativen Einfluss haben Defekte hinsichtlich des emittierten Spektrums einer LED. Durch strahlende Rekombination von Ladungsträgern über Defektniveaus verursacht von Punktdefekten wie z.B. Fehlstellen im Kristall können im Elektrolumineszenzspektrum der LED unerwünschte Wellenlängenbereiche mit entsprechenden Energien unterhalb des eigentlichen LB-VB Übergangs beobachtet werden. Für GaN basierende blaue und violette LEDs ist so die Emission von zusätzlichen gelben und grünen Spektralbereichen typisch [98]. Zwar gelten Durchstoßversetzungen als Zentren nicht-strahlender Rekombination, werden allerdings für die Anhäufung von Punktdefekten im Kristall verantwortlich gemacht, da die mit den Versetzungen einhergehenden Spannungsfelder aufgrund ihrer attraktiven Wirkung Punktdefekte einfangen können [99, 100].

3.4 Möglichkeiten der Defektreduktion

Zwar ermöglicht der zweistufige Wachstumsprozess durch Verwendung von LT-Nukleationsschichten ein geordnetes epitaktisches Wachstum von Al(Ga)N Schichten mit hoher Qualität auf Saphir, aufgrund der allerdings hohen Dichte an Durchstoßversetzungen im Bereich von 10^{10} cm^{-2} in diesen Schichten besteht nach wie vor großes Interesse daran, die Defektdichte während des epitaktischen Wachstumsprozesses weiter zu reduzieren. Neben Untersuchungen, die Nukleationsschicht selbst z.B. durch eine geeignete Sauerstoffdotierung der AlN Nukleationsschicht [89, 101] oder eine dreidimensionale Vorfacettierung einer GaN Nukleationsschicht [94, 102-104] zu optimieren, wurden erfolgreich sowohl ex- wie auch in-situ Wachstumsverfahren entwickelt, welche die Propagation von Durchstoßversetzungen bis zur Oberfläche durch das Einbringen von SiO_2 oder SiN_x Masken verhindern. Hierzu gehören im Wesentlichen die ex-situ Prozesse wie ELO (epitaxial lateral overgrowth) und FACELO (facet controlled epitaxial lateral overgrowth) sowie die Defektreduktion mittels in-situ gewachsener SiN_x Zwischenschichten. Generell wird bei den genannten Verfahren zur Defektreduktion die Eigenschaft der Durchstoßversetzungen, bevorzugt in Richtung des epitaktischen Wachstums zu propagieren, ausgenutzt. Mit Hilfe von ELO- und FACELO-Methoden [15-20] sowie mittels in-situ gewachsenen SiN_x Zwischenschichten [21-29] konnte die Dichte der Durchstoßversetzungen beim Wachstum von reinem GaN auf Fremdsubstrate wie Saphir mit hoher Effizienz reduziert werden. Es hat sich allerdings auch gezeigt, dass insbesondere die ELO- und FACELO-Prozesse zur Defektreduktion beim Wachstum von AlGaN Schichten mit hohen Aluminiumkonzentrationen unbrauchbar sind [36, 37]. Wenngleich von anderen Forschungsgruppen von keiner oder nur einer geringen defektreduzierenden Wirkung von in-situ gewachsenen SiN_x Zwischenschichten in AlGaN berichtet wird [38], wurden im Rahmen des „Deep UV-LED“ Projekts SiN_x Zwischenschichten erfolgreich zur Defektreduktion in $\text{Al}_{0.2}\text{Ga}_{0.8}\text{N}$ Schichten eingesetzt, was Anlass gab, die defektreduzierende Wirkung von in-situ gewachsenen SiN_x Zwischenschichten mittels transmissionselektronenmikroskopischer Methoden im Detail zu untersuchen.

Im Folgenden werden nun die genannten ex-situ Wachstumsprozesse ELO und FACELO wie auch der in-situ Prozess mittels SiN_x Zwischenschichten genauer erläutert, um auch die generellen Probleme aufzuzeigen, die bei der Übertragung dieser für reines GaN erfolgreichen Techniken auf AlGaN entstehen. Die Ausführungen hinsichtlich der prinzipiellen Wirkung dieser Prozesse beziehen sich dabei im Wesentlichen auf die Erkenntnisse, welche von verschiedenen Gruppen beim Wachstum von reinem GaN erzielt wurden.

3.4.1 Defektreduktion mittels ex-situ gewachsener ELO- und FACELO-Strukturen

Die Möglichkeit der Defektreduktion durch laterales Überwachsen von SiO_2 Masken wurde bereits 1989 von Ujiie et al. erkannt und zur Verringerung der Defektdichten in GaAs verwendet [105]. Von Nam et al. [15] und Zheleva et al. [16] wurde das ELO-Verfahren erstmals 1997 auch auf GaN angewendet. In Anlehnung an die Ausführungen in [106] zeigt Abbildung 3.4 schematisch die Wachstumsschritte des ELO-Prozesses. Beim ELO-Verfahren wird zunächst mittels MOVPE wie beim Wachstum herkömmlicher GaN Strukturen eine HT-GaN Pufferschicht mit einer Dicke in der Größenordnung von 500-1000 nm unter Verwendung einer LT-AlN Nukleationsschicht gewachsen. Typische Dichten der Durchstoßversetzungen liegen dabei im Bereich von 10^{10} cm^{-2} . Im Anschluss wird auf die GaN Oberfläche eine ca. 50 – 100 nm amorphe SiO_2 Schicht gewachsen, die mittels photolithographischer Verfahren zu einer Maske strukturiert wird (ex-situ Prozess). Durch chemisches Ätzen werden parallele Streifen (Fenster) bis zur GaN Oberfläche in [01-10]-Richtung geöffnet (Abbildung 3.4a). Die Breite der Fenster wie auch der Abstand zwischen den Fenstern liegt typischerweise bei einigen μm . Danach wird das GaN Wachstum im MOVPE Reaktor fortgesetzt. Der Haftkoeffizient von GaN auf der SiO_2 Maske ist allerdings gegenüber dem direkten Wachstum auf GaN deutlich reduziert, wodurch im weiteren Wachstumsprozess GaN nur in den Fensterbereichen nukleiert. Man spricht in diesem Zusammenhang von einem selektiven Wachstum von GaN. Der Grund für die geringe Haftung von GaN auf dem Maskenmaterial wird der geringen Bindungsenergie zwischen den freien Bindungen der SiO_2 Oberfläche und den Galliumatomen zugeschrieben, was sich in einer hohen Mobilität der Galliumatome mit im Vergleich zur GaN Oberfläche deutlich größeren mittleren freien Weglängen für die Diffusion der Galliumatome entlang der SiO_2 Oberfläche äußert [107]. Die SiO_2 Schicht wirkt deshalb als sogenannter anti-surfactant (anti-surface active agent), der eine Nukleation von GaN verhindert. Unter geeigneten Wachstumsbedingungen wächst das GaN in den Fensterbereichen epitaktisch in vertikaler Richtung, sodass sich ein rechteckiger Kristallquerschnitt in den Fensterbereichen ausbilden kann (Abbildung 3.4b). Durch Änderung der Wachstumsparameter hinsichtlich Druck und Temperatur [17], wird anschließend auf laterales Wachstum umgestellt, wodurch von den vertikalen GaN-Flanken aus die SiO_2 Maske lateral überwachsen wird, bis die GaN-Flügel etwa in der Mitte über der SiO_2 Maske koaleszieren und eine geschlossene Oberfläche bilden (Abbildung 3.4c). Dadurch dass die Durchstoßversetzungen an der amorphen SiO_2 Maske als neue Wachstumsgrenzfläche gestoppt werden und durch das laterale Überwachsen mögliche vorhandene Versetzungen in den Flügeln nur noch in horizontaler Richtung propagieren, entstehen bis auf die Koaleszenzbereiche durch leichte Missorientierungen der GaN-Flügel über den Masken Bereiche mit sehr niedrigen Defektdichten. Die geschlossene GaN Oberfläche kann nun insbesondere in den Flügelbereichen als Quasisubstrat für das Wachstum von LED Heterostrukturen dienen.

Ein entscheidender Nachteil des beschriebenen ELO-Verfahrens ist die nach wie vor hohe Defektdichte in den Fensterbereichen. Um diesen Nachteil zu überwinden, wurde ein

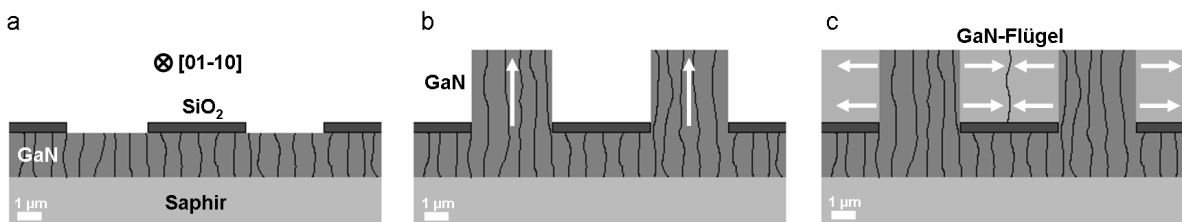


Abb. 3.4: Schematische Darstellung des ELO-Verfahrens zur Herstellung von GaN Quasisubstraten mit niedrigen Defektdichten mittels einer ex-situ strukturierten SiO_2 Maske. Der eingezeichnete Maßstab stellt keinen absoluten Wert dar und dient nur zur Veranschaulichung der Größenverhältnisse im Maskenbereich.

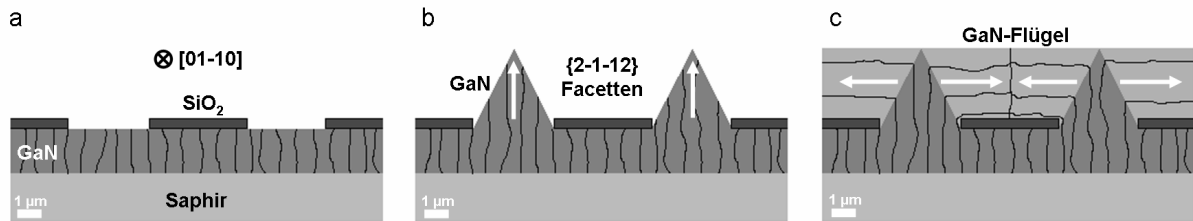


Abb. 3.5: Schematische Darstellung der FACELO-Methode zur Herstellung von Quasisubstraten mit niedrigen Defektdichten an der Oberfläche auch in den Fensterbereichen durch Optimierung des GaN Wachstums zur Bildung von $\{2-1-12\}$ Facetten mit dreieckigem Kristallquerschnitt.

optimiertes ELO Verfahren für das Wachstum von GaN auf Fremdsubstrate entwickelt, welches als FACELO Methode bezeichnet wird [18, 19]. Gemäß den Ausführungen in [106] ist der Wachstumsprozess mittels FACELO schematisch in Abbildung 3.5 dargestellt. Die FACELO Methode ist wie das klassische ELO-Verfahren ein ex-situ Prozess, bei welcher die Maskierung der GaN Oberfläche mittels einer SiO_2 Maske analog zum ELO-Verfahren durchgeführt wird (Abbildung 3.5a). Im Anschluss wird das GaN Wachstum in den Fenstern fortgesetzt. Im Gegensatz zum ELO-Verfahren werden allerdings Wachstumstemperatur und -druck so modifiziert, dass sich in den Fensterbereichen dreieckige Kristallquerschnitte mit $\{2-1-12\}$ Facetten ausbilden (Abbildung 3.5b). Nach dem anschließenden lateralen Überwachsen der SiO_2 Maske von den $\{2-1-12\}$ Facetten aus bis zur Koaleszenz der GaN Flügel bildet sich eine geschlossene Oberfläche aus, die aufgrund der Vorfacettierung des GaN auch in den Fensterbereichen geringe Defektdichten aufweist und somit über die Maskenbereiche hinaus als Quasisubstrat für LED Schichtsysteme geeignet ist (Abbildung 3.5c).

Allerdings wurde von Kato et al. [36] und Mochizuki et al. [37] gezeigt, dass die ELO- und FACELO-Methode zur Defektreduktion in AlGaIn ungeeignet ist, da sich für AlGaIn mit zunehmender Aluminiumkonzentration im Vergleich zu reinem GaN die Eigenschaft des selektiven Wachstums bezüglich der SiO_2 Maske und damit die Wirkung von SiO_2 als anti-surfactant verschlechtert. Dies äußert sich dahingehend, dass das AlGaIn auch auf den Maskenbereichen nukleiert, was ein laterales Überwachsen verhindert. Der Grund für das weniger selektive Wachstum von AlGaIn bezüglich der SiO_2 Masken wurde von Hiruma et al. [107] gegeben und liegt in der größeren Bindungsenergie zwischen den Aluminium- und Sauerstoffatomen der SiO_2 Maske im Vergleich zum Gallium. Aluminium weist dadurch eine eingeschränkte Mobilität mit geringen mittleren freien Weglängen für die Diffusion entlang des Maskenmaterials auf, wodurch sich AlGaIn auch auf den Maskenbereichen deponiert und die Wirkung von SiO_2 als anti-surfactant bei AlGaIn stark eingeschränkt ist.

3.4.2 Defektreduktion mittels in-situ gewachsener SiN_x Zwischenschichten

Einen großen Nachteil des oben beschriebenen ELO- und FACELO-Verfahrens stellt die Notwendigkeit einer ex-situ Maskierung der SiO_2 Schicht dar, bei welcher das Wachstum für eine aufwendige photolithographische Strukturierung unterbrochen werden muss. Um dieses Problem zu umgehen, wurde 1998 von Vennéguès et al. [108] und Haffouz et al. [109] angeregt, in-situ deponierte SiN_x Zwischenschichten zur Defektreduktion in GaN zu verwenden. Hierbei wurde beobachtet, dass eine erhöhte Konzentration von Silizium direkt auf der Saphiroberfläche zu einem dreidimensionalen Inselwachstum von GaN führt, wodurch die Defektdichte im GaN deutlich reduziert wurde. Von Tanaka et al. [21] wurde die Verwendung von SiN_x Zwischenschichten so modifiziert, dass durch Einbringen von SiN_x in die GaN Schicht die Defektdichte auch innerhalb der Epitaxieschicht verringert werden konnte. Aufgrund des Wegfallens einer sehr zeitaufwendigen ex-situ Prozessierung und der Realisierung niedriger Defektdichten im Bereich von 10^8 cm^{-2} mit einer defektreduzierenden

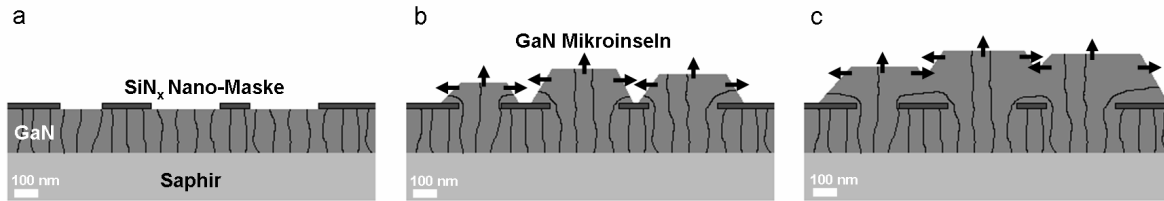


Abb. 3.6: Schematische Darstellung der Defektreduktion in GaN mittels in-situ abgeschiedener SiN_x Zwischenschicht nach einem bislang verwendeten Wachstumsmodell in Anlehnung an [26, 110, 111]. Der eingezeichnete Maßstab stellt keinen absoluten Wert dar und dient nur zur Veranschaulichung der Größenverhältnisse zwischen der SiN_x Nano-Maske und den GaN Mikroinseln.

Wirkung an der SiN_x Grenzfläche um bis zu einer Größenordnung in nur einem Wachstumsprozess haben sich in den letzten Jahren zahlreiche Gruppen mit der Defektreduktion mittels SiN_x Zwischenschichten vor allem in reinem GaN beschäftigt [21-29]. Obwohl mittels SiN_x Zwischenschichten große Erfolge hinsichtlich der Defektreduktion in reinem GaN erzielt wurden, ist nur wenig über die genaue Wirkungsweise von SiN_x Zwischenschichten bekannt. Im Rahmen dieser Arbeit wurde die defektreduzierende Wirkung von SiN_x Zwischenschichten in AlGaIn im Detail untersucht. Diesbezüglich soll zunächst eine grundsätzliche Prozessbeschreibung zur Epitaxie und Wirkung der SiN_x Schicht erfolgen, mit welcher bislang basierend auf Untersuchungen in reinem GaN gearbeitet wurde, um im Anschluss auf nach wie vor offene Fragen und Probleme hinsichtlich der Defektreduktion in AlGaIn einzugehen, die Gegenstand detaillierter transmissionselektronenmikroskopischer Untersuchungen in dieser Arbeit sind.

In Abbildung 3.6 ist schematisch die Defektreduktion in GaN mittels einer in-situ abgeschiedenen SiN_x Zwischenschicht dargestellt. Zunächst wird standardmäßig eine HT-GaN Schicht unter Verwendung einer LT-Nukleationsschicht mittels MOVPE auf Saphir gewachsen. Typische Schichtdicken der GaN Pufferschicht liegen zwischen 100 und 1000 nm. Zur Abscheidung der SiN_x Schicht wird im Anschluss der TMG-Einlass gestoppt. Als Präkursor für Silizium dient im MOVPE Reaktor Silan (SiH_4). Ohne die Wachstumsparameter (Druck, Temperatur) bezüglich der zuvor gewachsenen GaN Schicht im Wesentlichen zu verändern, wird durch den Einlass von Silan und Ammoniak SiN_x auf der GaN Pufferschicht abgeschieden. Die Deposition von SiN_x auf der GaN Oberfläche erfolgt stochastisch, sodass mit SiN_x bedeckte Bereiche mit unbedeckten Bereichen abwechseln (Abbildung 3.6a). Entscheidend für die defektreduzierende Wirkung der SiN_x Schicht ist die mittels der SiH_4 -Einlasszeit beeinflussbare unterbrochene Maskierung der GaN Oberfläche, weswegen die Einlasszeiten typischerweise im Minutenbereich liegen. Der SiN_x Bedeckungsgrad ist dementsprechend sehr gering, sodass in den bedeckten Bereichen die Dicke der SiN_x Schicht oft als atomare Monolage angenommen wird (Nano-Maskierung) [21] und die Stöchiometrie der Silizium-Stickstoff Verbindung entsprechend nicht eindeutig verifizierbar ist [108]. Im weiteren Wachstumsprozess wird unter gleichen Wachstumsbedingungen das GaN Wachstum fortgesetzt. Ähnlich wie SiO_2 beim ELO-Verfahren wirkt auch SiN_x als anti-surfactant. Aufgrund der deutlich geringeren Bindungsenergie zwischen Gallium und den freien Bindungen der SiN_x Schicht im Vergleich zu den freiliegenden GaN Bereichen weist Gallium auf der SiN_x Oberfläche eine höhere Mobilität auf, wodurch GaN nur in den unmaskierten Bereichen nukleiert. Dadurch wird das GaN zu einem dreidimensionalen Inselwachstum mit vertikaler und lateraler Wachstumskomponente gezwungen und es bilden sich GaN Mikroinseln aus, welche die SiN_x Schicht lateral überwachsen (Abbildung 3.6b). Dadurch ändern die Durchstoßversetzungen im Randbereich der Inseln entsprechend der lateralen Wachstumsrichtung der GaN Inseln ihre Propagationsrichtung und können bei Koaleszenz der Inseln miteinander interagieren und Versetzungshalbschleifen bilden, welche nicht weiter zur Oberfläche propagieren (Abbildung

3.6c) [26, 110, 111]. Ist die laterale Koaleszenz der GaN Inseln abgeschlossen, wächst die GaN Schicht in einem zweidimensionalen Wachstumsprozess weiter und bildet nach einer Schichtdicke von wenigen μm eine ebene Oberfläche mit geringer Defektdichte. Von einem möglichen Blockieren der Versetzungen in Bereichen mit SiN_x Bedeckung, wie in Abbildung 3.6c dargestellt, wird in [27, 81, 111] berichtet. Möglich wäre dies durch eine bevorzugte Haftung von Silizium auf den Versetzungskernen aufgrund nicht gesättigter Bindungen im Bereich der plastischen Deformation [21, 112]. Eine dadurch bedingte Ausbildung von amorphen SiN_x Nanoinseln als neue Wachstumsgrenzfläche über den Versetzungskernen würde diese abschließen und eine weitere Propagation der Versetzung beim anschließenden Überwachsen mit GaN verhindern, vergleichbar zu den SiO_2 Maskenbereichen beim ELO-Verfahren. In Analogie zum ELO-Verfahren wird die Defektreduktion mittels SiN_x Zwischenschichten oft auch als Nano-ELO bezeichnet.

Allerdings machen sich bezüglich der defektreduzierenden Wirkung von SiN_x Zwischenschichten in AlGaIn mit zunehmender Aluminiumkonzentration ähnliche Probleme bemerkbar wie beim ELO-Verfahren mittels SiO_2 Masken. Bei zunehmendem Aluminiumgehalt geht die selektive Wachstumseigenschaft von AlGaIn bezüglich der SiN_x Maskierung zurück. Der Grund für die abnehmende Wirkung von SiN_x als anti-surfactant bei AlGaIn ist die höhere Bindungsenergie zwischen Aluminium und Stickstoff im Vergleich zum Gallium, wodurch Aluminium analog zum ELO-Verfahren eine reduzierte Mobilität für die Diffusion entlang der SiN_x Maske aufweist. Dadurch nukleiert AlGaIn auch auf den Maskenbereichen, was ein für die Defektreduktion essentielles laterales Zusammenwachsen der AlGaIn Mikroinseln verhindert. Neben den selektiven Wachstumseigenschaften wirken sich hohe Aluminiumkonzentrationen bedingt durch die hohe Bindungsenergie zwischen Aluminium und Stickstoff auch negativ auf das laterale Wachstumsverhalten der AlGaIn Mikroinseln aus, die durch eine stärkere vertikale Wachstumskomponente die Ausbildung von Versetzungshalbschleifen direkt über den SiN_x Maskenbereichen erschweren. So konnte diesbezüglich von Engl et al. [38] keine defektreduzierende Wirkung von SiN_x Zwischenschichten in $\text{Al}_{0,1}\text{Ga}_{0,9}\text{N}$ beobachtet werden.

Im Rahmen des „Deep UV-LED“ Projekts konnten allerdings durch eine systematische Optimierung der SiN_x Depositionszeit hohe defektreduzierende Effizienzen der SiN_x Nano-Masken um mehr als eine Größenordnung in $\text{Al}_{0,2}\text{Ga}_{0,8}\text{N}$ Schichten mit deutlich höherer Aluminiumkonzentration erzielt werden [88]. Die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten TEM Untersuchungen an diesen Proben haben allerdings auch gezeigt, dass hohe defektreduzierende Effizienz der SiN_x Zwischenschicht nicht homogen über mehrere μm hinweg entlang der SiN_x Grenzfläche erzielt wird [96]. Bereiche mit hoher und niedriger Defektreduktion wechseln sich im Bereich von mehreren 100nm entlang der SiN_x Schicht ab. Hier stellte sich die Frage über mögliche Ursachen variierender defektreduzierender Effizienz der SiN_x Nano-Maske in $\text{Al}_{0,2}\text{Ga}_{0,8}\text{N}$, der im Zuge der TEM Untersuchungen in dieser Arbeit auf den Grund gegangen wird [96, 113]. Veröffentlichungen anderer Gruppen zur Wirkung von SiN_x Zwischenschichten in reinem GaN zeigen eine hohe defektreduzierende Effizienz an der SiN_x Grenzfläche, an welcher über mehrere μm hinweg in den untersuchten TEM Lamellen nahezu sämtliche Durchstoßversetzungen an einer weiteren Propagation zur Oberfläche gehindert werden [21, 28, 38]. Dies steht allerdings im Widerspruch zum obigen Wachstumsmodell zur Defektreduktion mittels SiN_x Zwischenschichten. Demnach müssten, wie in Abbildung 3.6 angedeutet, im Zentrum der GaN Mikroinseln nach wie vor die meisten Durchstoßversetzungen aufgrund des primär vertikalen Wachstums in diesen Bereichen zur Oberfläche weiter propagieren, während hohe defektreduzierende Effizienz nur zwischen den GaN Mikroinseln erreicht wird. In den in dieser Arbeit unter anderem durchgeführten TEM Untersuchungen an AlGaIn Schichten, bei welchen das Wachstum der AlGaIn Deckschicht auf SiN_x nach bestimmten Überwachszeiten unterbrochen wurde, wird bezüglich des Defektverhaltens genau das Gegenteil beobachtet [96]. Die nahezu defektfreien primären

AlGaN Inseln und die Bereiche mit nach wie vor hohen Defektdichten genau zwischen den Inseln gaben Anlass zu detaillierten Untersuchungen hinsichtlich der defektreduzierenden Wirkung von SiN_x Zwischenschichten und deren Einfluss auf die Propagation der Durchstoßversetzungen in AlGaN.

3.5 Typen von Versetzungen in der hcp- und Wurtzitstruktur

Wie in Kapitel 2 bereits erläutert wurde, kann die α -Phase der Gruppe III-Nitride mittels zwei Metall-/Stickstoffatom hcp-Untergittern beschrieben werden, die um $\frac{3}{8}c$ senkrecht zur Basalebene gegeneinander verschoben sind. Demzufolge entsprechen die möglichen Burgers-Vektoren der Wurtzitstruktur denen eines hcp-Untergitters. Die von der kristallinen Symmetrie abhängigen möglichen Burgers-Vektoren der hcp-Struktur ergeben sich dabei aus den Vektoren, mit denen die beiden Schnittflächen eines Schnitts parallel zur Basalebene zwischen dem A- und B-Stapel gegeneinander verschoben werden können (Volterra-Schnitt [76, 114]), sodass sich wieder eine stabile Kristallkonfiguration ergibt. Abhängig von diesem Verschiebungsvektor, dem Burgers-Vektor, müssen bei Bedarf zusätzliche kristalline Halbebenen eingefügt bzw. entfernt werden. Entspricht der Burgers-Vektor einem Translationsvektor des direkten hexagonalen Gitters, erhält man eine perfekte Versetzung, zu deren Konstruktion - falls notwendig - immer genau so viele kristalline Halbebenen hinzugefügt oder entfernt werden können, dass die Stapelfolge nicht verletzt wird und der Kristall nur entlang der Versetzungslinie gestört ist. Ist der mögliche Burgers-Vektor hingegen kein Translationsvektor des direkten Gitters, so erzeugt die sich daraus ergebende Partialversetzung immer einen Stapelfehler, welcher von der Partialversetzung terminiert wird. Mit diesem Konstruktionsansatz ergeben sich verschiedenen Burgers-Vektoren, die in der hcp-Struktur möglich sind.

In Abbildung 3.7a sind die Indizierungen in der hcp-Einheitszelle definiert, mit denen in Abbildung 3.7b die möglichen Burgers-Vektoren in der hcp- und Wurtzitstruktur angegeben werden [84, 112]. Wie darin ersichtlich ist, bilden die Basisvektoren der hexagonalen Einheitszelle und deren Linearkombinationen die Burgers-Vektoren der perfekten Versetzungen, mit den kristallographischen Notationen $\frac{1}{3}\langle 2-1-10 \rangle$ (**a**-Typ Versetzung), $\langle 0001 \rangle$ (**c**-Typ Versetzung) und $\frac{1}{3}\langle 2-1-13 \rangle$ (**(a+c)**-Typ Versetzung). Da, wie in Kapitel 3.2 bereits beschrieben, bei einem idealen zweidimensionalen Wachstum von (0001)-orientiertem AlGaN auf (0001)-orientiertem Saphir der größte Teil der Durchstoßversetzungen entsprechend der Wachstumsrichtung parallel zur c-Achse verläuft, sind die Versetzungen mit **a**-Typ Burgers-Vektoren im Allgemeinen reine Stufenversetzungen, während die mit Burgers-Vektoren vom Typ **c** als reine Schraubenversetzungen identifiziert werden können. Die **(a+c)**-Typ Durchstoßversetzungen mit einer Burgers-Vektor Komponente sowohl parallel als auch senkrecht zur Versetzungslinie sind demzufolge gemischte Versetzungen. Abgesehen von den

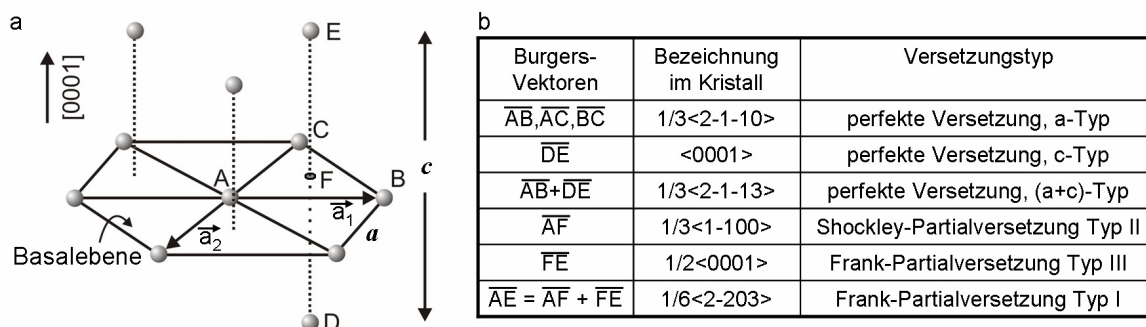


Abb. 3.7: Darstellung der möglichen Burgers-Vektoren und deren Versetzungstypen in der hcp- und Wurtzitstruktur.

Basisvektoren und deren Linearkombinationen treten als Burgers-Vektoren in der hcp-Struktur noch nicht primitive Translationen auf, die zu Partialversetzungen führen [115]. Die Shockley-Partialversetzung Typ II kann durch ein Abscheren der Basalebene um den Burgers-Vektor $\mathbf{b} = 1/3\langle 1-100 \rangle$ oder durch eine Aufspaltung einer perfekten $\mathbf{a}$ -Typ Versetzung in zwei Shockley-Partialversetzungen gebildet werden. Sie ist grundsätzlich verspannungsinduziert und entsteht für gewöhnlich als Gitterfehlانpassungsversetzung bei der Relaxation von Wachstumsgrenzflächen (siehe Kapitel 3.1). Die Shockley-Partialversetzung Typ II terminiert einen basalen Stapelfehler (BSF, basal-plane stacking fault) mit einer zweifachen Verletzung der Stapelfolge (...ABAB**ABC**ACACAC...), welcher auch als intrinsischer I_2 -Typ Stapelfehler bezeichnet wird. Die Frank-Partialversetzung Typ I mit dem Burgers-Vektor $\mathbf{b} = 1/6\langle 2-203 \rangle$ kann durch Hinzufügen oder Entfernen einer Basalebene und zusätzlichem Abgleiten um den Vektor $1/3\langle 1-100 \rangle$ erzeugt werden. Die Bildung dieser Partialversetzung schließt einen basalen Stapelfehler mit einer einfachen Verletzung der Stapelfolge ein (...ABAB**ABC**BCBC...), wobei eine wachstumsinduzierte Entstehung dieses ebenfalls intrinsischen I_1 -Typ Stapelfehlers durch Deposition einer Ebene in falscher Position aufgrund der Notwendigkeit des Entfernen oder Hinzufügens einer Basalebene am wahrscheinlichsten ist. Die Frank-Partialversetzung Typ III kann durch eine Verschiebung der Basalebene um den Burgers-Vektor $\mathbf{b} = 1/2\langle 0001 \rangle$ und Hinzufügen bzw. Entfernen einer (0001)-Halbebene erzeugt werden. Bei dem daraus resultierenden basalen Stapelfehler mit einer dreifachen Verletzung der Stapelfolge (...ABAB**ABC**ABABAB...) handelt es sich ebenfalls um einen wachstumsinduzierten Defekt, der durch Ausscheidung von Punktdéfekten auf der Basalebene entsteht [115]. Da in der Stapelfolge eine zusätzliche Ebene enthalten ist, handelt es sich bei diesem Stapelfehler um einen extrinsischen E-Typ Stapelfehler. Um die Stapelfolgen der genannten Stapelfehler von der hcp- auf die Wurtzitstruktur zu übertragen, muss die Stapelfolge der hcp-Struktur um die zweiatomige Basis der Metall- und Stickstoffbesetzung in der Wurtzitstruktur gemäß der Vorschrift AaBbAaBbAa usw. erweitert werden.

4 Transmissionselektronenmikroskopie (TEM)

Im Rahmen dieser Arbeit wurden die strukturellen Eigenschaften des in Kapitel 2 vorgestellten Materialsystems der Gruppe III-Nitride speziell für das Wachstum von AlGaN auf Saphir mittels transmissionselektronenmikroskopischer Methoden untersucht. Das folgende Kapitel soll deshalb die Grundlagen der hochauflösenden Transmissionselektronenmikroskopie genauer vermitteln. Neben dem Aufbau und der grundlegenden Funktionsweise eines TEMs geht dieses Kapitel in Grundzügen auf die Elektronenbeugung wie auch auf die möglichen Kontrastarten ein, die abhängig von den unterschiedlichen Aufnahmemodi sichtbar gemacht werden können. Das Verständnis über die Herkunft eines sichtbaren Kontrasts in einer transmissionselektronischen Aufnahme ist die Voraussetzung für die richtige Interpretation struktureller Eigenschaften des untersuchten Materialsystems. Um die Deutung atomar aufgelöster TEM-Aufnahmen speziell im Materialsystem der Gruppe III-Nitride zu vermitteln, werden auch die in den Experimenten verwendeten kristallinen Projektionen genauer diskutiert. Ebenfalls werden die Grundzüge der zur Herstellung von TEM-Proben notwendigen Präparationsmethoden erklärt, da durch die besonderen Anforderungen an TEM-Proben die Probenpräparation zentraler Bestandteil der Transmissionselektronenmikroskopie ist. Anschließend wird die im TEM verwendete Methode zur Aufnahme und Charakterisierung der Versetzungen genau erläutert. Da in dieser Arbeit unter anderem experimentelle Ergebnisse mit computergenerierten Bildsimulationen verglichen und verifiziert wurden, beschäftigt sich der letzte Teil dieses Kapitels mit den theoretischen Grundlagen der Bildsimulation. Soweit nicht weiter angegeben, sind die nachfolgenden Ausführungen im Detail in [116-118] nachzulesen.

4.1 Theoretische Grundlagen

4.1.1 Aufbau eines TEMs

Abbildung 4.1 zeigt schematisch den Aufbau eines TEMs mit einem vereinfachten Strahlengang. Die Elemente in einem TEM können im Wesentlichen in die Bereiche Strahlerzeugung, Strahlformung, Bilderzeugung, Nachvergrößerung und Detektion unterteilt werden. Im Gegensatz zur Lichtmikroskopie verwendet man zur Bilderzeugung einen hochenergetischen Elektronenstrahl und als elektronenoptische Elemente elektromagnetische Linsen, in denen die Elektronen über ein Magnetfeld abgelenkt werden. Das gesamte elektronenoptische System befindet sich im Hochvakuum, um Streuprozesse des Elektronenstrahls mit Gasmolekülen zu vermeiden.

In dieser Arbeit kamen für die Untersuchungen der Proben zwei verschiedene Mikroskope zum Einsatz. Das Mikroskop vom Typ CM-20 von Philips arbeitet bei einer Beschleunigungsspannung von 200kV und emittiert die Elektronen mittels einer thermischen Kathode, welche die Elektronen durch Anlegen eines Heizstroms an einem spitz zulaufendem LaB₆ Kristall erzeugt. Im Gegensatz dazu ist das Mikroskop vom Typ TITAN 80-300 der Firma FEI mit einer Feldemissionskathode (FEG, field emission gun) ausgestattet, in der die Elektronen durch Anlegen einer Extraktionsspannung von etwa 4kV aus der Spitze der Wolfram-Kathode mittels quantenmechanischem Tunneleffekt herausgezogen werden. Die Elektronen werden dann in einem mehrstufigen Anodensystem auf eine maximale Energie von 300keV beschleunigt. Der Vorteil bei der Verwendung von FEGs vor allem in der hochauflösenden Transmissionselektronenmikroskopie liegt in der deutlich verringerten Energiebreite der aus der Spitze heraustretenden Elektronen und in einer höheren lateralen Kohärenz, da im Gegensatz dazu die thermisch emittierten Elektronen einer Maxwellschen

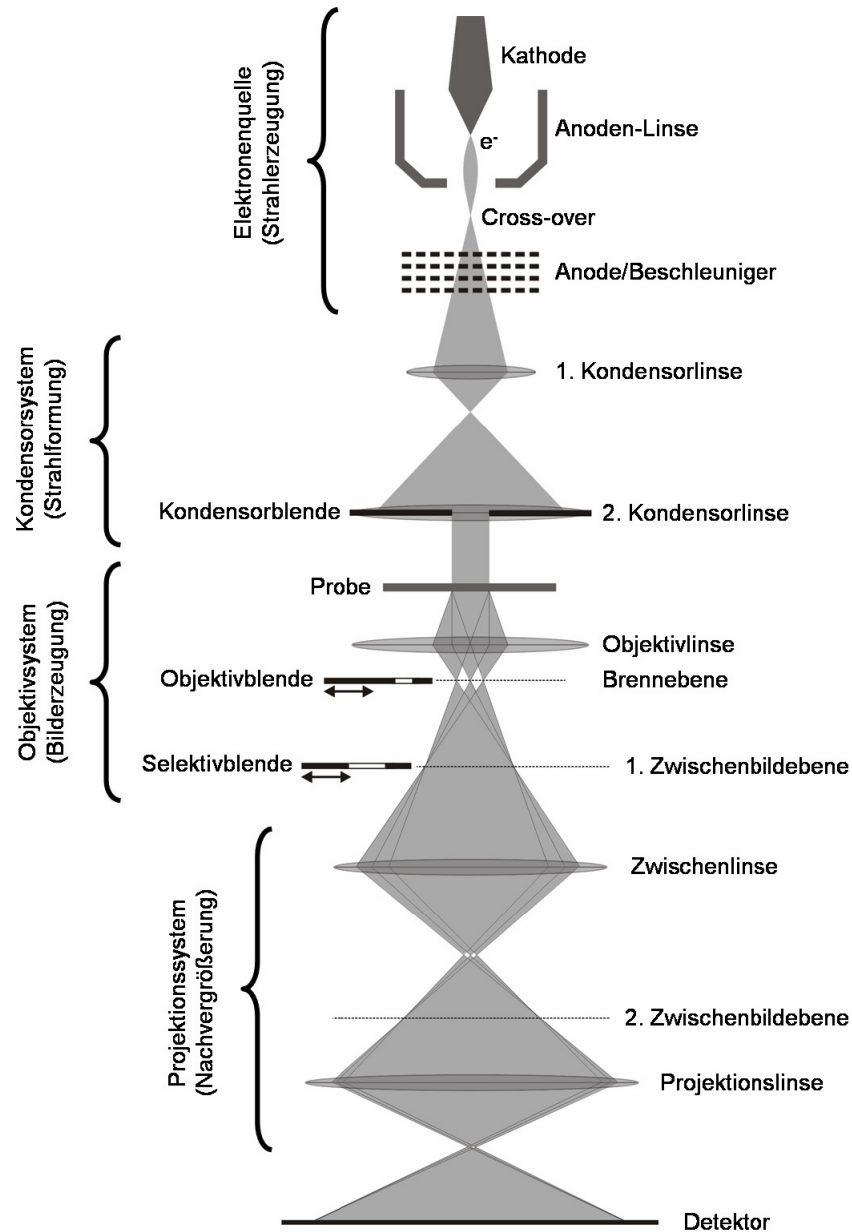


Abb. 4.1: Schematischer Aufbau eines Transmissionselektronenmikroskops mit vereinfachtem Strahlengang im konventionellen Bildmodus.

Geschwindigkeitsverteilung unterliegen. Die Beziehung zwischen dem Impuls p eines Teilchens und der Wellenlänge λ der Materiewelle lässt sich nach de Broglie angeben zu:

$$p = \frac{h}{\lambda} \quad (4.1)$$

Dabei bezeichnet h das Plancksche Wirkungsquantum. Mittels der relativistischen Energie-Impuls-Beziehung

$$E^2 - c^2 p^2 = E_0^2 \quad (4.2)$$

eines Teilchens mit dem Impuls p , der Gesamtenergie E , der Ruhenergie E_0 und c der Vakuumlichtgeschwindigkeit lässt sich die Wellenlänge λ der emittierten Elektronenwelle angeben zu:

$$\lambda = \frac{h}{\sqrt{2m_0eU \left(1 + \frac{eU}{2m_0c^2}\right)}} \quad (4.3)$$

Dabei bezeichnet m_0 die Ruhemasse des Elektrons, e die Elementarladung und U die Beschleunigungsspannung des Mikroskops. Damit erhält man für Elektronen mit einer Energie von 200keV eine Wellenlänge von 2.51pm und bei 300kV Beschleunigungsspannung eine Wellenlänge von 1.97pm. Das Auflösungsvermögen eines optischen Systems hängt über das Rayleigh-Kriterium direkt von der Wellenlänge ab. Dieser Zusammenhang ist gegeben durch:

$$r = 0.61 \frac{\lambda}{\sin \beta} \quad (4.4)$$

Hierbei ist r der Abstand zweier Objektpunkte, die vom optischen System gerade noch aufgelöst werden können, und β der halbe Öffnungswinkel der Objektivlinse. Dieses Kriterium erlaubt eine erste Abschätzung für das theoretisch mögliche Auflösungsvermögen eines TEMs, welches bei Wellenlängen im Pikometerbereich ebenfalls bei wenigen Pikometern liegen müsste. Tatsächlich liegt das Auflösungsvermögen eines TEMs mit bis zu 0.5Å für Topgeräte deutlich oberhalb des theoretisch erzielbaren Werts. Der Grund für die Verschlechterung des Auflösungsvermögens liegt vor allem in den nicht vernachlässigbaren Linsenfehlern des elektronenoptischen Systems. Die Zusammenhänge hierzu werden noch im Kapitel 4.1.5 zur hochauflösenden Elektronenmikroskopie im Detail erläutert.

Im weiteren Strahlenverlauf werden die Elektronen nun durch eine Anodenlinse (gun lens) in einem ersten Brennpunkt (cross-over) fokussiert. Dieser dient als virtuelle Elektronenquelle, den das nachfolgende Kondensorsystem als Gegenstand zur Strahlerzeugung verwendet. In diesem wird der Elektronenstrahl mittels zweier Kondensorlinsen und einer Kondensorblende geformt. Je nach Untersuchungsmethode kann durch eine Veränderung der Anregung der beiden Kondensorlinsen und Wahl verschiedener Blendenöffnungen die Strahlkonvergenz und -intensität eingestellt werden. In der konventionellen bildgebenden TEM verwendet man einen auf die Probe parallel einfallenden Elektronenstrahl, wie es auch im Strahlengang in Abbildung 4.1 dargestellt ist. Im Objektivsystem wechselwirken schließlich die Elektronen mit der Probe. Aus den abgebeugten ebenen Wellenfronten bildet die Objektivlinse in der Brennebene ein Beugungsbild, von dem mittels einer in dieser Ebene befindlichen Objektivblende einzelne Beugungsreflexe selektiert werden können, sodass nur noch Elektronen mit einem bestimmten Streuwinkel zum Bildaufbau beitragen. Trägt der transmittierte Zentralstrahl zur Abbildung bei, spricht man von einer Hellfeldabbildung (BF, bright field). Gelangt der Zentralstrahl nicht durch die Objektivblende, so handelt es sich um eine Dunkelfeldabbildung (DF, dark field). In der ersten Zwischenbildebene entsteht schließlich die erste bereits vergrößerte TEM Abbildung. Im weiteren Strahlenverlauf wird dieses Zwischenbild im Projektionssystem weiter vergrößert und trifft schließlich auf den Detektor, wo die TEM Aufnahme entweder direkt durch einen fluoreszierenden Schirm sichtbar gemacht oder mittels einer darunterliegenden CCD-Kamera digital aufgenommen werden kann. Neben der Möglichkeit durch entsprechende Veränderung des Anregungsstroms der Zwischenlinse und Projektionslinse unterschiedliche Vergrößerungen im TEM abzufahren, hat das Projektionssystem eine weitere Aufgabe. Die Anregung des

Projektionssysteme kann so verändert werden, dass dieses nicht mehr auf die erste Zwischenbildebene, sondern die Brennebene fokussiert. Das Mikroskop befindet sich dann nicht mehr im Bild- sondern im Beugungsmodus, und auf dem Schirm wird das in der Brennebene entstandene Beugungsbild sichtbar. Im Beugungsmodus kann dann mittels der Selektivblende, welche sich in der ersten Zwischenbildebene befindet, ein Probenbereich ausgewählt werden, von dem das Beugungsbild aufgenommen werden soll.

4.1.2 Elektronenbeugung

Im folgenden Kapitel soll das Verhalten eines Elektronenstrahls bei der Wechselwirkung mit einer kristallinen Probe und die damit zusammenhängende Entstehung des Beugungsbildes in der Brennebene näher erläutert werden. Um Elektronentransparenz zu erreichen, sind im Allgemeinen die für TEM Untersuchungen präparierten Proben mit einer Dicke im Nanometerbereich in Projektionsrichtung sehr dünn. Im Grenzfall dünner Proben ist die kinematische Beugungstheorie gültig, bei der näherungsweise nur elastisch kohärente Einfachstreuung berücksichtigt wird und eine Schwächung der Intensität des einfallenden Strahls beim Durchgang durch die Probe vernachlässigt werden kann. Verantwortlich für die Bildentstehung in einem TEM ist im Wesentlichen die elastische Coulombstreuung. Die auf die Probe einfallenden Elektronen werden in der Nähe eines Atoms in einem effektiven Kernpotential gestreut, welches angegeben werden kann zu:

$$V_{\text{eff}}(r) = -\frac{1}{4\pi\epsilon_0} \cdot \frac{Z_{\text{eff}}e}{r} \quad \text{mit } Z_{\text{eff}} < Z \quad (4.5)$$

Dabei bezeichnet ϵ_0 die Dielektrizitätskonstante, e die Elementarladung und r den Abstand des Elektrons vom Kern. Mit Z_{eff} wird eine effektive Kernladungszahl angegeben, mit welcher die Abschirmung des Kernpotentials durch die Hüllelektronen berücksichtigt wird. Im Wellenbild einer einfallenden ebenen Elektronenwelle, beschrieben durch den Wellenvektor $\mathbf{k}_0$, werden durch Wechselwirkung mit den Atomen in der Probe gemäß des Huygensschen Prinzips an den atomaren Streuzentren sekundäre, sich kugelförmig ausbreitende Wellen angeregt. Die Flächen konstanter Phase dieser sphärischen Wellen bilden im Gegensatz zu ebenen Wellen Kugeloberflächen, die sich in alle Raumrichtungen ausbreiten. Diese sekundär angeregten Wellen überlagern sich und interferieren miteinander. In der Fraunhoferschen Fernfeldnäherung ist der Abstand zweier Atome, an denen die Beugung stattfindet, viel kleiner als der Abstand vom Streuzentrum zum Beobachtungsort. Deshalb kann die kugelförmig emittierte Wellenfront in eine bestimmte Richtung als ebene Teilwelle mit dem gestreuten Wellenvektor $\mathbf{k}$ aufgefasst werden, die unter dem Streuwinkel θ abgelenkt wurde. Da es sich hierbei um einen elastischen Streuprozess handelt und das Elektron nur die Richtung ändert nicht aber seine Energie, ist der Betrag des einfallenden Wellenvektors $\mathbf{k}_0$ gleich dem Betrag des gestreuten Wellenvektors $\mathbf{k}$ und es gilt: $|\mathbf{k}_0| = 1/\lambda = |\mathbf{k}|$. An der Unterseite der Probe entstehen so abgebeugte ebene Wellenfronten mit dem Wellenvektor $\mathbf{k}$ in alle Raumrichtungen, die im Unendlichen in einer bestimmten Ausbreitungsrichtung dann konstruktiv interferieren, wenn sämtliche an den Streuzentren abgebeugten Teilwellen in dieser Richtung konstruktiv interferieren. Im Unendlichen entsteht so ein Beugungsbild mit Orten hoher Intensität, also Beugungsreflexen als Folge konstruktiver Interferenz. Die Objektivlinse in einem Mikroskop projiziert das Fraunhofersche Fernfeldbeugungsbild ins Endliche, nämlich in die Brennebene, da bei der Propagation der abgebeugten ebenen Wellenfronten durch die Objektivlinse sämtliche parallel zueinander verlaufenden abgebeugten Teilwellen in einem Punkt auf der Brennebene fokussiert werden und interferieren. Aus dieser Betrachtung und unter Einführung des reziproken Gitters ergibt sich die Lauebedingung für konstruktive Interferenz:

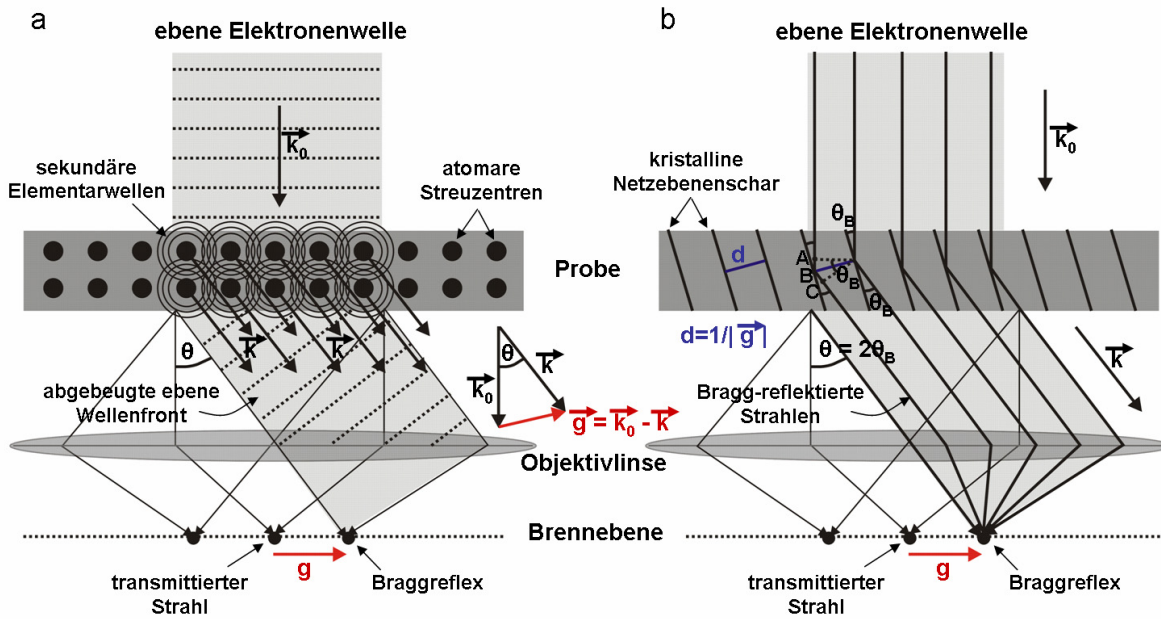


Abb. 4.2: Schematische Darstellung zur Entstehung des Beugungsbildes in der Brennebene der Objektivlinse als Folge der Interferenz sekundär angeregter Elementarwellen (a) und als Braggreflexion an einer Netzebenenschar mit dem Netzebenenabstand d (b).

$$\vec{k}_0 - \vec{k} = \vec{g} \quad (4.6)$$

Konstruktive Interferenz ist also dann zu erwarten, wenn der Änderungsvektor des Streuprozesses ein reziproker Gittervektor $\vec{g}$ ist, wobei gilt:

$$\vec{g} = h\vec{a}_1^* + k\vec{a}_2^* + l\vec{a}_3^* \quad (4.7)$$

Die Vektoren $\vec{a}_1^*$, $\vec{a}_2^*$ und $\vec{a}_3^*$ sind hierbei die Basisvektoren des reziproken Gitters und h , k , l die Millerschen Indizes. Schematisch ist die Entstehung eines Beugungsreflexes in der Brennebene der Objektivlinse durch Beugung einer einfallenden ebenen Elektronenwelle an einem periodischen Kristall in der Betrachtung der Interferenz sekundär angeregter kugelförmiger Elementarwellen in Abbildung 4.2a dargestellt. Eine von dieser Betrachtungsweise abweichende Interpretation der Beugung führt zu einer anderen, aber äquivalenten Bedingung für konstruktive Interferenz als in Gleichung (4.6) angegeben. Dabei wird der periodische Kristall in planparallele kristalline Netzebenen mit dem Abstand d einer Netzebenenschar unterteilt, wobei eine Netzebenenschar eindeutig durch die Millerschen Indizes h , k , l identifiziert wird. Die konstruktive Interferenz wird nun betrachtet als eine Reflektion des einfallenden Strahls an einer Netzebenenschar mit dem Abstand d . Der Zusammenhang ist in Abbildung 4.2b dargestellt. Konstruktive Interferenz zwischen den zwei reflektierten Teilstrahlen ist dann zu erwarten, wenn der Gangunterschied $\overline{ABC}$ ein ganzzahlig Vielfaches der Wellenlänge λ ist. Daraus ergibt sich die Braggbedingung zu:

$$2d \sin \theta_B = n\lambda \quad (4.8)$$

Hierbei ist d der Netzebenenabstand der Netzebenenschar und θ_B der Braggwinkel, unter welchem die Reflektion stattfindet. Die Lauebedingung lässt sich in die Braggbedingung überführen, sodass bei Erfüllung der Gleichung (4.6) die konstruktive Interferenz betrachtet werden kann als Braggreflexion an einer Netzebenenschar mit dem Netzebenenabstand d ,

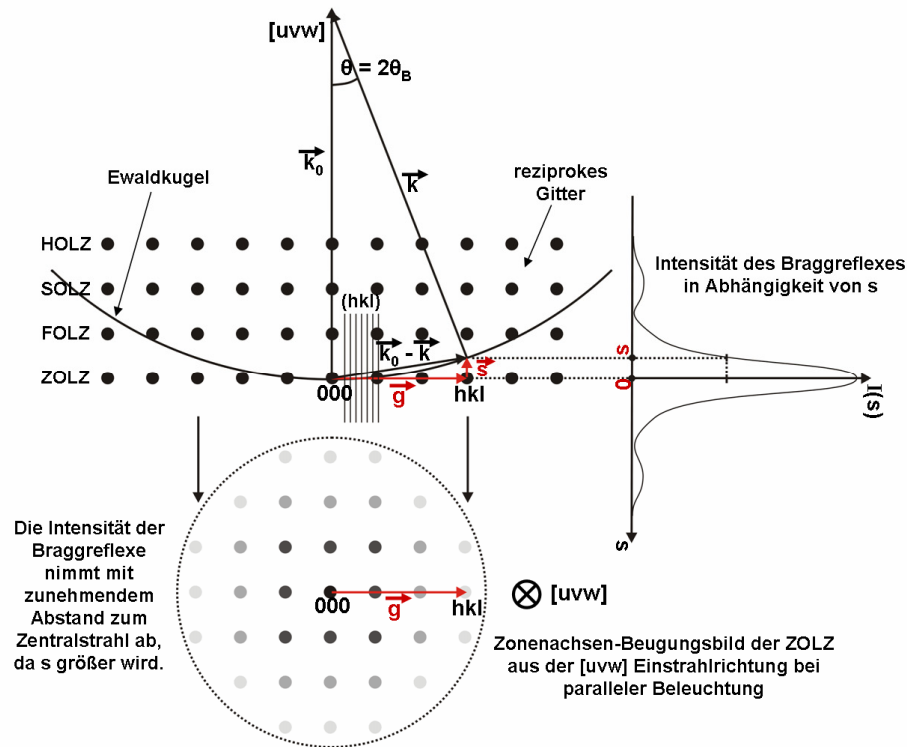


Abb. 4.3: Zusammenhang zwischen einer konventionellen Beugungsaufnahme im TEM bei paralleler Einstrahlung und dem reziproken Gitter in der Ewaldkonstruktion.

wobei der $\vec{g}$ -Vektor als Normalenvektor auf der Netzebenen-schar diese im Kristall durch die Millerschen Indizes h, k, l eindeutig bestimmt. Zwischen dem Netzebenenabstand und dem reziproken Gittervektor $\vec{g}$ gilt der Zusammenhang:

$$d = \frac{1}{|\vec{g}|} \quad (4.9)$$

Abbildung 4.3 zeigt den Zusammenhang zwischen dem in der Brennebene eines TEMs entstehenden Beugungsbild und dem reziproken Gitter in der sogenannten Ewald-Konstruktion bei exakter Orientierung der Probe in einer bestimmten, niedrig-indizierten $[uvw]$ Einstrahlrichtung, d.h. einer Projektionsrichtung mit hoher Symmetrie des Kristalls. Man spricht auch von einer Beugungsaufnahme in einer bestimmten $[uvw]$ Zonenachse (zone axis pattern). Der auf die Probe parallel einfallende Strahl $\vec{k}_0$ steht dabei senkrecht auf der sogenannten zero-order Laue zone (ZOLZ), welche im Reziproken eine Ebene bildet, die sämtliche auf $\vec{k}_0$ senkrecht stehende $\vec{g}$ -Vektoren und den Ursprung des reziproken Gitters (Zentralstrahl) enthält. Zur ZOLZ parallele Ebenen mit reziproken Gitterpunkten bilden höhere Laue-zonen (FOLZ, first-order Laue zone; SOLZ, second-order Laue zone; HOLZ, higher-order Laue zone). Gemäß Gleichung (4.6) ist nur dann konstruktive Interferenz zu erwarten, wenn die Oberfläche der Ewaldkugel einen reziproken Gitterpunkt exakt schneidet. Bis auf den Ursprung des reziproken Gitters (der immer sichtbare transmittierte Strahl) ist unter der gegebenen Einstrahlbedingung die Lauebedingung aber für keinen Reflex aus der ZOLZ erfüllt, da, wie in Abbildung 4.3 ersichtlich ist, die Ewaldkugel tangential an der ZOLZ anliegt. In einer konventionellen, unter paralleler Einstrahlung aufgenommenen TEM-Beugungsaufnahme einer exakt orientierten Probe ist allerdings eine Vielzahl an Braggreflexen sichtbar, die alle aus der ZOLZ stammen. Dies bedeutet, dass auch dann konstruktive Interferenz zu erwarten ist, wenn die Laue- bzw. Braggbedingung nicht exakt

erfüllt ist. Dies hängt damit zusammen, dass die Lauebedingung von einer Beugung an punktförmigen Streuzentren ausgeht. Tatsächlich ist ein Kristall allerdings ein atomares Gitter, in dem eine einfallende Elektronenwelle an einem periodischen Kristallpotential mit endlicher Ausdehnung gestreut wird. Dies führt dazu, dass im Beugungsbild auch dann Orte hoher Intensität sichtbar sind, wenn der Strahl nicht exakt unter dem jeweiligen Braggwinkel auf eine Netzebene einfällt. Gleichung (4.6) muss also um den sogenannten Anregungsfehler $\mathbf{s}$, einen Vektor im Reziproken, erweitert werden:

$$\bar{\mathbf{k}}_0 - \bar{\mathbf{k}} = \bar{\mathbf{g}} + \bar{\mathbf{s}} \quad (4.10)$$

Für $\mathbf{s} = \mathbf{0}$ ist die Braggbedingung für diesen Reflex exakt erfüllt. Ist $\mathbf{s} \neq \mathbf{0}$, so reduziert sich die Intensität des Braggreflexes entsprechend dem Anregungsfehler $\mathbf{s}$. Dieser Zusammenhang ist ebenfalls in Abbildung 4.3 in der Intensitätsverteilung eines Braggreflexes in Abhängigkeit vom Anregungsfehler $\mathbf{s}$ qualitativ angegeben. Da die Ewaldkugel im Verhältnis zum reziproken Gitter auf Grund der hohen Beschleunigungsspannung des TEMs sehr groß ist ($|\mathbf{k}_0| \approx 150 \cdot |\mathbf{g}|$ bei 300kV für die zum Zentralstrahl nächsten Reflexe), sind die Anregungsfehler der Reflexe aus der ZOLZ entsprechend klein. So werden in einem parallelen Beugungsbild Reflexe angeregt, die alle aus der ZOLZ stammen. In diesem Zusammenhang wird auch der Bezug zwischen den hohen Beschleunigungsspannungen (also großem $|\mathbf{k}_0|$) und dem atomaren Auflösungsvermögen eines TEMs sichtbar. Sämtliche angeregten Braggreflexe entstehen im Fall einer exakt orientierten Probe durch Reflexion des einfallenden Strahls an Netzebenen, welche zu $|\mathbf{k}_0|$ parallel sind. Diese repräsentieren kristalline Periodizitäten in Projektionsrichtung, welche die einfallende ebene Elektronenwelle als Information aufnimmt und so in einer TEM Aufnahme sichtbar gemacht werden. Da diese Periodizitäten mit $d = 1/|\mathbf{g}|$ gegeben sind, bedeutet die Anregung eines Braggreflexes mit großem $\mathbf{g}$ -Vektor in der ZOLZ einen entsprechend kleinen atomaren Abstand in der hochauflösenden TEM Aufnahme.

4.1.3 Kikuchilinen

Neben den Braggreflexen können in einem transmissionselektronischen Beugungsbild einer kristallinen Probe weitere Kontrasteffekte auftreten, die als Linien im Beugungsbild sichtbar sind. Diese sogenannten Kikuchilinen [119] werden im Beugungsbild bei einer Probendicke sichtbar, die typischerweise bei 100nm und darüber liegt. Da die Kikuchilinen bezüglich der in dieser Arbeit verwendeten Aufnahmetechnik zur Versetzungsanalyse von großer Relevanz sind, soll deren Entstehung und Bedeutung im Folgenden in Grundzügen erläutert werden.

Der Entstehung der Kikuchilinen gehen inelastische diffuse Vielfachstreuprozesse der einfallenden Elektronen mit dem Kristall voraus, die vor allem den Elektron-Phonon Wechselwirkungen zuzuschreiben sind (thermische Streuung). Bei ausreichender Probendicke sind genügend diffus gestreute Elektronen vorhanden, die in alle Raumrichtungen durch den Kristall propagieren. Der im meV-Bereich liegende Energieverlust der inelastisch diffus gestreuten Elektronen ist dabei vernachlässigbar gering, sodass sich die Wellenlänge der diffus gestreuten Elektronen gegenüber der des einfallenden Strahls in guter Näherung nicht ändert. Im Anschluss können diese Elektronen an sämtlichen kristallinen Netzebenen elastisch braggreflektiert werden. Nun treffen die diffus gestreuten Elektronen aber nicht aus einer Richtung unter dem Braggwinkel auf eine hkl-Netzebene, sondern aus sämtlichen Richtungen unter Erfüllung der Braggbedingung. Man erhält dann für die gebeugten Elektronen keinen definierten Strahl mehr, sondern Kegel mit einem Öffnungswinkel von $90^\circ - \theta_B$. Diese Kegel werden als sogenannte Kosselkegel bezeichnet. Die Gesamtheit der Wellenvektoren der diffus gestreuten Elektronen, die bezüglich einer hkl-Netzebene die Braggbedingung erfüllen, bildet die Mantelfläche des Kosselkegels. Der Zusammenhang ist in

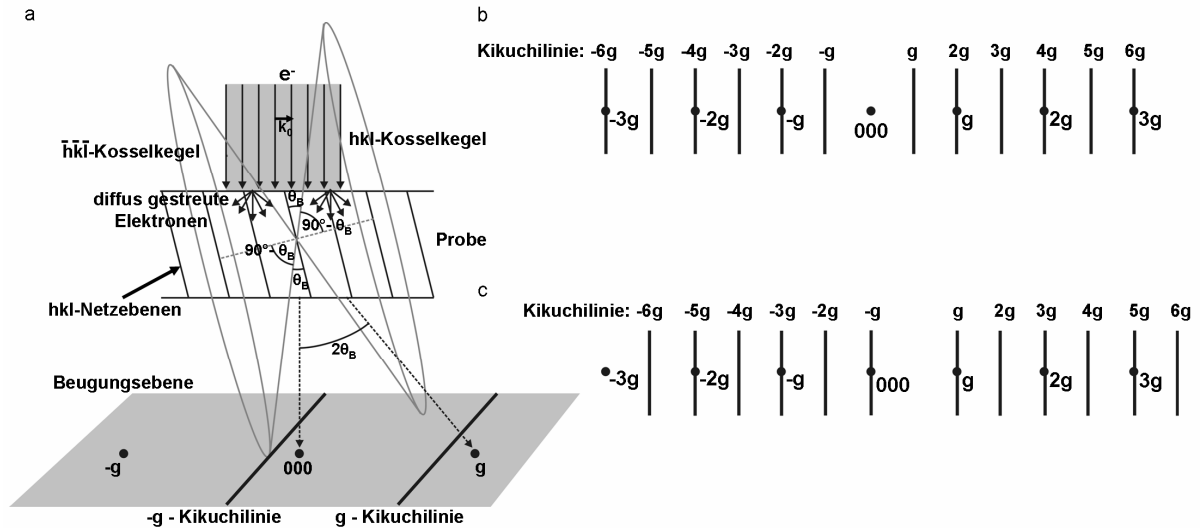


Abb. 4.4: Schematische Darstellung zur Entstehung der Kikuchilinen im Beugungsbild (a) und deren Lage im Beugungsbild relativ zu den Braggreflexen bei senkrechter Orientierung von $\mathbf{k}_0$ zur systematischen $\mathbf{g}$ -Reflexlinie (b) und nach Kippung der Probe in die exakte Anregungsbedingung bezüglich des ersten $\mathbf{g}$ -Reflexes.

Abbildung 4.4a dargestellt. Der Schnitt eines Kesselkegels mit der Beugungsebene bildet die Kikuchilinie. Da sich die Kikuchilinie aus einem Schnitt einer Ebene mit einem Kegel ergibt, sind die Linien hyperbelförmig. Da die Braggwinkel im TEM allerdings im mrad-Bereich liegen, erscheinen die Kikuchilinen als Geraden im Beugungsbild aufgrund der sehr großen Öffnungswinkel $90^\circ - \theta_B$ der Kesselkegel. Bezüglich einer hkl -Netzebenen-schar gibt es immer ein Kikuchilinenpaar aus zwei parallelen Kikuchilinen. Eine Linie kann dabei dem Braggwinkel θ_B , die andere dem Winkel $-\theta_B$ zugeordnet werden. Entsprechend ist eine Linie die $\mathbf{g}$ -Kikuchilinie, die andere die $\bar{\mathbf{g}}$ -Kikuchilinie. Ist eine TEM-Probe exakt bezüglich einer Zonenachse orientiert, verläuft jede $\mathbf{g}$ -Kikuchilinie aus der ZOLZ mittelsenkrecht durch den $\mathbf{g}$ -Vektor des entsprechenden ZOLZ-Braggreflexes im Beugungsbild, da dann der Winkel zwischen Kegelmantel und transmittiertem Strahl genau dem Braggwinkel θ_B entspricht, während der Streuwinkel zwischen transmittiertem und braggreflektiertem Strahl des $\mathbf{g}$ -Reflexes mit $2\theta_B$ gegeben ist. Schematisch ist dieser Zusammenhang in Abbildung 4.4b für eine systematische $\mathbf{g}$ -Reflexlinie aus der ZOLZ dargestellt für den Fall, dass der einfallende Wellenvektor $\mathbf{k}_0$ entsprechend einer exakten Zonenorientierung senkrecht zur systematischen $\mathbf{g}$ -Reflexlinie orientiert ist.

Die wesentliche Eigenschaft der Kikuchilinen zeichnet sich nun dadurch aus, dass sie sich bei einer Verkippung der Probe, also bei einer Änderung der Probenorientierung, sehr sensitiv relativ zu den Braggreflexen im Beugungsbild verschieben, da die Kesselkegel an den Kristall fixiert sind und sich bei einer Verkippung der Probe relativ zur Beugungsebene mit dem Kristall mitbewegen. Unabhängig von der Orientierung des Kristalls zum einfallenden Strahl gibt es also bezüglich einer beliebigen hkl -Netzebene immer diffus gestreute Elektronen, die unter dem Braggwinkel auf diese Netzebene treffen und ein Kesselkegelpaar mit dem Öffnungswinkel $90^\circ - \theta_B$ bilden. Die Verschiebung der Kikuchilinen relativ zum Beugungsbild in Abhängigkeit von der Änderung der Probenorientierung kann genutzt werden, um die Probe mit hoher Genauigkeit in eine bestimmte Zone zu orientieren bzw. den Anregungsfehler $\mathbf{s}$ bezüglich eines $\mathbf{g}$ -Reflexes exakt einzustellen. Schematisch ist dieser Zusammenhang in Abbildung 4.4c dargestellt. Sie zeigt die Lage der ZOLZ-Kikuchilinen zu den Braggreflexen einer systematischen $\mathbf{g}$ -Reflexlinie im Beugungsbild bei exakter Erfüllung der Braggbedingung bezüglich des ersten $\mathbf{g}$ -Reflexes durch entsprechende Kippung der Probe aus der in Abbildung 4.4b zuvor beschriebenen senkrechten Orientierung des einfallenden Wellenvektors $\mathbf{k}_0$ zur systematischen $\mathbf{g}$ -Reflexlinie. Im Vergleich zu Abbildung 4.4b haben

sich die Kikuchilinen entsprechend der Probenkipfung nun relativ zu den Reflexen verschoben, wobei die exakte Erfüllung der Braggbedingung bezüglich des ersten g -Reflexes dadurch gegeben ist, dass die g -Kikuchilinie den g -Reflex schneidet, während die $\bar{g}$ -Kikuchilinie genau durch den transmittierten Strahl verläuft. Sowohl der Winkel zwischen transmittiertem und braggreflektiertem Strahl des g -Reflexes als auch der Winkel zwischen transmittiertem Strahl und Kegelmantel des g -Kosselkegels beträgt nun $2\theta_B$. Hingegen ist der Winkel zwischen transmittiertem Strahl und Kegelmantel des $\bar{g}$ -Kosselkegels 0° . Somit ist der Abstand einer g -Kikuchilinie zu ihrem g -Reflex ein Maß für den Anregungsfehler s . Im umgekehrten Fall einer Verkipfung des einfallenden Strahls relativ zur Probe würden sich im Beugungsbild die Positionen der Braggreflexe relativ zu den Kikuchilinen verschieben. Für die im Rahmen dieser Arbeit verwendete Aufnahmetechnik zur Versetzungsanalyse sind, wie noch im Kapitel 4.4 genau erläutert wird, spezielle Kippbedingungen notwendig, deren Erfüllung mit Hilfe der Kikuchilinen möglich wird.

4.1.4 Kontrastentstehung im TEM

Während sich das vorherige Kapitel mit der Entstehung des Beugungsbildes in der Brennebene befasst hat, behandelt dieser Abschnitt die Grundlagen der Entstehung einer transmissionselektronenmikroskopischen Aufnahme in der Bildebene der Objektivlinse. Ursache für die Bildentstehung sind verschiedene Kontraste, die von den lokalen strukturellen Eigenschaften einer durchleuchteten Probe abhängen. Dabei bezeichnet allgemein der Begriff des Kontrasts C einen Intensitätsunterschied $I_1 - I_2$ zwischen zwei verschiedenen Probenbereichen, gegeben zu:

$$C = \frac{I_1 - I_2}{I_1} \quad (4.11)$$

Nach der Definition in [116] unterscheidet man in der Mikroskopie zwischen Amplituden- und Phasenkontrast. Der Begriff dieser beiden Kontrastarten leitet sich direkt vom jeweiligen Anteil der bei Transmission an der Unterseite der Probe entstehenden Austrittswelle ab, welcher auf dem Schirm zum Kontrast beiträgt. So erhält eine einfallende ebene Elektronenwelle bei Propagation durch die Probe an der Unterseite eine von der Struktur der Probe abhängige Amplituden- und Phasenmodulation, welche auf dem Schirm als Intensitätsinformation sichtbar gemacht werden kann. Beim Amplitudenkontrast unterscheidet man weiterhin zwischen dem sogenannten Massendicken- und dem Beugungskontrast.

Der Massendickenkontrast ist ein reiner Streukontrast, welcher durch eine lokal unterschiedliche Streuleistung der Probe aufgrund unterschiedlicher Materialzusammensetzung entsteht und im reinen Teilchenbild der Elektronen erklärt werden kann. Somit ist für die Entstehung des Kontrasts keine Strahlkohärenz notwendig und die Probe muss nicht notwendigerweise kristallin sein. So eignet sich dieser Kontrastart auch zur Abbildung amorpher Strukturen in organischen Proben. Die Streuleistung einer Probe kann lokal variieren und somit zu einem Amplitudenkontrast führen, wenn sich bestimmte Probenbereiche aus Elementen mit anderen Kernladungszahlen Z als die Umgebung zusammensetzen. Gemäß dem atomaren Streufaktor sind bei der Streuung von Elektronen an Atomen mit größerem Z aufgrund der stärkeren Coulombwechselwirkung auch größere Streuwinkel wahrscheinlicher, was im Vergleich zu Probenbereichen aus Atomen mit kleinerem Z und damit kleineren Streuwinkeln zu einem Kontrast führt. Eine andere Ursache für einen Streukontrast in einer kristallinen Probe wäre eine zwar gleichbleibende Elementzusammensetzung aber das Auftreten lokal unterschiedlicher kristalliner Phasen, welche sich in ihren Massendichten und damit im Streuquerschnitt unterscheiden können. Ähnlich verhält es sich bei einer Probe mit homogener Materialzusammensetzung, aber

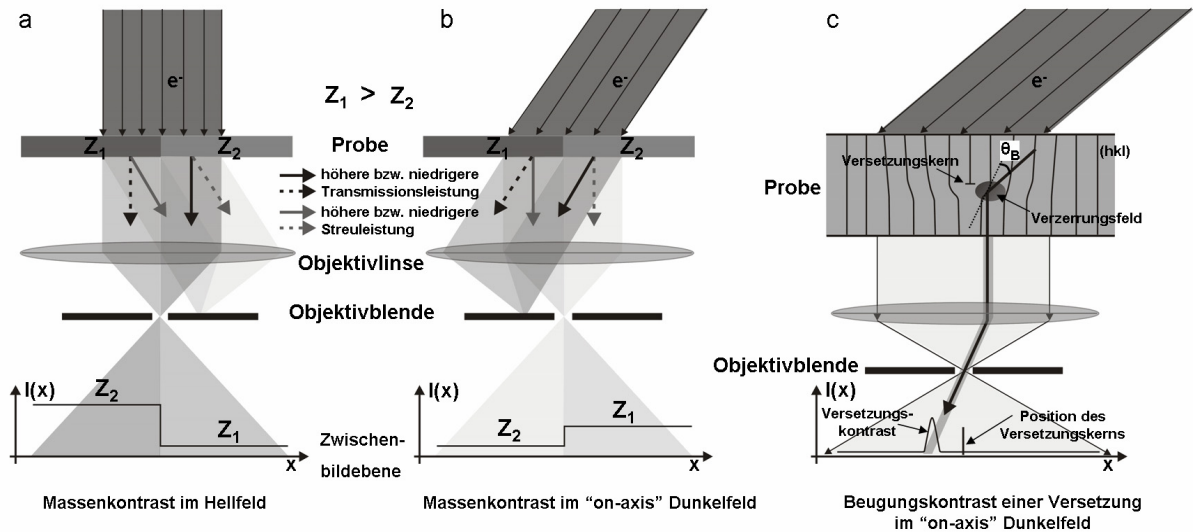


Abb. 4.5: Entstehung des Massenkонтраsts im Hellfeld (a) und im „on-axis“ Dunkelfeld (b) bei Durchleuchtung einer Probe mit zwei Materialbereichen aus Elementen unterschiedlicher Kernladungszahlen Z_1 und Z_2 . Abbildung (c) zeigt schematisch die Entstehung eines Beugungskонтраsts im Dunkelfeld am Beispiel einer Versetzung in einem kristallinen Festkörper, welcher durch eine sich lokal ändernde Beugungsbedingung in der Nähe des Versetzungskerns hervorgerufen wird. Das durch elastische Deformation erzeugte Verzerrungsfeld biegt die (hkl) Netzebene lokal in die exakte Braggbedingung zurück, was zu lokal hohen Intensitäten führt. Ebenfalls dargestellt ist jeweils der schematische Intensitätsverlauf auf dem Schirm.

variierender Probendicke. Dickere Probenbereiche weisen eine höhere Streuleistung auf als sehr dünne Probenbereiche, da in Letzteren die Wechselwirkungswahrscheinlichkeit der Elektronen mit den Atomen verringert ist. Zur Verbesserung des Amplitudenkontrasts verwendet man für gewöhnlich als Kontrastblende eine Objekтивбленде, um im reinen Hellfeld nur den transmittierten Strahl und im Dunkelfeld einen abgebeugten Strahl zur Bilderzeugung auszuwählen. In Abbildung 4.5a und b ist schematisch die Entstehung des Massenkонтраsts jeweils im Hell- und Dunkelfeld am Beispiel einer Probe mit zwei Materialbereichen aus Elementen unterschiedlicher Kernladungszahlen Z_1 und Z_2 dargestellt. Um im Dunkelfeld mittels der Objekтивбленде nur Elektronen mit einem bestimmten Streuwinkel auszuwählen, wird für gewöhnlich nicht bei einem parallel zur optischen Achse einfallenden Strahl die Objekтивбленде verschoben („off-axis“ Dunkelfeld), sondern bei einer Position der Objekтивбленде in der optischen Achse der einfallende Strahl verkippt („on-axis“ Dunkelfeld). Dies hat den Vorteil, dass der im Dunkelfeld verwendete abgebeugte Strahl parallel zur optischen Achse verläuft und sich nicht von dieser entfernt, wodurch Aberrationen der Objekтивбленде minimiert werden. Die schematischen Intensitätsverläufe in Abbildung 4.5a und b zeigen eine Kontrastinversion zwischen Hell- und Dunkelfeld.

Der Beugungskонтраст ist ein Interferenzkontrast aus elastisch kohärent gestreuten Elektronen. Dieser entsteht durch lokal veränderte Beugungsbedingungen in kristallinen Proben im Allgemeinen bedingt durch Probenbereiche, welche aus kristallographischer Sicht vom perfekten Kristall abweichen. Ursache hierfür können kristalline Defekte wie Versetzungen oder Stapelfehler sein, die ein lokales Verzerrungsfeld in den Kristall induzieren, wodurch bezüglich eines Bragg-reflektierten Strahls die Beugungsbedingung lokal verändert wird. Dies führt in der Interferenz zu Intensitätsunterschieden und damit zu Kontrasten. Ursache eines Beugungskонтраsts können auch Probenverbiegungen sein, die zu lokal unterschiedlichen Orientierungen des einfallenden Strahls relativ zur Probe führen. Im Dunkelfeld können auch unterschiedlich orientierte Kristallite innerhalb einer Probe Beugungskontraste verursachen. Vorliegend wurde der Beugungskонтраст genutzt, um Versetzungen im AlGaN bezüglich ihrer Propagation und ihres Typs zu analysieren. Deshalb ist in Abbildung 4.5c vereinfacht die Entstehung des Beugungskонтраsts am Beispiel einer Versetzung dargestellt. Der

Versetzungskern selbst als plastische Deformation erzeugt im Kristall entlang seiner Versetzungslinie ein elastisches Verzerrungsfeld, welches zu einer Verbiegung der (hkl) Netzebenen führt. Für eine Netzebenenschar, deren $\mathbf{g}$ -Reflex zur Dunkelfeldabbildung verwendet wird, ist dies in Abbildung 4.5c gezeigt. Ist der einfallende Strahl zur Probe so orientiert, dass dieser weit von der exakten Braggbedingung entfernt ist, so wird die Braggbedingung durch die Verbiegung der Netzebenenschar exakt nur in der Nähe des Versetzungskerns erfüllt. Durch diese lokale konstruktive Interferenz erscheinen so bei geeigneten Kippbedingungen Versetzungen als scharfe, helle Linien, während defektfreie Bereiche aufgrund des großen Anregungsfehlers dunkel erscheinen. Um im Dunkelfeld einen optimalen Versetzungscontrast mit einem Auflösungsvermögen von ca. 3nm zu erhalten, bedient man sich der sogenannten „weak-beam dark field“ (WBDF) Methode, bei welcher es sich um eine Dunkelfeldaufnahmetechnik unter speziellen Kippbedingungen für Probe und einfallenden Strahl handelt [120, 121]. Die genauen Aufnahmebedingungen und die Analysemöglichkeiten, die sich aus der WBDF Methode ergeben, werden noch im Detail in Kapitel 4.4 erläutert.

Der Phasenkontrast wird in der hochauflösenden Transmissionselektronenmikroskopie (HRTEM, high resolution TEM) zur direkten Abbildung des Kristallgitters eines kristallinen Objekts verwendet und erlaubt die Bestimmung von Atompositionen und Netzebenenabständen mit einer Auflösung im Ångström- und Sub-Ångströmbereich ab einer Vergrößerung von ca. 200000x. Im Gegensatz zu den konventionellen Hell- und Dunkelfeldmethoden werden hier mit einer Objektiveblende großen Durchmessers der transmittierte Strahl und mehrere gebeugte Strahlen ausgewählt oder auf die Verwendung der Objektiveblende gänzlich verzichtet. Durch Überlagerung transmittierter Strahlen mit gebeugten, phasenverschobenen Teilwellen entsteht in der Bildebene ein komplexes Interferenzbild, welches atomare Informationen enthält. Fourieroptisch kann der Intensitätsverlauf $I(\mathbf{r})$ für die Abbildung eines perfekten Kristalls dargestellt werden als Fouriersumme ebener Wellen mit den Ortsfrequenzen $\mathbf{g}_n$ und ihren Fourierkoeffizienten I_n , gegeben durch [122]:

$$I(\vec{r}) = \sum_n I_n \exp(2\pi i \vec{g}_n \vec{r}) \quad (4.12)$$

Die Summanden entsprechen den gebeugten ebenen Wellen, welche in der Brennebene der Objektiveblende konstruktiv zu $\mathbf{g}$ -Reflexen interferieren (siehe Kapitel 4.1.2). Das Beugungsbild gibt also als Fourierspektrum die angeregten Ortsfrequenzen an, mit denen die ebenen Wellen in der Fouriersumme beschrieben werden. Jede einzelne ebene Welle als Summand in der Fouriersumme ist dabei periodisch mit $d_n = 1/|\mathbf{g}_n|$ (siehe Gleichung (4.9)) und erzeugt in der HRTEM Aufnahme ein Streifenmuster mit dem Abstand d_n , welches der Abbildung einer ganz bestimmten (hkl) Netzebenenschar entspricht. Der Kontrast in einer HRTEM Aufnahme entsteht also durch die Überlagerung mehrerer Sätze von Streifenmustern, welche periodisch mit d_n und jeweils in Richtung ihrer $\mathbf{g}_n$ -Vektoren orientiert sind. Bei einer HRTEM Aufnahme handelt es sich also in erster Linie um eine Netzebenenabbildung, wobei sich diese Netzebenen bei einem Transfer entsprechend hoher Ortsfrequenzen (d.h. hoher Streuwinkel) durch die Objektiveblende zu atomaren Säulen in Projektionsrichtung auflösen lassen. Der Zusammenhang zwischen den angeregten Ortsfrequenzen in einem Beugungsbild und der HRTEM Aufnahme ist in Abbildung 4.6 dargestellt. Da es sich, wie bereits erwähnt, bei dem hochauflösenden Kontrast in einer HRTEM Aufnahme um einen Phasenkontrast handelt und die Phaseninformation durch die Möglichkeit, nur Intensitäten zu messen, grundsätzlich verloren geht, die Phase also nicht direkt gemessen werden kann, ist die Theorie zur Entstehung des hochauflösenden Phasenkontrasts auf dem Schirm im TEM bei Propagation der Austrittswelle durch das Linsensystem von hoher Komplexität. Im folgenden Kapitel wird

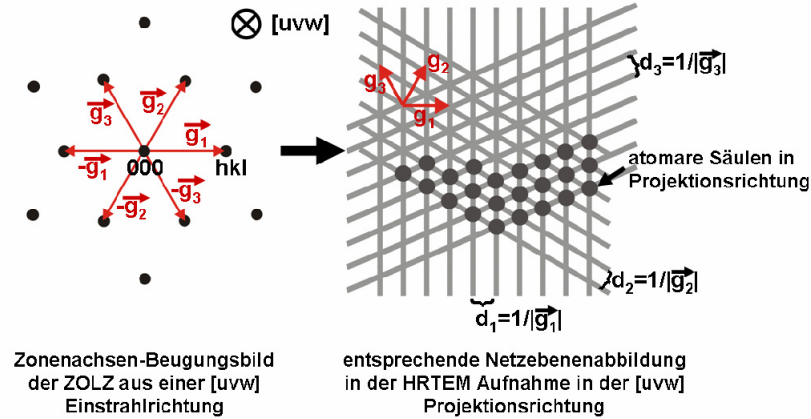


Abb. 4.6: Zusammenhang zwischen dem Beugungsbild bei einer kristallinen [uvw] Projektionsrichtung hoher Symmetrie und der hochauflösenden TEM Aufnahme. Bei Anregung entsprechend hoher Ortsfrequenzen lösen sich die Netzebenen zu atomaren Säulen in Projektionsrichtung auf.

deshalb auf die Entstehung des hochauflösenden Phasenkontrasts und den Einfluss der elektronenoptischen Komponenten im Detail eingegangen.

4.1.5 Hochauflösende Transmissionselektronenmikroskopie (HRTEM)

Unter idealen Aufnahmebedingungen ist der parallel einfallende Elektronenstrahl in der konventionellen Transmissionselektronenmikroskopie eine ebene Welle, gegeben durch:

$$\Psi_{\text{ein}}(\vec{r}) = A_0 \exp(i\vec{k}\vec{r}) \quad (4.13)$$

Bei der Propagation der ebenen Welle durch den Kristall nimmt diese Information von der Probe auf, und zwar in Form einer vom Ort (x,y) in der Projektionsebene abhängigen Amplituden- und Phasenmodulation $A(x,y)$ bzw. $\varphi(x,y)$. Damit ergibt sich die Austrittswelle Ψ_{aus} an der Unterseite der Probe zu:

$$\Psi_{\text{aus}}(x,y) = \Psi_{\text{ein}} A(x,y) \exp(i\varphi(x,y)) = \Psi_{\text{ein}} O(x,y) \quad (4.14)$$

Dabei ist $O(x,y)$ die sogenannte Objektfunktion. Fourieroptisch wird Ψ_{aus} bei der Propagation von der Unterseite der Probe über die Objektivlinse zur Brennebene fouriertransformiert (Beugungsbild), sodass sich die Welle in der Brennebene Ψ_{brenn} in einem idealen Mikroskop ohne Aberrationen ergibt zu:

$$\Psi_{\text{brenn}}(k_x, k_y) = \text{FT}[\Psi_{\text{aus}}(x,y)] \quad (4.15)$$

Dabei bezeichnen k_x und k_y die Komponenten der Ortsfrequenzen im Fourierraum. In der weiteren Propagation der Welle von der Brennebene zur Bildebene findet eine Rücktransformation statt, sodass in der Bildebene wiederum die ursprüngliche Austrittswelle als direkte Abbildung der Probe entsteht:

$$\Psi_{\text{schirm}}(x,y) = \text{FT}^{-1}[\Psi_{\text{brenn}}(k_x, k_y)] = \text{FT}^{-1}\{\text{FT}[\Psi_{\text{aus}}(x,y)]\} = \Psi_{\text{aus}}(x,y) \quad (4.16)$$

Da allerdings nur Intensitäten gemessen werden können, ergibt sich die Intensitätsverteilung auf dem Schirm zu:

$$I_{\text{schirm}}(x, y) = |\Psi_{\text{schirm}}(x, y)|^2 = |\Psi_{\text{aus}}(x, y)|^2 = |A_0 \cdot A(x, y)|^2 \quad (4.17)$$

Dies bedeutet, dass die ursprüngliche Phasenmodulation $\varphi(x, y)$ der Austrittswelle verloren geht. Die Amplitudenmodulation $A(x, y)$ der Austrittswelle enthält Informationen über die in Kapitel 4.1.4 bereits beschriebenen Streu- und Beugungskontraste. Die in der Transmissionselektronenmikroskopie für HRTEM Abbildungen verwendeten Proben müssen zur Wahrung der Elektronentransparenz und zur Vermeidung von Vielfachstreuprozessen extrem dünn sein. Idealerweise liegen die Probendicken im Bereich von wenigen Nanometern. Diese Voraussetzung macht die Proben zu reinen Phasenobjekten, in denen die Amplitudenmodulation vernachlässigt werden kann ($A(x, y)=1$). Die Austrittswelle ergibt sich dann zu:

$$\Psi_{\text{aus}}(x, y) = \Psi_{\text{ein}} \exp(i\varphi(x, y)) \quad (4.18)$$

Dies hat zur Folge, dass im TEM bei Verwendung dünner Proben zunächst kein Kontrast entsteht:

$$I_{\text{schirm}}(x, y) = |\Psi_{\text{aus}}(x, y)|^2 = |\Psi_{\text{ein}} \exp(i\varphi(x, y))|^2 = |A_0|^2 = \text{const.} \quad (4.19)$$

Da die phasenverschiebende Wirkung dünner TEM Proben sehr gering ist ($|\varphi(x, y)|^2 \ll 1$), lässt sich die Austrittswelle Ψ_{aus} näherungsweise durch eine Reihenentwicklung und Vernachlässigung höherer Ordnungen in $\varphi(x, y)$ angeben zu:

$$\Psi_{\text{aus}}(x, y) = \Psi_{\text{ein}} \exp(i\varphi(x, y)) \approx \Psi_{\text{ein}} (1 + i\varphi(x, y)) = \Psi_{\text{ein}} + i\Psi_{\text{ein}}\varphi(x, y) \quad (4.20)$$

In diesem Zusammenhang spricht man auch von einem schwachen Phasenobjekt (WPO, weak phase object) und die Austrittswelle Ψ_{aus} geht aus der Summe der Eingangswelle Ψ_{ein} und einer imaginären Streuwelle $i\Psi_{\text{ein}}\varphi(x, y)$ hervor. Unter idealen Abbildungsbedingungen ergibt sich die Intensität auf dem Schirm für ein schwaches Phasenobjekt zu:

$$I_{\text{schirm}}(x, y) = |\Psi_{\text{aus}}(x, y)|^2 = |\Psi_{\text{ein}} + i\Psi_{\text{ein}}\varphi(x, y)|^2 = A_0^2 (1 + \varphi^2(x, y)) \approx A_0^2 = \text{const.} \quad (4.21)$$

Es entsteht also kein Kontrast. Wird allerdings die Streuwelle $i\Psi_{\text{ein}}\varphi(x, y)$ um $\pm\pi/2$ phasenverschoben, so folgt aus Gleichung (4.20):

$$\Psi_{\text{aus}}(x, y) = \Psi_{\text{ein}} \pm \Psi_{\text{ein}}\varphi(x, y) \quad (4.22)$$

Hierdurch wird der Kontrast maximiert und es gilt für die Intensität auf dem Schirm:

$$\begin{aligned} I_{\text{schirm}}(x, y) &= |\Psi_{\text{aus}}(x, y)|^2 = |\Psi_{\text{ein}} \pm \Psi_{\text{ein}}\varphi(x, y)|^2 = A_0^2 (1 \pm 2\varphi(x, y) + \varphi^2(x, y)) \\ &\approx A_0^2 (1 \pm 2\varphi(x, y)) \end{aligned} \quad (4.23)$$

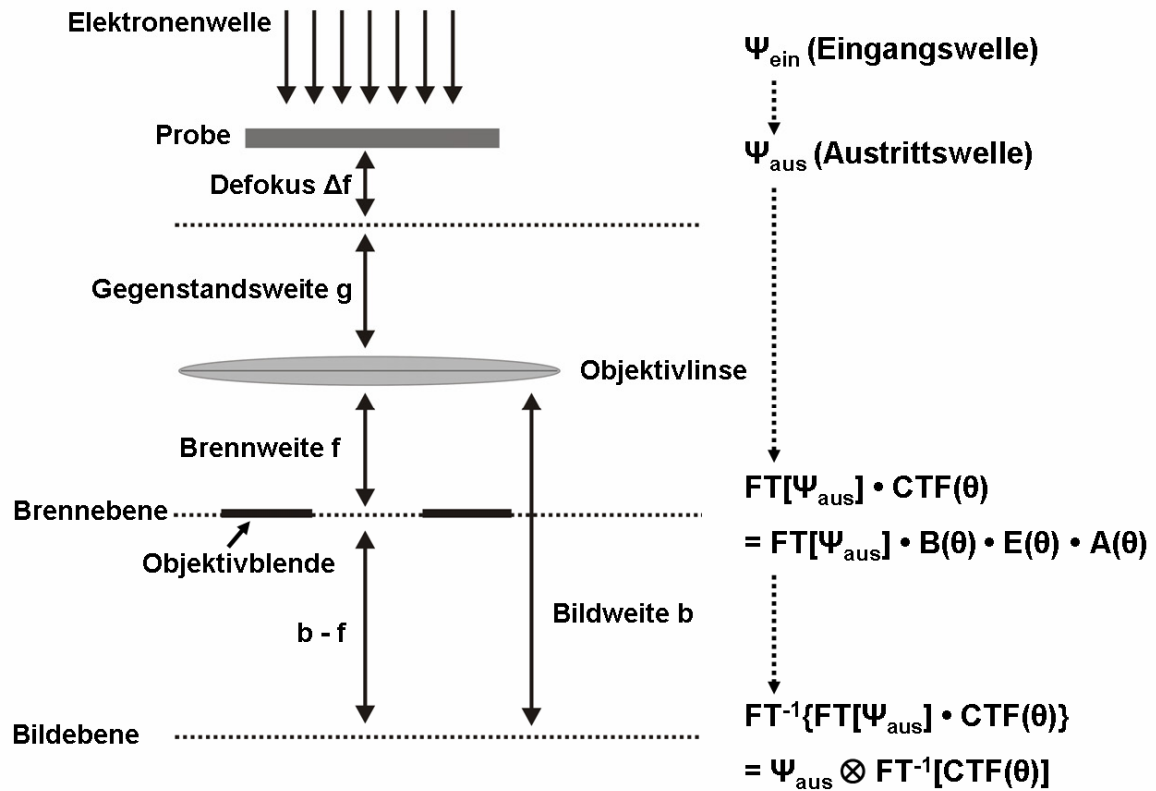


Abb. 4.7: Fourieroptische Darstellung der Bildentstehung in einem realen Mikroskop. Die Einflüsse der elektronenoptischen Komponenten auf die Propagation der Elektronenwelle werden über die Kontrasttransferfunktion $CTF(\theta)$ in der Aberrationsfunktion (aberration function) $B(\theta)$, der Hüllfunktion (envelope function) $E(\theta)$ und der Blendenfunktion (aperture function) $A(\theta)$ berücksichtigt.

Um im TEM bei einem schwachen Phasenobjekt atomare Information zu erhalten, muss also die ursprüngliche Phasenmodulation der Austrittswelle durch eine zusätzliche Phasenverschiebung der gestreuten Welle als Amplitudenmodulation in die Schirmwelle überführt werden, damit $\varphi(x,y)$ als Intensität gemessen werden kann. Im TEM wird der zusätzliche Phasenschub durch die sphärische Aberration der Objektivlinse in Verbindung mit einem Defokussieren der Probe durch Veränderung des Objektivlinsenstroms erreicht. Die bislang ausgeführte fourieroptische Betrachtung für die Propagation der Austrittswelle über die Objektivlinse zum Schirm galt für ein ideales Mikroskop. Da die Abweichungen des optischen Systems von dem eines idealen Mikroskops die hochauflösende Phasenkontrastabbildung entscheidend beeinflussen, wird im Folgenden die Bildentstehung in einem realen Mikroskop unter Berücksichtigung der elektronenoptischen Komponenten genauer betrachtet.

Abbildung 4.7 zeigt fourieroptisch die Bildentstehung in einem realen Mikroskop. Die im Idealfall ebene Elektronenwelle (Gleichung (4.13)) erfährt bei der Propagation durch die Probe eine Amplituden- und Phasenmodulation (Gleichung (4.14)). Bei exakter Fokussierung der Probe ($\Delta f=0$) und einer idealen Objektivlinse entsteht in der Brennebene die Fouriertransformierte $FT[\Psi_{\text{aus}}]$ der Austrittswelle (Gleichung (4.15)). Die Abweichungen des elektronenoptischen Systems von dem eines idealen Mikroskops werden nun über die sogenannte, vom Streuwinkel θ abhängige, Kontrastübertragungsfunktion $CTF(\theta)$ (contrast transfer function) in der Brennebene berücksichtigt. Durch Multiplikation der idealen Wellenfunktion $FT[\Psi_{\text{aus}}]$ mit der Kontrastübertragungsfunktion $CTF(\theta)$ ergibt sich die Wellenfunktion in der Brennebene unter realen Bedingungen zu:

$$\Psi_{\text{brenn}} = \text{FT}[\Psi_{\text{aus}}] \cdot \text{CTF}(\theta) \quad (4.24)$$

Wie in Abbildung 4.7 dargestellt, entspricht die Propagation der Elektronenwelle Ψ_{brenn} von der Brennebene über die Strecke b-f zur Bildebene fourieroptisch einer inversen Fouriertransformation, woraus sich die Wellenfunktion Ψ_{Schirm} in der Bildebene ergibt zu:

$$\Psi_{\text{Schirm}} = \text{FT}^{-1} \{ \text{FT}[\Psi_{\text{aus}}] \cdot \text{CTF}(\theta) \} = \Psi_{\text{aus}} \otimes \text{FT}^{-1} [\text{CTF}(\theta)] \quad (4.25)$$

Dabei stellt $\otimes$ den Faltungsoperator für die Faltung der Funktionen Ψ_{aus} und $\text{FT}^{-1}[\text{CTF}(\theta)]$ dar. Daraus folgt für die Intensitätsverteilung auf dem Schirm:

$$I_{\text{Schirm}}(x, y) = \left| \Psi_{\text{aus}} \otimes \text{FT}^{-1} [\text{CTF}(\theta)] \right|^2 \quad (4.26)$$

Die Kontrastübertragungsfunktion $\text{CTF}(\theta)$ lässt sich allgemein durch die Multiplikation einzelner Funktionen darstellen, welche jeweils die unterschiedlichen Einflüsse der elektronenoptischen Komponenten auf die Propagation der Elektronenwelle beschreiben:

$$\text{CTF}(\theta) = B(\theta) \cdot E(\theta) \cdot A(\theta) \quad (4.27)$$

$B(\theta)$ bezeichnet dabei die sogenannte Aberrationsfunktion (aberration function), $E(\theta)$ die Hüllfunktion (envelope function) und $A(\theta)$ die Blendenfunktion (aperture function), deren Beiträge nachfolgend im Detail erläutert werden.

Die sphärische Aberration der Objektivlinse beschreibt die Abhängigkeit der Brennweite f vom Einfallswinkel θ der Elektronen bezüglich der optischen Achse und verursacht eine zusätzliche Phasenverschiebung φ_{Cs} für die gebeugten Teilwellen, welche neben der sphärischen Aberrationskonstanten C_s auch vom Streuwinkel θ abhängig ist. Nach [118] ist φ_{Cs} gegeben durch:

$$\varphi_{\text{Cs}}(\theta) = \frac{2\pi}{\lambda} \cdot \frac{1}{4} \cdot C_s \cdot \theta^4 \quad (4.28)$$

Eine weitere Phasenverschiebung $\varphi_{\Delta f}$ erfährt die Elektronenwelle durch den Defokus Δf , wobei $\varphi_{\Delta f}$ nach [118] gegeben ist zu:

$$\varphi_{\Delta f}(\theta) = \frac{2\pi}{\lambda} \cdot \frac{1}{2} \cdot \Delta f \cdot \theta^2 \quad (4.29)$$

Der Einfluss der sphärischen Aberration und des Fokus' wird in der Aberrationsfunktion $B(\theta)$ zusammengefasst:

$$B(\theta) = \exp(i\varphi_{\text{Cs}}(\theta)) \cdot \exp(i\varphi_{\Delta f}(\theta)) = \exp(i\gamma(\theta)) \quad \text{mit} \quad \gamma(\theta) = \varphi_{\text{Cs}}(\theta) + \varphi_{\Delta f}(\theta) \quad (4.30)$$

Eine weitere Abweichung des elektronenoptischen Systems von dem eines idealen Mikroskops resultiert aus der chromatischen Aberration der Objektivlinse, welche die Abhängigkeit der Brennweite f der Linse von der Wellenlänge λ der Elektronen beschreibt. Abgesehen von inelastischen Streuprozessen in der Probe, die hier keine Berücksichtigung finden, werden chromatische Aberrationen durch Schwankungen der

Beschleunigungsspannung U , des Linsenstroms I und durch die von der Energie E_0 abweichende Energieverteilung der Elektronenquelle hervorgerufen. Der Einfluss der chromatischen Aberration auf die Propagation der Elektronenwelle in Abhängigkeit vom Streuwinkel θ ist nach [118] durch die Hüllfunktion $E_c(\theta)$ gegeben zu:

$$E_c(\theta) = \exp\left(-\frac{1}{2}\pi^2\delta^2\frac{\theta^4}{\lambda^2}\right) \quad \text{mit} \quad \delta = C_c \sqrt{\frac{\sigma_U^2}{U^2} + \frac{4\sigma_I^2}{I^2} + \frac{\sigma_E^2}{E_0^2}} \quad (4.31)$$

Dabei ist δ die sogenannte Fokusverschmierung (focus spread) und C_c die Konstante der chromatischen Aberration. σ_U , σ_I und σ_E bezeichnen die jeweiligen Standardabweichungen von U , I und E_0 unter der Voraussetzung, dass die Schwankungen normalverteilt sind.

Ein weiterer Einfluss auf die Bildentstehung im TEM ist durch die von einem idealen Mikroskop abweichende Beleuchtung der Probe gegeben, weswegen die Intensitätsverteilung der Eingangswelle Ψ_{ein} nicht der einer ebenen Welle entspricht. In der Realität weist der einfallende Strahl einen Beleuchtungshalbwinkel α im Bereich von 1 bis 2 mrad auf, der sowohl von der Emissionscharakteristik der Elektronenquelle (Winkelverteilung der austretenden Elektronen) als auch dem Kondensorsystem beeinflusst wird und die räumliche Kohärenz der Elektronenquelle begrenzt. Nach [123] lässt sich der Einfluss der Probenbeleuchtung auf die Propagation der Elektronenwelle durch die Hüllfunktion $E_s(\theta)$ angeben zu:

$$E_s(\theta) = \exp\left(-\frac{\pi^2\alpha^2}{\lambda^2}(\Delta f \cdot \theta + C_s \cdot \theta^3)^2\right) \quad (4.32)$$

Werden keine weiteren Einflussfaktoren im optischen System berücksichtigt, ergibt sich die in Gleichung (4.27) eingeführte Hüllfunktion zu:

$$E(\theta) = E_c(\theta) \cdot E_s(\theta) = \exp(-\eta(\theta)) \quad (4.33)$$

Mit der in Gleichung (4.27) angegebenen Blendenfunktion $A(\theta)$ wird berücksichtigt, dass nicht beliebig hohe Ortsfrequenzen (Streuwinkel) aufgrund der endlichen Ausdehnung der Objektivlinse zum Bildaufbau beitragen können. Dieser Einfluss kann durch die Öffnung der Objektivblende beschrieben werden, wobei gilt:

$$A(\theta) = \begin{cases} 1 & \text{für } \theta \text{ innerhalb der Blende} \\ 0 & \text{für } \theta \text{ außerhalb der Blende} \end{cases} \quad (4.34)$$

Aus Gleichung (4.27) in Verbindung mit den Gleichungen (4.30) und (4.33) folgt nun für die Kontrastübertragungsfunktion $CTF(\theta)$:

$$CTF(\theta) = \exp(i\gamma(\theta)) \cdot \exp(-\eta(\theta)) \quad (4.35)$$

Wie Gleichung (4.35) zeigt, ist die Kontrastübertragungsfunktion die Multiplikation eines phasenmodulierenden Teils $\exp(i\gamma(\theta))$ mit einem reellwertigen Dämpfungsterm $\exp(-\eta(\theta))$. Die komplexe $CTF(\theta)$ kann in Real- und Imaginärteil zerlegt werden:

$$CTF(\theta) = \exp(-\eta(\theta)) \cdot (\cos \gamma(\theta) + i \sin \gamma(\theta)) \quad (4.36)$$

Der Realteil der Kontrastübertragungsfunktion beschreibt die zusätzliche Modulation der Amplitude $A(x,y)$ der Austrittswelle bei Propagation über die Objektivlinse, welche durch Streu- und Beugungskontraste verursacht wird. Der Realteil wird maximal bei einem Streuwinkel θ von 0. Der Imaginärteil $\text{Im}(\text{CTF})$ wird maximal, wenn $\gamma(\theta) = \pm \pi/2$ ist. Mit $\text{Im}(\text{CTF})$ wird die ursprüngliche Phasenmodulation $\phi(x,y)$ der Austrittswelle als Amplitudenmodulation in die Schirmwelle (Bildebene) übertragen, was im Fall eines reinen Phasenobjekts mit schwacher Phasenmodulation bei sehr dünnen Proben gezeigt werden kann:

Unter der Näherung eines reinen Phasenobjekts mit schwacher Phasenmodulation (WPO) und der vereinfachten Annahme einer cosinusförmigen Phasenmodulation $\phi(x)$ der Austrittswelle lässt sich in einer Dimension die Austrittswelle Ψ_{aus} angeben zu:

$$\Psi_{\text{aus}}(x) = \exp(i\phi(x)) = \exp(ia \cos(2\pi qx)) \quad (4.37)$$

Wie in Gleichung (4.37) ersichtlich ist, ist die Phasenmodulation $\phi(x)$ der Austrittswelle periodisch mit $1/q$, wobei q eine bestimmte Ortsfrequenz in der Fouriertransformation darstellt (siehe Gleichung (4.12)). Im Fall eines WPO ist $|a|^2 \ll 1$, wodurch sich Gleichung (4.37) nähern lässt zu:

$$\Psi_{\text{aus}}(x) \approx 1 + ia \cos(2\pi qx) \quad (4.38)$$

Gemäß Gleichung (4.24) erhält man durch die Fouriertransformation $\text{FT}[\Psi_{\text{aus}}]$ und Multiplikation mit der Kontrastübertragungsfunktion die Elektronenwelle Ψ_{brenn} in der Brennebene. Zur besseren Übersicht wird hierbei nur der phasenmodulierende Anteil $\exp(i\gamma(\theta))$ der Kontrastübertragungsfunktion berücksichtigt. Des Weiteren lässt sich die Abhängigkeit der Kontrastübertragungsfunktion vom Streuwinkel θ ersetzen durch eine vom Streuwinkel θ und der Wellenlänge λ abhängige Ortsfrequenz k_x , wobei für kleine Streuwinkel gilt:

$$\tan \theta \approx \theta \approx \frac{|\vec{k}_0 - \vec{k}|}{|\vec{k}_0|} \stackrel{\text{Dim.}}{=} \frac{|k_x|}{|\vec{k}_0|} = |k_x| \lambda \quad (4.39)$$

Daraus ergibt sich die Elektronenwelle Ψ_{brenn} in der Brennebene zu:

$$\begin{aligned} \Psi_{\text{brenn}}(k_x) &= \text{FT}[\Psi_{\text{aus}}(x)] \cdot \exp(i\gamma(k_x)) \\ &= 2\pi \left\{ \delta(k_x) + \frac{ia}{2} [\delta(k_x - 2\pi q) + \delta(k_x + 2\pi q)] \right\} \cdot \exp(i\gamma(k_x)) \end{aligned} \quad (4.40)$$

Wie in Gleichung (4.40) ersichtlich ist, besteht $\text{FT}[\Psi_{\text{aus}}(x)]$ aus drei Deltafunktionen, mit Peaks bei $k_x = 0$, $k_x = 2\pi q$ und $k_x = -2\pi q$ im Fourierraum. Gemäß Gleichung (4.25) ergibt sich unter Berücksichtigung der Relation $\gamma(q) = \gamma(-q)$ (siehe Gleichungen (4.28) und (4.29)) die Welle Ψ_{schirm} in der Bildebene durch eine inverse Fouriertransformation von Ψ_{brenn} zu:

$$\Psi_{\text{schirm}}(x) = \text{FT}^{-1}[\Psi_{\text{brenn}}(k_x)] = 1 + ia \cos \gamma(2\pi q) \cos 2\pi qx - a \sin \gamma(2\pi q) \cos 2\pi qx \quad (4.41)$$

	CM-20	TITAN 80-300
Beschleunigungsspannung U	200 kV	300 kV
Elektronenwellenlänge λ	2.51 pm	1.97 pm
sphärische Aberrationskonstante C_s	1.2 mm	0.02 mm (korrigiert)
Scherzer-Defokus $\Delta f_{\text{Scherzer}}$	-63.4 nm	-7.2 nm
Punkt-zu-Punkt Auflösung	1.9 Å	0.8 Å

Tab. 4.1: Abbildungsparameter der verwendeten Mikroskope Philips CM-20 und FEI TITAN 80-300.

Nach Gleichung (4.26) ergibt sich dann die Intensitätsverteilung in der Bildebene zu:

$$I_{\text{schirm}}(x) = \left| \Psi_{\text{schirm}}(x) \right|^2 = 1 - 2 \cdot a \cos 2\pi q x \cdot \sin \gamma(2\pi q) + O(a^2) \quad (4.42)$$

Hierbei können in der Näherung eines schwachen Phasenobjekts ($|a|^2 \ll 1$) Terme, in welchen a quadratisch enthalten ist, vernachlässigt werden. Gleichung (4.42) zeigt nun, dass die ursprüngliche Phasenmodulation $\phi(x) = a \cos 2\pi q x$ der Austrittswelle linear in der Intensitätsinformation in der Bildebene enthalten ist. Wie bereits erwähnt wurde und nun ersichtlich ist, wird $\phi(x)$ allerdings zusätzlich über den (ungedämpften) Imaginärteil $\text{Im}(\text{CTF}) = \sin \gamma(q)$ der Kontrastübertragungsfunktion moduliert. Ist für einen bestimmten Defokus Δf und für einen bestimmten Wert C_s der sphärischen Aberrationskonstanten $\sin \gamma(q) = 0$, so wird die kristalline Gitterperiodizität $1/q$ als ursprüngliche Phasenmodulation $\phi(x)$ der Austrittswelle nicht als Amplitudenmodulation in die Schirmwelle übertragen. Für ein WPO mit beliebigen Ortsfrequenzen gibt $\text{Im}(\text{CTF})$ den Beitrag jeder Ortsfrequenz (also Gitterperiodizität) zur finalen Aufnahme in der Bildebene an. Dabei ist ersichtlich, dass der Kontrasttransfer einer bestimmten Ortsfrequenz q als ursprüngliche Phasenmodulation $\phi(x)$ in die Schirmwelle optimal wird, wenn $\sin \gamma(q) = \pm 1$ ist. Dann ergibt sich nach Gleichung (4.42) in Verbindung mit Gleichung (4.11) ein maximaler Kontrast von $4a$. Dies ist gleichbedeutend mit einer von Δf und C_s abhängigen zusätzlichen Phasenverschiebung $\gamma(q) = \pm \pi/2$ der gebeugten Teilwelle bei Propagation durch die Objektlinse.

Die Objektlinse wirkt also als Phasenplatte und ermöglicht durch eine zusätzliche Phasenverschiebung der gebeugten Teilwellen eine Messung der Phasenmodulation $\phi(x, y)$ in der Bildebene (siehe auch Gleichungen (4.22) und (4.23)). Bei einer zusätzlichen Phasenverschiebung der gebeugten Teilwelle um $-\pi/2$ interferiert diese mit dem transmittierten Strahl destruktiv, sodass die atomaren Säulen in einer HRTEM Aufnahme dunkel erscheinen (positiver Phasenkontrast), während bei einer zusätzlichen Phasenverschiebung der gebeugten Teilwelle um $+\pi/2$ aufgrund konstruktiver Interferenz die Atomsäulen hell erscheinen (negativer Phasenkontrast). Optimaler Kontrasttransfer für alle Ortsfrequenzen würde sich ergeben, wenn sämtliche gebeugten Teilwellen eine zusätzliche Phasenverschiebung von $-\pi/2$ erfahren würden. Wie aus den Gleichungen (4.28) und (4.29) ersichtlich ist, hängt die zusätzliche Phasenverschiebung bei gegebenem Δf und C_s im Mikroskop allerdings vom Streuwinkel θ bzw. über Gleichung (4.39) von der Ortsfrequenz q ab. Damit eine hochauflösende Phasenkontrastaufnahme direkt interpretierbar ist, muss im Mikroskop durch Regelung des Defokus Δf (Objektivlinsenstrom) bei gegebenem C_s -Wert des Mikroskops der Imaginärteil der Kontrastübertragungsfunktion $\text{Im}(\text{CTF}) = \sin \gamma(q)$ so eingestellt werden, dass sich ein maximales Passband ergibt, welches sich über große Bereiche von q durch einen Wert nahe -1 für $\text{Im}(\text{CTF})$ auszeichnet. In diesem sogenannten Scherzer-Defokus $\Delta f_{\text{Scherzer}}$ werden über einen großen Bereich von q die Ortsfrequenzen optimal ohne Kontrastinversion in die Intensität der Schirmwelle übertragen. Nach [124] ist $\Delta f_{\text{Scherzer}}$ gegeben zu:

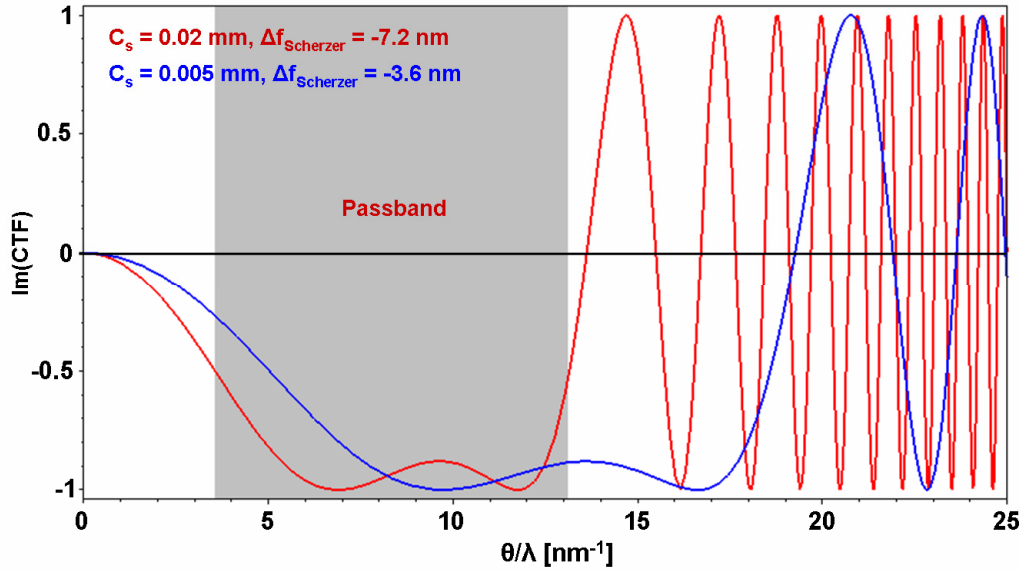


Abb. 4.8: Verlauf des ungedämpften Imaginärteils $\text{Im}(\text{CTF})$ im Scherzer-Defokus für zwei verschiedene C_s -Werte im TITAN 80-300 in Abhängigkeit der Ortsfrequenz θ/λ . Der erste Nulldurchgang von $\text{Im}(\text{CTF})$ definiert das maximale Punkt-zu-Punkt Auflösungsvermögen des Mikroskops.

$$\Delta f_{\text{Scherzer}} = -\sqrt{\frac{4}{3}} C_s \lambda \quad (4.43)$$

Es sei erwähnt, dass Gleichung (4.43) nur eine Näherungslösung für große C_s -Werte im mm-Bereich darstellt. In einem aberrationskorrigierten System kann $C_s = 0$ mm oder nahe null eingestellt werden. Hinsichtlich des Kontrasttransfers müssen dann Aberrationen höherer Ordnungen berücksichtigt werden. Für eine detailliertere Ausführung hierzu wird auf die Publikationen von Lentzen et al. und Meyer et al. verwiesen [125-127].

Im Folgenden werden nun die theoretischen Erkenntnisse auf die in dieser Arbeit verwendeten Transmissionselektronenmikroskope Philips CM-20 und FEI TITAN 80-300 angewendet. In Tabelle 4.1 sind die wichtigsten Abbildungsparameter der beiden Mikroskope zusammengefasst. Das TITAN 80-300 ist mit einem C_s -Korrektor ausgestattet, welcher die sphärische Aberration der Objektivlinse korrigieren kann [128]. Die Werte für die sphärische Aberrationskonstante C_s liegen dabei im Bereich zwischen $5\mu\text{m}$ und $20\mu\text{m}$. In Abbildung 4.8 sind gemäß Gleichung (4.36) zwei Verläufe für den ungedämpften Imaginärteil $\text{Im}(\text{CTF})$ der Kontrastübertragungsfunktion in Abhängigkeit von θ/λ für das TITAN 80-300 für verschiedene C_s -Werte im Scherzer-Defokus dargestellt. Der erste Nulldurchgang von $\text{Im}(\text{CTF})$ legt dabei die maximal mögliche Punktauflösung des Mikroskops fest. Bei einem C_s -Wert von 0.02 mm ergibt sich eine Punkt-zu-Punkt Auflösung von etwa $0.8 \text{ \AA}$, was einer Ortsfrequenz von 12.5 nm^{-1} entspricht. Des Weiteren ist klar zu erkennen, dass sich bei einer Verringerung des C_s -Werts ($C_s = 0.005$ mm) das Auflösungsvermögen des Mikroskops verbessert, da der erste Nulldurchgang zu höheren Ortsfrequenzen verschoben wird.

4.1.6 Bestimmung von Verspannungsfeldern in HRTEM Abbildungen mittels geometrischer Phasenanalyse (GPA)

Die geometrische Phasenanalyse (GPA) bietet die Möglichkeit, aus einer atomar aufgelösten HRTEM Aufnahme durch Identifizierung lokaler Abweichungen der Gitterperiodizitäten von denen eines ungestörten Referenzbereichs an jedem Punkt der HRTEM Abbildung Veränderungen in den Netzebenenabständen und Verspannungszustände im Kristall zu ermitteln. Da die Ursache für lokale Variationen der Netzebenenabstände im Kristall Veränderungen in der chemischen Zusammensetzung des Materials sein können, ist es mittels

der GPA möglich, die in einer HRTEM Abbildung vorhandenen Variationen in der strukturellen Zusammensetzung des Materials zu identifizieren. Die Methode der GPA basiert dabei auf der Bestimmung lokaler Abweichungen $\Delta \mathbf{g}_n(\mathbf{r})$ von den jeweiligen Ortsfrequenzen $\mathbf{g}_n$, welche die Periodizitäten in der HRTEM Aufnahme im Referenzbereich beschreiben. Dabei wird die Abweichung $\Delta \mathbf{g}_n(\mathbf{r})$ von der Ortsfrequenz $\mathbf{g}_n$ an jedem Punkt $\mathbf{r}$ der HRTEM Abbildung ermittelt und somit unter anderem eine Bestimmung lokaler Variationen im Netzebenenabstand $d(\mathbf{r}) = 1/|\mathbf{g}_n(\mathbf{r})| = 1/|\mathbf{g}_n + \Delta \mathbf{g}_n(\mathbf{r})|$ möglich. Im Folgenden werden die wesentlichen theoretischen Grundlagen der GPA kurz erläutert. Für eine detaillierte Ausführung sei auf die Publikationen von Hýtch et al. verwiesen [122, 129].

Wie bereits in Kapitel 4.1.4 erläutert und in Gleichung (4.12) angegeben, kann eine HRTEM Aufnahme eines perfekten Kristalls dargestellt werden als Fouriersumme ebener Wellen mit den Ortsfrequenzen $\mathbf{g}_n$ und ihren Fourierkoeffizienten I_n :

$$I(\vec{r}) = \sum_n I_n \exp(2\pi i \vec{g}_n \vec{r}) \quad (4.44)$$

Im Allgemeinen sind die Fourierkoeffizienten I_n komplex und gegeben durch:

$$I_n = A_n \exp(iP_n) \quad (4.45)$$

Der Betrag A_n von I_n beschreibt die Amplitude des sinusförmig verlaufenden Streifenmusters einer von der Ortsfrequenz $\mathbf{g}_n$ repräsentierten Netzebenenchar (Bragg-Abbildung, siehe auch Abbildung 4.6). Die Phase P_n gibt die laterale Position des Streifenmusters in der HRTEM Aufnahme an. Weist die in der HRTEM Aufnahme abgebildete Kristallstruktur keine Störungen auf (perfektes Kristall), so sind A_n und P_n Konstanten. Um in der hochauflösenden Aufnahme Variationen bezüglich des Kontrasts und der Position der Streifenmuster zu erfassen, können die Fourierkoeffizienten als eine Funktion in Abhängigkeit vom Ort $\mathbf{r}$ in der HRTEM Aufnahme beschrieben werden und es folgt:

$$I(\vec{r}) = \sum_n I_n(\vec{r}) \exp(2\pi i \vec{g}_n \vec{r}) \quad \text{mit} \quad I_n(\vec{r}) = A_n(\vec{r}) \exp(iP_n(\vec{r})) \quad (4.46)$$

Unter der Annahme, dass am Ort $\mathbf{r}$ der HRTEM Aufnahme ein reziproker Gittervektor $\mathbf{g}_n(\mathbf{r})$ von dem Vektor $\mathbf{g}_n$ des Referenzbereichs abweicht, also gilt

$$\vec{g}_n(\vec{r}) = \vec{g}_n + \Delta \vec{g}_n(\vec{r}), \quad (4.47)$$

kann die vom Ort $\mathbf{r}$ abhängige Phase $P_n(\mathbf{r})$ angegeben werden zu:

$$P_n(\vec{r}) = 2\pi \Delta \vec{g}_n(\vec{r}) \vec{r} \quad (4.48)$$

Unter der Voraussetzung, dass die Änderung der Abweichung $\Delta \mathbf{g}_n(\mathbf{r})$ vom Referenzvektor $\mathbf{g}_n$ mit dem Ort $\mathbf{r}$ sehr gering ist, ergibt sich die lokale Störung $\Delta \mathbf{g}_n(\mathbf{r})$ des Gitters durch die Ableitung der Phase $P_n(\mathbf{r})$:

$$\vec{\nabla} P_n(\vec{r}) = 2\pi \Delta \vec{g}_n(\vec{r}) \quad (4.49)$$

Um den zur Bestimmung der lokalen Störung $\Delta \mathbf{g}_n(\mathbf{r})$ nötigen Phasenverlauf (Phasenabbildung) $P_n(\mathbf{r})$ zu erhalten, wird bei Anwendung der geometrischen Phasenanalyse die HRTEM Abbildung zunächst fouriertransformiert. Im Fourierspektrum der HRTEM Abbildung wird anschließend über eine Maske ein Braggreflex $\mathbf{g}_n$, dessen Variation $\Delta \mathbf{g}_n(\mathbf{r})$ analysiert werden soll, ausgewählt. Mathematisch ist dies gleichbedeutend mit der Selektion eines Fouriersummanden aus Gleichung (4.46) und die inverse Fouriertransformation ergibt eine komplexe Abbildung $I'_n(\mathbf{r})$ der Form:

$$I'_n(\vec{r}) = I_n(\vec{r}) \exp(2\pi i \vec{g}_n \vec{r}) = A_n(\vec{r}) \exp(2\pi i \vec{g}_n \vec{r} + i P_n(\vec{r})) \quad (4.50)$$

Der Intensitätsverlauf $B_n(\mathbf{r})$ des periodischen Streifenmusters für die gewählte Gitterperiodizität $\mathbf{g}_n$ (Bragg-Abbildung) ergibt sich zu:

$$B_n(\vec{r}) = 2 \operatorname{Re} [I'_n(\vec{r})] = 2 A_n(\vec{r}) \cos(2\pi \vec{g}_n \vec{r} + P_n(\vec{r})) \quad (4.51)$$

Die Phasenabbildung $P_n(\mathbf{r})$, aus deren Ableitung sich die lokalen Störungen $\Delta \mathbf{g}_n(\mathbf{r})$ berechnen lassen, ist nun durch die Phase von $I'_n(\mathbf{r})$ unter Abzug des Faktors $2\pi \mathbf{g}_n \mathbf{r}$ gegeben:

$$P_n(\vec{r}) = \operatorname{Phase} [I'_n(\vec{r})] - 2\pi \vec{g}_n \vec{r} \quad (4.52)$$

Dabei ergibt sich der Faktor $2\pi \mathbf{g}_n \mathbf{r}$ in Analogie zu Gleichung (4.50) und (4.52) aus der Phase der komplexen Abbildung des Referenzbereichs mit der Periodizität $\mathbf{g}_n$. Das in der Software DigitalMicrographTM verwendete Skript zur Durchführung der GPA verwendet dabei als Periodizität $\mathbf{g}_n$ des ungestörten, perfekten Gitters die mittlere Ortsfrequenz in der zu analysierenden HRTEM Abbildung.

4.1.7 Rastertransmissionselektronenmikroskopie (STEM)

Das TITAN 80-300 bietet zusätzlich zu den konventionellen transmissionselektronenmikroskopischen Verfahren auch die Möglichkeit, das Mikroskop im Rastermodus zu betreiben (STEM, scanning transmission electron microscopy). Das Aufnahmeverfahren und der prinzipielle Strahlengang im STEM-Modus sind in Abbildung 4.9 dargestellt. Im Kondensorsystem wird ein konvergenter Strahl erzeugt, welcher auf die Probenoberfläche fokussiert wird. Dabei ist der Strahldurchmesser entscheidend für das Auflösungsvermögen im STEM-Modus. Über Ablenkspulen (scanning coils) wird für die Aufnahme der Elektronenstrahl über die Probe gerastert. In der Brennebene lässt sich ein ringförmiger Detektor (ADF-detector, annular dark-field detector) in den Strahlengang einfahren, welcher für jeden Rasterpunkt die Streuintensität innerhalb eines bestimmten von der Kameralänge abhängigen Raumwinkels detektiert (Ein-Pixel-Detektor). Die Detektionssoftware erstellt daraus mit der jeweiligen Scanposition des Strahls eine STEM-Aufnahme. Bei Verwendung großer Kameralängen werden vom Ringdetektor kleine Streuwinkel erfasst, was neben dem Massenkontrast die Aufnahme von Beugungskontrasten ermöglicht (ADF-STEM). Sehr kleine Kameralängen führen zur Detektion entsprechend großer Streuwinkel, wodurch sich aufgrund abnehmender Strahlkohärenz Beugungskontraste unterdrücken lassen (HAADF-STEM, high angle annular dark-field STEM). In einer HAADF-Aufnahme sind somit im Idealfall nur Massenkontraste enthalten. Bei ausreichend dünnen Proben und optimaler Strahleinstellung lässt sich auch im STEM-Modus atomare Auflösung erzielen. Im Vergleich zur konventionellen hochauflösenden Transmissionselektronenmikroskopie besteht der Vorteil in der hochauflösenden Rastertransmissionselektronenmikroskopie darin, dass der

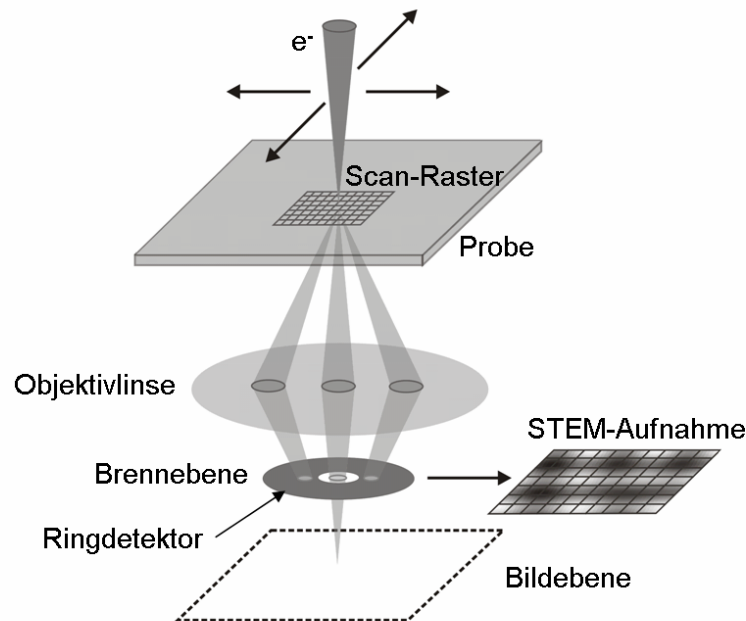


Abb. 4.9: Schematische Darstellung des Strahlengangs im STEM-Modus eines TEMs.

atomare Kontrast direkt mit der Ordnungszahl des jeweiligen Elements korreliert (Z-Kontrast), wodurch sich hochauflösende HAADF-STEM-Aufnahmen direkt interpretieren lassen. Im Gegensatz dazu können im konventionellen HRTEM-Modus Bildsimulationen notwendig werden, da es sich beim hochauflösenden Phasenkontrast um einen Interferenzkontrast handelt, welcher vom Verlauf der Kontrasttransferfunktion abhängig ist (siehe Kapitel 4.1.5).

4.1.8 Energiedispersive Röntgenspektroskopie (EDXS)

Neben der konventionellen, bildgebenden Transmissionselektronenmikroskopie, bei welcher die elastische Wechselwirkung der Elektronen mit dem Objekt zur Bildentstehung und zur Identifizierung der kristallografischen Anordnung der Atome genutzt wird, ermöglichen inelastische Streuprozesse eine chemische Analyse der im TEM untersuchten Probe. Hierfür ist das in dieser Arbeit genutzte CM-20 zusätzlich mit einem Röntgendetektor ausgestattet, welcher optional knapp oberhalb der Probe in den Strahlengang des TEMs eingebracht werden kann. Die auf die Probe einfallenden hochenergetischen Elektronen können neben der elastischen Coulombwechselwirkung auch durch Anregung von Elektronen der Probenatome aus den inneren Kernschalen ins Valenz- oder Leitungsband inelastisch gestreut werden. Besetzt ein Elektron aus einer energetisch höheren Kernschale des Probenatoms den so freigewordenen Zustand, wird als Sekundärprozess charakteristische Röntgenstrahlung emittiert, wobei die Energien der Röntgenquanten spezifisch für die in der Probe enthaltenen Elemente sind. Mit dem Röntgendetektor können die Röntgenquanten energiedispersiv erfasst und während der Messdauer gezählt werden (EDXS, energy dispersive x-ray spectroscopy). Durch das Einsortieren der detektierten Röntgenquanten in entsprechende Energiekanäle erstellt die Detektionssoftware ein Röntgenspektrum, in welchem die Zählrate (counts) in Abhängigkeit von der Quantenenergie aufgetragen wird. Die Energieauflösung des Halbleiterröntgendetektors liegt typischerweise im Bereich von 130-140 eV bei einer Detektionsgrenze von ca. 0.1 Gewichtsprozent (wt%). Die Auswertung eines Röntgenspektrums ermöglicht dabei nicht nur eine Aussage über die vorhandenen Atomspezies innerhalb des durchleuchteten Probenbereichs, sondern auch die quantitative Bestimmung von Elementkonzentrationen.

4.2 Kristallprojektionen von Al(Ga)N im TEM

Nachdem in den vorhergehenden Ausführungen die Grundlagen für die Kontrast- und Bildentstehung im TEM geschaffen wurden, sollen in diesem Kapitel die wichtigsten experimentellen Details bezüglich der Kristallprojektionen des untersuchten Materialsystems der Gruppe III-Nitride näher betrachtet werden. Die folgenden Ausführungen konzentrieren sich dabei ausschließlich auf die in dieser Arbeit untersuchte hexagonale Wurtzitstruktur der Gruppe III-Nitride.

In der vorliegenden Arbeit wurden (0001)-orientierte AlGaN Schichten auf (0001) orientierten Saphirsubstraten sowohl in Querschnittprojektionen wie auch in der Aufsichtsprjektion untersucht. Aufgrund der hexagonalen Symmetrie des untersuchten Materialsystems existieren in der Querschnittsprjektion zwei ausgezeichnete Kristallprojektionen mit Einstrahlrichtungen senkrecht zur {01-10}-Netzebene (m-plane) und senkrecht zur {11-20}-Netzebene (a-plane). Die sich daraus ergebenden Einstrahlrichtungen können dann als [01-10] bzw. [11-20] Zonenachse indiziert werden, welche durch Rotation der Probe um 30° um die [0001] Wachstumsrichtung ineinander überführt werden können. Abbildung 4.10 zeigt die ausgezeichneten Querschnittsprjektionen und die [0001] Aufsichtsprjektion am Beispiel von α -AlN. Zur Veranschaulichung der in Kapitel 4.1.2 abgehandelten Beugungstheorie sind exemplarisch im CM-20 aufgenommene Beugungsbilder von AlN aus den jeweiligen Projektionsrichtungen ebenfalls dargestellt. Wie in Abbildung 4.10 ersichtlich ist, beträgt der kleinste atomare Abstand zwischen Aluminium- und Stickstoffsäule in der [01-10] Projektion $0.6\text{\AA}$ und kann im TITAN 80-300 nicht aufgelöst werden. Hingegen ist in der [11-20] Einstrahlrichtung im hochauflösenden Phasenkontrast des TITAN 80-300 eine Trennung der Aluminium- und Stickstoffsäulen aufgrund des größeren Abstands von $1.1\text{\AA}$ bei ausreichend dünnen und optimal orientierten Proben möglich. Tabelle

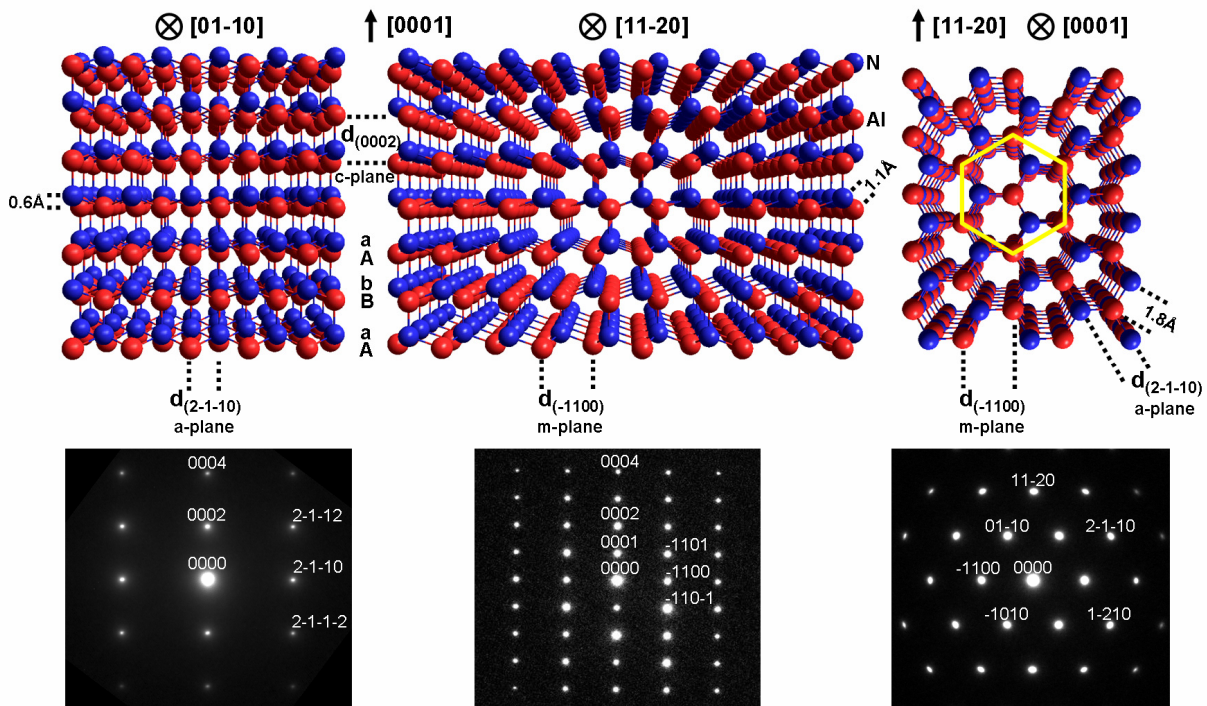


Abb. 4.10: Kristallprojektionen (oben) und Elektronenbeugungsbilder (unten) von α -AlN aus Einstrahlrichtungen hoher Symmetrie sowohl in den Querschnittsprjektionen [01-10] und [11-20] als auch in der [0001] Aufsichtsprjektion. In Letzterer ist die hexagonale Einheitszelle zusätzlich hervorgehoben. Ebenfalls eingezeichnet sind Lage und (hkil)-Indizierung entsprechender kristalliner Netzebenen sowie die kleinsten Abstände der Atomsäulen in der jeweiligen Projektion. Die Experimentellen ZOLZ-Beugungsaufnahmen zeigen den Zusammenhang zwischen kristalliner Periodizität und Anregung entsprechender Reflexe.

	$d_{\{0002\}}$ [Å]	$d_{\{2-1-10\}}$ [Å]	$d_{\{-1100\}}$ [Å]
GaN	2.592	1.593	2.762
AlN	2.491	1.556	2.695

Tab. 4.2: Netzebenenabstände in HRTEM Aufnahmen von α -GaN und α -AlN in der [01-10] und [11-20] Projektion bei 300K.

4.2 zeigt eine Übersicht der Netzebenenabstände $d_{\{hkl\}}$ der Gruppe III-Nitride GaN und AlN in der α -Phase für die beiden Querschnittsprojektionen, welche sich direkt aus den in Tabelle 2.1 angegebenen Gitterparametern berechnen lassen.

4.3 Probenpräparation

In der Transmissionselektronenmikroskopie stellt die Probenpräparation abhängig vom zu untersuchenden Schichtsystem und Substrat eine besondere Herausforderung dar, da die realisierbaren Untersuchungsmöglichkeiten und Ergebnisse entscheidend von der Beschaffenheit und Qualität der Probe abhängen. Eine TEM-Probe sollte dabei einige Grundvoraussetzungen erfüllen, die im Folgenden kurz aufgelistet werden:

- Die Proben sollten eine ausreichende Elektronentransparenz in den interessanten Bereichen aufweisen und müssen demzufolge ausreichend dünn sein. Generell ist dies bei Elektronenenergien im Bereich von 200-300keV für Probendicken bis ca. 1 μ m erfüllt. Typische Probendicken für Querschnittsanalysen von Versetzungen liegen im Bereich von 50-300nm. Für HRTEM-Abbildungen sind sehr viel dünnere Probenbereiche notwendig, um näherungsweise von reinen Phasenobjekten ausgehen zu können und Vielfachstreuprozesse zu vermeiden. Hierfür sollten die Probendicken deutlich unterhalb von 40nm liegen [116].
- Die Proben sollten leitfähig sein, um in dünnen Bereichen aufladungsbedingte Verspannungen und eine Ablenkung des Elektronenstrahls durch Probenaufladung zu vermeiden. Insbesondere war nach der eigentlichen Probenpräparation bei den in dieser Arbeit untersuchten AlGaN Schichten auf Saphir zur Vermeidung einer Probenaufladung eine Bedampfung mit einer ca. 3nm dicken amorphen Kohlenstoffschicht notwendig, da Saphir selbst mit einer Bandlücke von 10eV ein Isolator ist und nominell undotiertes AlGaN ebenfalls schlechte Leitungseigenschaften hat.
- Die Form und Größe der Probe müssen der vorgegebenen Geometrie des Probenhalters genügen. Gleichzeitig sollte die Probe eine ausreichende Stabilität aufweisen, um eine brauchbare Handhabung zu gewährleisten.

Abhängig vom Untersuchungsziel gibt es grundsätzlich zwei Möglichkeiten der Probenpräparation. Querschnittsproben (sogenannte „Cross-Section“ Proben) erlauben unter anderem Aussagen über den Verlauf des Schichtsystems und deren Grenzflächen, die Struktur von Defekten im Material und die chemische Komposition der einzelnen Schichten. Der Elektronenstrahl fällt hierbei parallel zur Substratoberfläche ein. Im Gegensatz dazu steht bei Aufsichtspräparaten der einfallende Elektronenstrahl senkrecht zur Substratoberfläche. Diese sogenannten „Plane-View“ Proben ermöglichen unter anderem die Bestimmung von Versetzungsdichten. Unter Berücksichtigung der oben genannten Probenanforderungen hat sich an der Universität Ulm für die Herstellung von Querschnitts- und Aufsichtspräparaten jeweils ein bestimmtes Präparationsverfahren entwickelt, welches im Folgenden genauer erläutert wird und im Wesentlichen den Ausführungen in [130] folgt.

4.3.1 Querschnittspräparation

Abbildung 4.11a-f zeigt die einzelnen Schritte der Querschnittspräparation. In Schritt a werden zunächst aus dem Wafer mit einer Diamantdrahtsäge zwei gleichartige ca. 1.6 mm breite Streifen herausgesägt, welche im Anschluss mit einem 2-Komponenten Epoxydharz Schicht auf Schicht zusammengeklebt werden. Zu beachten ist, dass der erste Schnitt bereits die Orientierung der Probe im Halter und damit die kristalline Projektionsrichtung im TEM festlegt. Wie in Abschnitt 4.2 erläutert wurde, lassen sich die beiden Zonenachsen [01-10] und [11-20] durch Kippung der Probe um 30° ineinander überführen. In einem standardmäßigen TEM Doppelkipphalter sind allerdings nur Kippwinkel im Bereich von $\pm 20^\circ$ möglich, sodass bei einer gewünschten Untersuchung in beiden Zonenachsen entweder zwei unterschiedlich orientierte Proben präpariert werden müssen oder der erste Schnitt einen Winkel von 15° zur [01-10] bzw. [11-20] Richtung einschließt, um beide Orientierungen im TEM anfahren zu können. In Schritt b wird der zusammengeklebte Streifen in 0.5 mm tiefe Würfelchen zersägt, wobei jeder dieser Proben-„Sandwiches“ zur weiteren Präparation herangezogen werden kann. Anschließend wird der Würfel, wie in Schritt c dargestellt, in ein vorgefertigtes Netz aus Titan eingesetzt und mittels eines Tropfens Epoxydharz mit diesem verbunden. Der Durchmesser des Titannetzes von 3 mm entspricht dabei den Abmessungen des Probenhalters. Mittels einer rotierenden Schleifscheibe mit entsprechend feiner Körnung wird die komplette Probeneinheit von beiden Seiten auf ca. $100\ \mu\text{m}$ mechanisch abgedünnt und poliert (Schritt d). In einem Muldenschleifgerät (Dimpler) wird über ein rotierendes mit Diamantpaste benetztes Kupferrad durch gleichzeitige Rotation der Probe von beiden Seiten eine kugelförmige Mulde in die Probe geschliffen (Schritt e). Abhängig vom Material sind dabei im Schichtbereich Restdicken von ca. $3\ \mu\text{m}$ möglich. Insbesondere bei Saphirsubstraten empfehlen sich geringe Restdicken während des mechanischen Dünnens, da die Abtragraten in der Ionendünnung mit ca. $1\ \mu\text{m}/\text{h}$ für Saphir relativ niedrig sind. Nach dem Feinpolieren im Dimpler wird die mechanisch vorgedünnte Probe in der Ionendünnungsanlage von beiden Seiten mit Argonionen unter einem Winkel von 10° beschossen (Schritt f). Die beiden Argonstrahlen sind dabei senkrecht zur Klebelinie des Proben-„Sandwiches“ ausgerichtet,

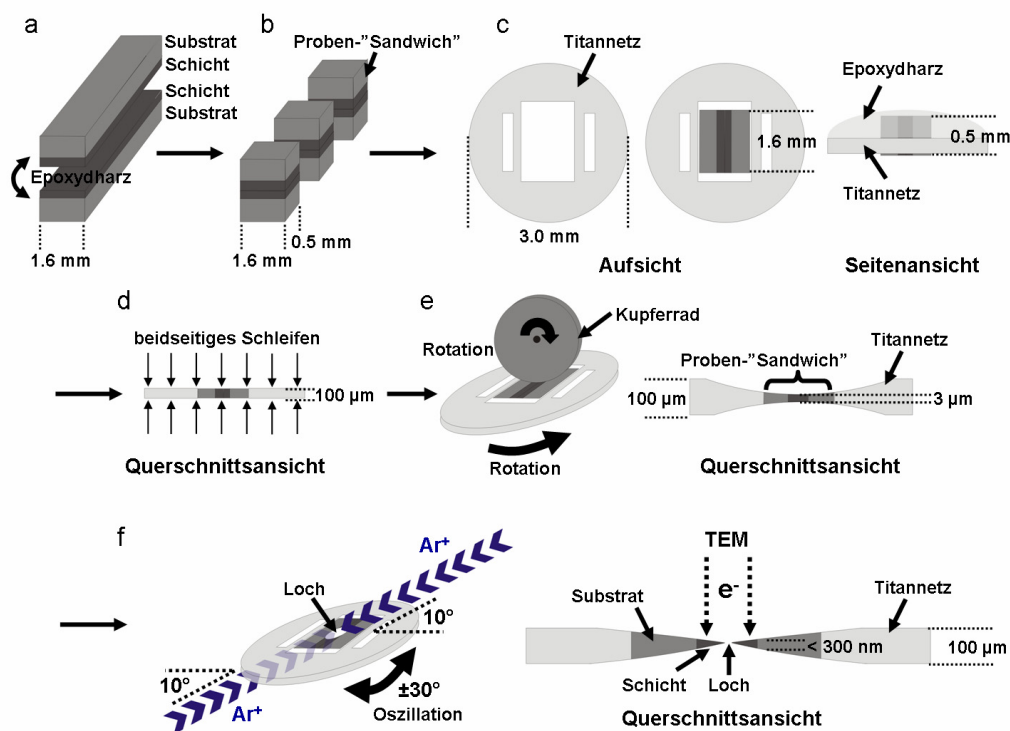


Abb. 4.11: Schematische Darstellung der Querschnittspräparation mit den einzelnen Präparationsschritten a-f.

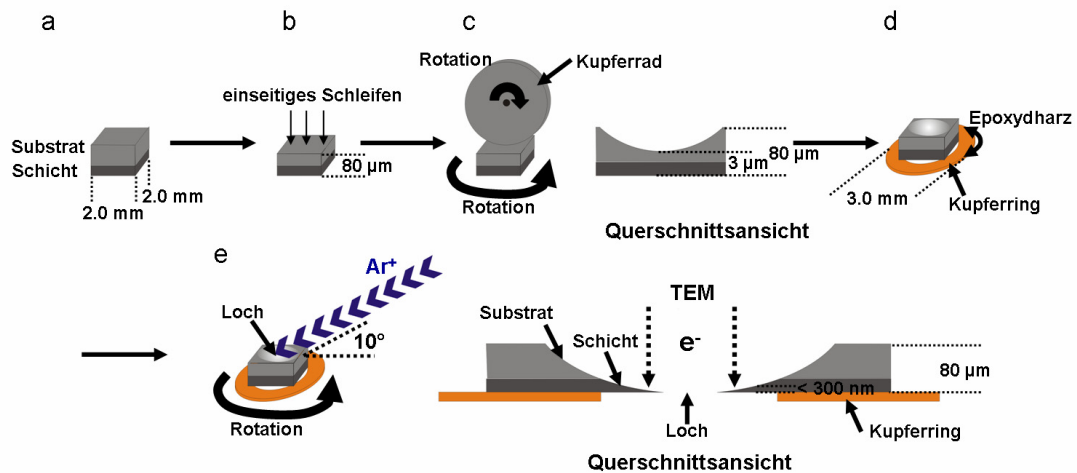


Abb. 4.12: Schematische Darstellung der Aufsichtspräparation in den aufeinanderfolgenden Präparationsschritten a-e.

während die Probe mit einem Winkel von $\pm 30^\circ$ um die Achse senkrecht zum Titannetz oszilliert. Bei einer Beschleunigungsspannung von 5kV und einem Strom von 5mA für die Argonionen wird über einen Sputterprozess im Schichtbereich ein Loch in die Probe geätzt. Am Rand des Lochs ist die Probe nun ausreichend dünn, um im TEM untersucht werden zu können. Aufgrund der „Sandwich“-Methode in Schritt a und b ergeben sich nun im Idealfall vier äquivalente fürs TEM geeignete Probenbereiche, in der die Schicht vorhanden und ausreichend elektronentransparent ist, um auch den Anforderungen der hochauflösenden Transmissionselektronenmikroskopie an die Probendicke zu genügen.

4.3.2 Aufsichtspräparation

In Abbildung 4.12a-e sind die Präparationsschritte zur Herstellung einer Aufsichtspröbe veranschaulicht. Zunächst wird mit der Diamantdrahtsäge aus dem Wafer ein ca. 2.0mm x 2.0mm großes Stück herausgesägt (Schritt a). Von der Substratseite aus wird die Probe anschließend mittels einer rotierenden feinkörnigen Schleifscheibe auf eine Restdicke von ca. 80 µm mechanisch abgedünnt und poliert (Schritt b). Im Dimpler wird ebenfalls nur von der Substratseite aus analog zur Querschnittspräparation eine kugelförmige Mulde in die Probe geschliffen und diese anschließend poliert (Schritt c). Hierbei sind wiederum im dünnsten Bereich in der Mitte der Probe Restdicken von ca. 3µm möglich. Zur besseren Handhabung der Probe und um einen stabilen Einbau in den Probenhalter zu gewährleisten, wird die mechanisch vorgedünnte Probe mit Epoxydharz mittig auf einen Kupferferring geklebt, welcher mit einem Durchmesser von 3mm den Dimensionen des Probenhalters entspricht (Schritt d). In der Ionendünnschleifanlage wird mittels Argonbeschuss (5kV, 5mA) von der Substratseite aus an der dünnsten Stelle bei einem Einstrahlwinkel von 10° ein Loch in die Probe geätzt. Im Gegensatz zur Querschnittspräparation befindet sich die Probe während des Dünnvorgangs unter kontinuierlicher Rotation (Schritt e). Abbildung 4.12e zeigt schematisch den Querschnitt einer Aufsichtspröbe nach der Ionendünnschleifung. Wiederum ist in der Nähe des Lochrands die Probe ausreichend dünn, um AlGaIn im Bereich der Schichtoberfläche aus der [0001] Aufsichtspröjektion im TEM zu untersuchen.

4.4 Versetzungsanalysen mit der weak-beam dark-field (WBDF) Technik

In weiten Teilen der vorliegenden Arbeit wurden die Durchstoßversetzungen mittels einer speziellen Dunkelfeldtechnik im TEM analysiert. Die sogenannte weak-beam dark-field

(WBDF) Technik ermöglicht dabei nicht nur die Abbildung von Versetzungslinien in einem Schichtsystem zur Analyse des Propagationsverhaltens, sondern auch die Bestimmung der Burgers-Vektoren der Versetzungen und deren Versetzungstyp [120, 131]. Im Folgenden soll die WBDF Technik im Detail erläutert werden, wobei direkt Bezug genommen wird auf das in dieser Arbeit untersuchte Materialsystem Al(Ga)N.

Wie bereits in Kapitel 4.1.4 angedeutet und in Abbildung 4.5c dargestellt, ist der Versetzungscontrast im Hell- und Dunkelfeld auf lokal veränderte Beugungsbedingungen in der Nähe des Versetzungskerns im Vergleich zum defektfreien Bereich zurückzuführen. Die Ursache hierfür ist ein elastisches Deformationsfeld (Verzerrungsfeld $\mathbf{R}$), das entlang einer Versetzungslinie durch die eigentliche plastische Deformation des Versetzungskerns in den Kristall induziert wird. Dieses Deformationsfeld führt in der Umgebung einer Versetzung zu einer Verbiegung der hkl-Netzebenen und damit zu lokal veränderten Braggbedingungen, die zu einem Versetzungscontrast führen. In einer Hellfeldabbildung erscheinen Versetzungen als dunkle Linien, da abhängig vom Verzerrungsfeld bestimmte abgelenkte Strahlen lokal mit geringerem Anregungsfehler s aufgrund der Netzebenenverbiegung braggreflektiert werden. Eine erhöhte Beugungsintensität im Versetzungsbereich geht einher mit einem geringeren Anteil der Transmission, wodurch die Intensität in der Hellfeldaufnahme im Bereich der Versetzungslinie geringer ist als im defektfreien Bereich. Hingegen können in einer Dunkelfeldaufnahme Versetzungen als helle Linien sichtbar gemacht werden. Grundsätzlich wird hierfür die Probe relativ zum einfallenden Strahl so orientiert, dass der für die Dunkelfeldabbildung verwendete $\mathbf{g}$ -Reflex bezüglich des defektfreien Bereichs im Idealfall einen so großen Anregungsfehler s besitzt (weak-beam), dass dieser im Bereich der Versetzung durch die Verbiegung der Netzebene aufgrund des induzierten Verzerrungsfelds $\mathbf{R}$ gerade kompensiert wird. Durch die so lokal entlang der Versetzungslinie exakte Erfüllung der Braggbedingung im Gegensatz zu den defektfreien Bereichen erscheint die Versetzung als helle, scharf definierte Linie in der Dunkelfeldabbildung, während defektfreie Bereiche aufgrund des großen Anregungsfehlers s nur sehr schwache Intensitäten liefern. Um einen optimalen Versetzungscontrast in einer Dunkelfeldabbildung zu erhalten, erfordert die WBDF Technik allerdings spezielle Bedingungen für die Orientierung der Probe im TEM. Hierbei hat sich im Wesentlichen die sogenannte $\mathbf{g}$ -3 $\mathbf{g}$ WBDF Bedingung durchgesetzt [116], die auch in den Untersuchungen in dieser Arbeit zur Anwendung kam und im Folgenden speziell unter Einbezug des Materials Al(Ga)N genauer erläutert wird.

Für einen optimalen Versetzungscontrast sollten im TEM drei wesentliche Bedingungen erfüllt sein. Zum einen sollte sich der für die WBDF Aufnahme verwendete braggreflektierte Strahl in der optischen Achse des Mikroskops befinden, um mittels einer „on-axis“ Dunkelfeldabbildung große Einfallswinkel zur Objektivlinse zu vermeiden. Des Weiteren muss der $\mathbf{g}$ -Reflex, wie zuvor ausgeführt, einen entsprechend großen Anregungsfehler s bezüglich der defektfreien Probenbereiche haben. Um einen bestmöglichen Contrast zwischen Versetzungslinie und defektfreien Bereichen zu erzielen, sollte die Probe im TEM unter der sogenannten Zweistrahlbedingung betrachtet werden. Dies bedeutet, dass im Bereich einer Versetzung nur der transmittierte Strahl und der $\mathbf{g}$ -Reflex stark angeregt sind, während andere Reflexe der ZOLZ möglichst nicht angeregt werden. Für den optimalen Contrast verteilt sich damit die Gesamtintensität des einfallenden Strahls nur auf den transmittierten und einen braggreflektierten Strahl. In Abbildung 4.13 sind die einzelnen experimentellen Schritte im TEM zum Erreichen der $\mathbf{g}$ -3 $\mathbf{g}$ WBDF Bedingung bei einer [01-10] orientierten Querschnittsprobe von AlGaIn dargestellt. Die Beugungsaufnahmen wurden bei leicht konvergentem Strahl in einem dickeren Probenbereich durchgeführt, um mit Hilfe der Kikuchilinen die entsprechende Kippung von Probe und einfallendem Strahl kontrollieren zu können. Das Ziel im betrachteten Beispiel wäre eine $\mathbf{g}$ -3 $\mathbf{g}$ WBDF Aufnahme unter Verwendung des $\mathbf{g} = 2\text{-}1\text{-}10$ Reflexes. Ausgehend von einer exakten Zonenorientierung der Probe (hier: [01-10]), erkennbar an den mittelsenkrecht zum jeweiligen $\mathbf{g}$ -Vektor stehenden

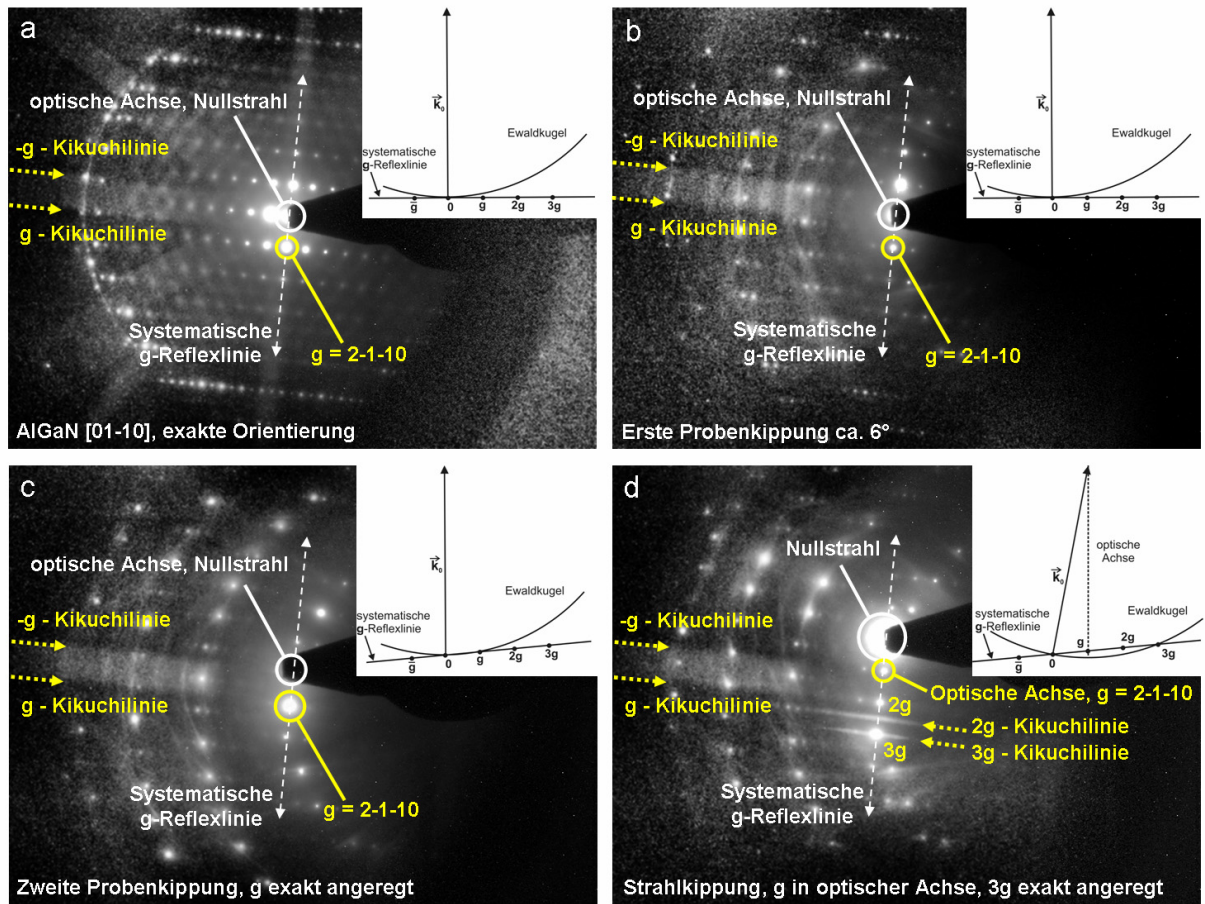


Abb. 4.13: Experimentelle Vorgehensweise im TEM zur Einstellung der g - $3g$ WBDF Bedingung bezüglich des $g = 2-1-10$ Reflexes im Beugungsmodus mit Hilfe der Kikuchilinen. Zu sehen sind die Beugungsbedingungen nach jeweiliger Kippung von Probe bzw. einfallendem Strahl in den aufeinanderfolgenden Schritten a-d. Die einzelnen Bildeinsätze veranschaulichen die Beugungsbedingung in der Ewaldkonstruktion.

Kikuchilinen in Abbildung 4.13a, wird die Probe im TEM entlang einer Achse parallel zur systematischen g -Reflexlinie, die den für die WBDF Aufnahme zu benutzenden Reflex (hier: $g = 2-1-10$) enthält, um etwa 6° aus der Zone gekippt. Dadurch wird hinsichtlich der geforderten Zweistrahlbedingung gewährleistet, dass sämtliche Reflexe der ZOLZ, die nicht auf der systematischen g -Reflexlinie liegen, nicht oder nur schwach angeregt sind. Die sich hieraus ergebende Beugungsbedingung ist in Abbildung 4.13b dargestellt. Die Parallelität der Kippachse zur systematischen g -Reflexlinie ist am nach wie vor mittelsenkrechten Verlauf der g - und $-g$ -Kikuchilinie zum g - bzw. $-g$ -Vektor des $2-1-10$ Reflexes ersichtlich. Im nächsten Schritt wird die Probe um eine Achse senkrecht zum einfallenden Strahl k_0 und zur systematischen g -Reflexlinie verkippt. Der Kippwinkel entspricht dabei genau dem Braggwinkel der Netzebene des g -Reflexes. Die sich daraus ergebende exakte Anregung des $g = 2-1-10$ Reflexes ist aus dem Verlauf der g -Kikuchilinie durch den g -Reflex und der $-g$ -Kikuchilinie durch den transmittierten Strahl in Abbildung 4.13c ersichtlich (siehe hierzu auch Kapitel 4.1.3). Durch eine anschließende Verkipfung des einfallenden Strahls aus der optischen Achse wird das Beugungsbild auf dem Schirm relativ zu den Kikuchilinen so verschoben, dass der $g = 2-1-10$ Reflex mit der optischen Achse des TEMs zusammenfällt. Hierdurch ergibt sich eine exakte Anregung des $3g$ -Reflexes, während der g -Reflex einen entsprechend großen Anregungsfehler s besitzt (daher g - $3g$ Bedingung). Die beschriebene g - $3g$ Anregungsbedingung ist in der Beugungsaufnahme in Abbildung 4.13d aus der Position der Kikuchilinen zu den Braggreflexen ersichtlich. Die $3g$ -Kikuchilinie schneidet den $3g$ -Reflex. Die $-g$ -Kikuchilinie verläuft durch die optische Achse, in welcher sich nun der $g = 2-$

g-Reflex	0002	2-1-10	-1100
b	g • b	g • b	g • b
1/3[2-1-10]	0	2	-1
[0001]	2	0	0
1/3[2-1-13]	2	2	-1

Tab. 4.3: Berechnung des Auslöschkriteriums zur Sichtbarkeit von perfekten Versetzungen in den Gruppe III-Nitriden für WBDF Abbildungen.

1-10 Reflex befindet, während die **g**-Kikuchilinie den **2g**-Reflex schneidet. Die Ewaldkonstruktion in Abbildung 4.13d verdeutlicht den Anregungsfehler, der sich für den **g** = 2-1-10 Reflex ergibt. Zur Aufnahme der WBDF Abbildung wird im TEM die Objektivblende nun in die optische Achse gesetzt, um nur den **g** = 2-1-10 Reflex zur Bildentstehung auszuwählen.

Mit der WBDF Technik ist es allerdings nicht nur möglich, Versetzungen als helle, scharfe Linien sichtbar zu machen, sondern auch deren Burgers-Vektoren und Versetzungstyp zu identifizieren. Wellenoptisch verursacht das in der Umgebung einer Versetzungslinie induzierte Verzerrungsfeld **R** eine zusätzliche Phasenverschiebung des braggreflektierten Strahls **g** um den Faktor φ_g gegeben durch:

$$\varphi_g \sim \exp(2\pi i \bar{g} \bar{R}) \quad (4.53)$$

Diese Phasenverschiebung in der Nähe des Versetzungskerns ist verantwortlich für den Versetzungskontrast in der WBDF Aufnahme. Gleichung (4.53) zeigt allerdings auch, dass das alleinige Vorhandensein eines Verzerrungsfelds **R** bei der Auswahl eines bestimmten **g**-Reflexes für die WBDF Aufnahme nicht ausreicht, um einen Versetzungskontrast hervorzurufen. Steht **g** senkrecht auf **R**, erfährt der braggreflektierte Strahl keine zusätzliche Phasenverschiebung und φ_g nimmt den Wert 1 an, da in diesem Fall das Verzerrungsfeld **R** parallel zur braggreflektierenden Netzebenenschar steht. Da im Allgemeinen der größte Anteil des Verzerrungsfelds **R** parallel zum Burgers-Vektor **b** der Versetzung orientiert ist (**R** || **b**), ist eine Versetzung in einer WBDF Aufnahme nur dann sichtbar, wenn gilt [117]:

$$\bar{g} \cdot \bar{b} \neq 0 \quad (4.54)$$

Dies ist das sogenannte Auslöschkriterium für Versetzungen in Abhängigkeit vom Burgers-Vektor **b** und dem für die WBDF Aufnahme verwendeten **g**-Reflex. Durch die Aufnahme von WBDF Abbildungen vom selben Probenbereich unter Verwendung verschiedener Reflexe **g_n** kann der Burgers-Vektor **b** einer Versetzung und damit der Versetzungstyp unter Berücksichtigung der von der Kristallsymmetrie abhängigen möglichen Burgers-Vektoren (siehe Kapitel 3.5) identifiziert werden. In Tabelle 4.3 ist das Auslöschkriterium für die verschiedenen **g**-Reflexe der beiden Querschnittsprojektionen [01-10] und [11-20] der Gruppe III-Nitride in Abhängigkeit von den möglichen Burgers-Vektoren der perfekten Versetzungen in einer Übersicht dargestellt. Abbildung 4.14 zeigt exemplarisch eine Burgers-Vektor Analyse mit der WBDF Technik zur Identifikation der Versetzungstypen der Durchstoßversetzungen in einer auf (0001)-Saphir gewachsenen reinen AlN Schicht. In der Hellfeldaufnahme aus der AlN [01-10] Zone in Abbildung 4.14a sind sämtliche Durchstoßversetzungen als dunkle Linien sichtbar, die entsprechend der epitaktischen Wachstumsrichtung von AlN im Wesentlichen parallel zur c-Achse bis zur Oberfläche propagieren. Die Abbildungen 4.14b und c zeigen **g**-3**g** WBDF Aufnahmen vom selben Probenbereich unter Verwendung des 0002 und 2-1-10 Reflexes. Entsprechend dem Auslöschkriterium aus Tabelle 4.3 sind in Abbildung 4.14b nur Versetzungen sichtbar, die

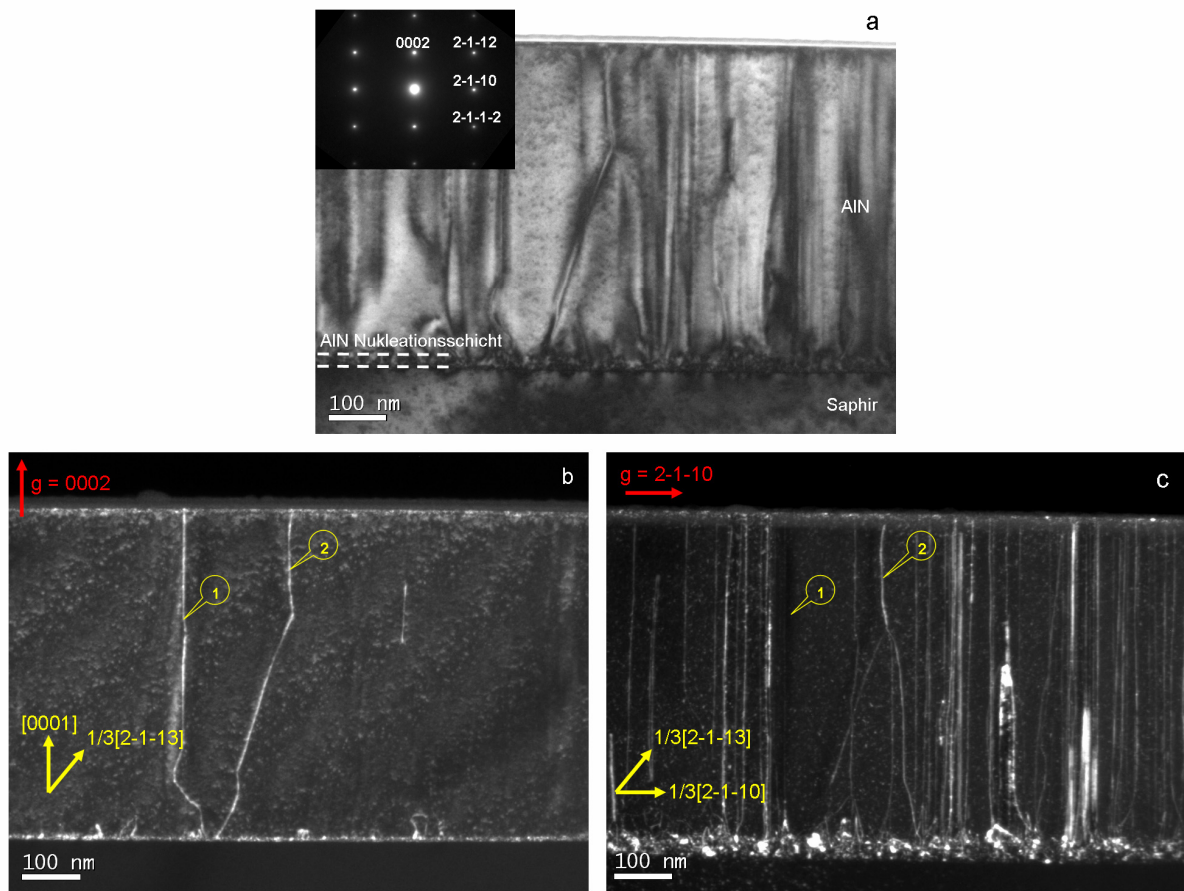


Abb. 4.14: Burgers-Vektor Analyse mit der WBDF Technik unter Verwendung des $\mathbf{g \cdot b}$ -Auslöschkriteriums. Hierbei stammen alle drei Abbildungen vom selben Probenbereich. In der Hellfeldaufnahme (a) aus der AlN [01-10] Zone sind alle Versetzungen als dunkle Linien zu erkennen. Unter Verwendung des 0002 Reflexes sind in der WBDF Abbildung (b) nur Versetzungen mit Burgers-Vektoren vom Typ **c** oder **a+c** sichtbar, während bei Wahl des 2-1-10 Reflexes (c) nur Versetzungen mit Burgers-Vektoren vom Typ **a** oder **a+c** zu einem Kontrast führen. Die gelben Pfeile markieren die Richtungen der Burgers-Vektoren der Versetzungen, die bei Auswahl des jeweiligen $\mathbf{g}$ -Reflexes sichtbar sind.

einen Burgers-Vektor vom Typ **c** ($\mathbf{b} = [0001]$) oder vom Typ **a+c** ($\mathbf{b} = 1/3[2-1-13]$) haben. Hingegen liefern in Abbildung 4.14c nur Versetzungen einen Kontrast, deren Burgers-Vektor vom Typ **a** ($\mathbf{b} = 1/3[2-1-10]$) oder **a+c** ist. Somit ist allen Durchstoßversetzungen, die in beiden WBDF Aufnahmen sichtbar sind, ein Burgers-Vektor vom Typ **a+c** zuzuordnen. Als Beispiel ist dies für die Versetzung mit der Nummer 2 in Abbildung 4.14b und c gegeben. Da die Versetzungslinie parallel zur c-Achse verläuft, hat diese mit dem Burgers-Vektor $\mathbf{b} = 1/3[2-1-13]$ sowohl eine Schrauben- als auch Stufenkomponente und ist damit eine gemischte Versetzung. Versetzung 1 hingegen hat den Burgers-Vektor $\mathbf{b} = [0001]$, da diese nur unter Verwendung des 0002 Reflexes sichtbar ist. Da der **c**-Typ Burgers-Vektor parallel zum Linienvektor der Versetzungslinie orientiert ist, handelt es sich hier um eine reine Schraubenversetzung. Wie in Abbildung 4.14c zu erkennen ist, sind die typischerweise hohen Versetzungsdichten im Bereich von 10^{10} cm^{-2} in auf (0001)-Saphir gewachsenen Al(Ga)N Schichten im Wesentlichen auf die **a**-Typ Durchstoßversetzungen zurückzuführen. Gemäß dem Auslöschkriterium sind dies die Durchstoßversetzungen, welche unter Verwendung des 2-1-10 Reflexes, nicht aber bei Wahl des 0002 Reflexes sichtbar sind. Da der **a**-Typ Burgers-Vektor senkrecht zu diesen Versetzungen orientiert ist, können diese als reine Stufenversetzungen identifiziert werden. Unter der Voraussetzung, dass sämtliche Durchstoßversetzungen parallel zur c-Achse verlaufen, kann zusammenfassend also festgestellt werden, dass alle Durchstoßversetzungen, die bei der Verwendung beider Reflexe

sichtbar sind, gemischte Versetzungen sind. Versetzungen, die nur unter dem 0002 Reflex einen Kontrast liefern, sind reine Schraubenversetzungen. Hingegen müssen die Versetzungen, die nur in der WBDF Aufnahme mit $g = 2-1-10$ sichtbar sind, reine Stufenversetzungen sein.

4.5 Bildsimulation

In der vorliegenden Arbeit wurden im Rahmen der Analyse von Defekten in AlGaIn unterstützende Bildsimulationen durchgeführt. Die Idee der Kontrastsimulation besteht darin, eine heuristisch angenommene Struktur eines im TEM untersuchten Objekts zu berechnen und durch Abgleich mit dem Experiment a posteriori zu verifizieren. Dabei wird eine Computersimulation eines TEM-Bildes durchgeführt und es kann anhand der Übereinstimmung der Kontraste im TEM und derer in der Simulation entschieden werden, ob das der Simulation zugrundeliegende Modell weiter modifiziert werden muss. Wird bei einer Übereinstimmung der Kontraste davon ausgegangen, dass das vorliegende Objektmodell korrekt ist, können detaillierte Rückschlüsse auf die in der Probe vorliegenden Strukturen gemacht werden. Um Fehlinterpretationen zu vermeiden, müssen die Simulationsparameter mit den Parametern des verwendeten Mikroskops übereinstimmen. In dieser Arbeit wurde zur Bildsimulation das Programm „Musli“ verwendet [132], dessen Berechnungsmethode im Folgenden genauer skizziert werden soll.

Zur Entstehung der Abbildung tragen grundsätzlich zwei Komponenten bei: Die Modulation der einfallenden Elektronenwelle durch die Wechselwirkung mit dem Coulombpotential des Kristalls, wodurch an der Unterseite des Objekts eine Austrittswelle mit entsprechender Objektinformation entsteht, und der Einfluss der optischen Aberrationen in der weiteren Propagation der Austrittswelle durch das Linsensystem. Letzteres ist dabei entscheidend für die Entstehung des hochauflösenden Phasenkontrasts, wie in Kapitel 4.1.5 gezeigt wurde. Die beiden Einflussfaktoren werden im Simulationsprogramm nacheinander berücksichtigt und berechnet.

Im ersten Schritt der Simulation wird die Berechnung der Austrittswelle aus dem Objekt durchgeführt. Das im Simulationsprogramm verwendete Verfahren ist dabei die sogenannte Multislice-Methode, deren theoretische Grundlage erstmals von Cowley und Moodie formuliert wurde [133]. Beim Multislice-Ansatz wird ein Kristall der Dicke z in eine Vielzahl dünner Scheiben (Slices) gleicher Dicke Δz eingeteilt. Die Elektronenwelle breitet sich senkrecht zu den Slices und parallel zur optischen Achse aus. Unter der Annahme sehr dünner Slices (1 bis 2 Å) stellen diese für die Elektronenwelle reine Phasenobjekte dar, wodurch nur die Phase der Elektronenwelle bei der Propagation durch einen Slice verändert wird (siehe Kapitel 4.1.5). Des Weiteren wird davon ausgegangen, dass die Abstände zwischen den Slices sehr klein sind, weshalb die Ausbreitung der Elektronenwelle zwischen den Slices wie im potentialfreien Raum beschrieben werden kann. Das Prinzip der Multislice-Methode zur Berechnung der Austrittswelle basiert nun darauf, dass die einfallende Elektronenwelle bei Propagation durch den ersten Slice phasenmoduliert wird und diese veränderte Welle die neue Eintrittswelle für den zweiten Slice ist, usw. Die Berechnung wird iterativ fortgesetzt, bis die Welle den letzten Slice verlässt. Die Phasenänderung $\phi(x,y)$, die die einfallende Elektronenwelle innerhalb eines Slices erfährt, lässt sich durch die Multiplikation der Elektronenwellenfunktion $\Psi(\mathbf{r})$ mit der sogenannten Phasentransmissionsfunktion $t_n(\mathbf{r})$ für den n -ten Slice beschreiben. Diese gibt die jeweilige lokale Phasenverschiebung an, welche vom projizierten Potenzial $v_n(\mathbf{r}) = v_n(x,y)$ abhängt:

$$t_n(\bar{\mathbf{r}}) = \exp(i\sigma v_n(\bar{\mathbf{r}})\Delta z) \quad (4.55)$$

Dabei bezeichnet σ die relativistisch korrigierte Wechselwirkungskonstante und Δz die Slicedicke. Im reziproken Raum entspricht das projizierte Atompotential $v_n(\mathbf{r})$ der Fouriertransformierten $v_n(\mathbf{K}) = \text{FT}[v_n(\mathbf{r})]$, wobei $v_n(\mathbf{K})$ gegeben ist zu [134]:

$$v_n(\bar{\mathbf{K}}) = \frac{\lambda}{A_{\text{Slice}}} \cdot \frac{m}{m_0} \cdot \sum_j f_j(\mathbf{K}) \cdot \exp(2\pi i \bar{\mathbf{K}} \bar{\mathbf{r}}_j) \quad (4.56)$$

Die Summation wird über alle Atome j innerhalb des n -ten Slices durchgeführt, wobei $\mathbf{r}_j$ die Ortsvektoren der Atome angibt. m ist die relativistisch korrigierte Masse der Elektronen mit der Ruhemasse m_0 . A_{slice} bezeichnet die Fläche des Slices. Die atomaren Streuamplituden des j -ten Atoms $f_j(\mathbf{K})$ werden in [135] angegeben, wobei $K = |\mathbf{K}|$ und $\mathbf{K} = \mathbf{k}_0 - \mathbf{k}$ ist. Dabei bezeichnet $\mathbf{k}_0$ den Wellenvektor der einfallenden und $\mathbf{k}$ den Wellenvektor der gestreuten Elektronen. Die inverse Fouriertransformation von $v_n(\mathbf{K})$ ergibt dann das projizierte Potential $v_n(\mathbf{r})$ für den n -ten Slice im Ortsraum:

$$v_n(\bar{\mathbf{r}}) = \text{FT}^{-1} \left[v_n(\bar{\mathbf{K}}) \right] \quad (4.57)$$

Die Ausbreitung der phasenmodulierten Welle zwischen den äquidistanten Slices entlang der Einstrahlrichtung wird aufgrund des geringen Sliceabstandes Δz im Rahmen der Fresnelschen Beugung beschrieben. Dies geschieht im Ortsraum durch eine Faltung der phasenmodulierten Welle mit der Propagationsfunktion $p(\mathbf{r}, \Delta z) = p(x, y, \Delta z)$:

$$p(\bar{\mathbf{r}}, \Delta z) = \exp \left(i\pi \frac{x^2 + y^2}{\lambda \Delta z} \right) \quad (4.58)$$

Die Ausbreitung der Elektronenwelle durch die gesamte Probe kann nun mittels der Phasentransmissionsfunktion und der Propagationsfunktion rekursiv ermittelt werden und die Austrittswelle $\Psi_n(\mathbf{r})$ aus dem n -ten Slice ergibt sich zu:

$$\Psi_n(\bar{\mathbf{r}}) = \left[\Psi_{n-1}(\bar{\mathbf{r}}) \otimes p(\bar{\mathbf{r}}, \Delta z) \right] \cdot t_n(\bar{\mathbf{r}}) \quad (4.59)$$

Da eine Faltung im Ortsraum einer Multiplikation im reziproken Raum entspricht und eine Multiplikation mathematisch einfacher zu handhaben ist, wird Gleichung (4.59) im reziproken Raum berechnet und ergibt sich zu:

$$\Psi_n(\bar{\mathbf{r}}) = \text{FT}^{-1} \left[\Psi_{n-1}(\bar{\mathbf{K}}) \cdot p(\bar{\mathbf{K}}, \Delta z) \right] \cdot t_n(\bar{\mathbf{r}}) \quad (4.60)$$

Dabei gilt für $p(\mathbf{K}, \Delta z)$:

$$p(\bar{\mathbf{K}}, \Delta z) = \exp \left(-i\pi \Delta z \lambda |\bar{\mathbf{K}}|^2 \right) \quad (4.61)$$

In Abbildung 4.15 ist der Ablauf für die Berechnung der Austrittswelle an der Unterseite der Probe schematisch dargestellt. Die Multislice-Methode konvergiert mit steigender Anzahl von Slices, also kleiner werdendem Δz , gegen die korrekte Lösung, allerdings wird die Anzahl der Iterationen durch die benötigte Simulationszeit begrenzt. Bei ausreichend dünnen Slices ($\Delta z \leq 1 \text{ \AA}$) ist die Methode für die meisten Simulationen an Bulk-Materialien hinreichend genau.

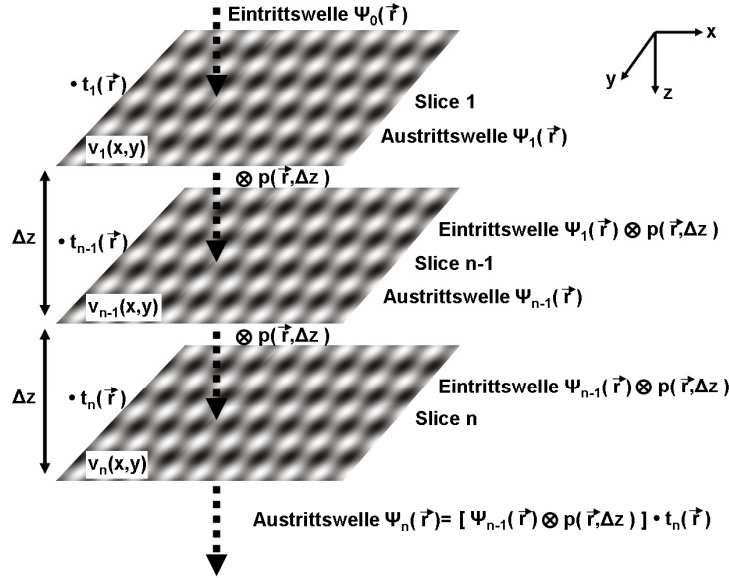


Abb. 4.15: Schematische Darstellung zur Simulation der Austrittswelle mittels der Multislice-Methode.

Im nächsten Schritt wird die Propagation der Austrittswelle durch das Mikroskopsystem simuliert. Die Austrittswelle an der Unterseite der Probe wird durch die Abbildungsfehler des Mikroskops in Form der Kontrastübertragungsfunktion moduliert (siehe Kapitel 4.1.5). Die Parameter, wie sphärische Aberration, Defokus und Blendenöffnung, welche den Verlauf der Kontrasttransferfunktion bestimmen, können im Programm eingestellt werden. Daraus ergeben sich die eigentliche Schirmwelle und das entsprechende Kontrastbild.

5 Untersuchungen zur defektreduzierenden Wirkung von SiN_x Nano-Masken in AlGaN

Im diesem Kapitel werden die Ergebnisse der TEM Untersuchungen zur defektreduzierenden Wirkung von in-situ gewachsenen SiN_x Zwischenschichten in AlGaN dargestellt und diskutiert. Dabei werden die experimentellen Erkenntnisse hinsichtlich des Einflusses von SiN_x Nano-Masken auf das Propagationsverhalten der Durchstoßversetzungen durch die Entwicklung eines geeigneten atomaren Versetzungsmodells und vergleichende Bildsimulation gestützt. Es sei darauf verwiesen, dass die hier im Detail ausgeführten Experimente und Resultate in [113] veröffentlicht wurden.

5.1 Charakterisierung des untersuchten Schichtsystems

Die Untersuchungen in dieser Arbeit fokussieren auf die Defektreduktion mittels SiN_x Zwischenschichten im Materialsystem $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ mit einem nominellen Aluminiumanteil von $x = 0.2$. Die für die TEM Untersuchungen präparierten Querschnitts- und Aufsichtspröben sind in Abbildung 5.1 dargestellt. Abbildung 5.1a zeigt das untersuchte Schichtsystem in der Querschnittspräparation (Probe P1). Die Heterostruktur wurde mittels Niederdruck-MOVPE (LP-MOVPE, low pressure MOVPE) auf (0001)-orientiertem Saphir bei einer Temperatur von 1120°C und einem Druck von 80hPa für AlGaN abgeschieden unter Verwendung von Trimethylaluminium bzw. -gallium und Ammoniak als Präkursor. Dem Wachstum von $\text{Al}_{0.2}\text{Ga}_{0.8}\text{N}$ geht die Deposition einer optimierten 20nm dicken sauerstoffdotierten bei niedriger Temperatur gewachsenen AlN:O Nukleationsschicht voraus, um die Kristallqualität zu verbessern [89]. Nach dem Wachstum einer 150nm dicken $\text{Al}_{0.2}\text{Ga}_{0.8}\text{N}$ Schicht wurde eine SiN_x Zwischenschicht mittels Silan (SiH_4) als Silizium Präkursor zur Defektreduktion in-situ abgeschieden bei einer optimierten Depositionszeit von 4min und einem Druck von 160hPa. Die Temperatur von 1120°C blieb dabei unverändert. Im Anschluss wurde das Wachstum von $\text{Al}_{0.2}\text{Ga}_{0.8}\text{N}$ mit einer $1\mu\text{m}$ dicken Schicht fortgesetzt. Die mittels Röntgenbeugung im Rahmen des „Deep UV-LED“ Projekts durchgeführten Untersuchungen zur Optimierung der defektreduzierenden Effizienz von SiN_x Zwischenschichten in AlGaN in Abhängigkeit von

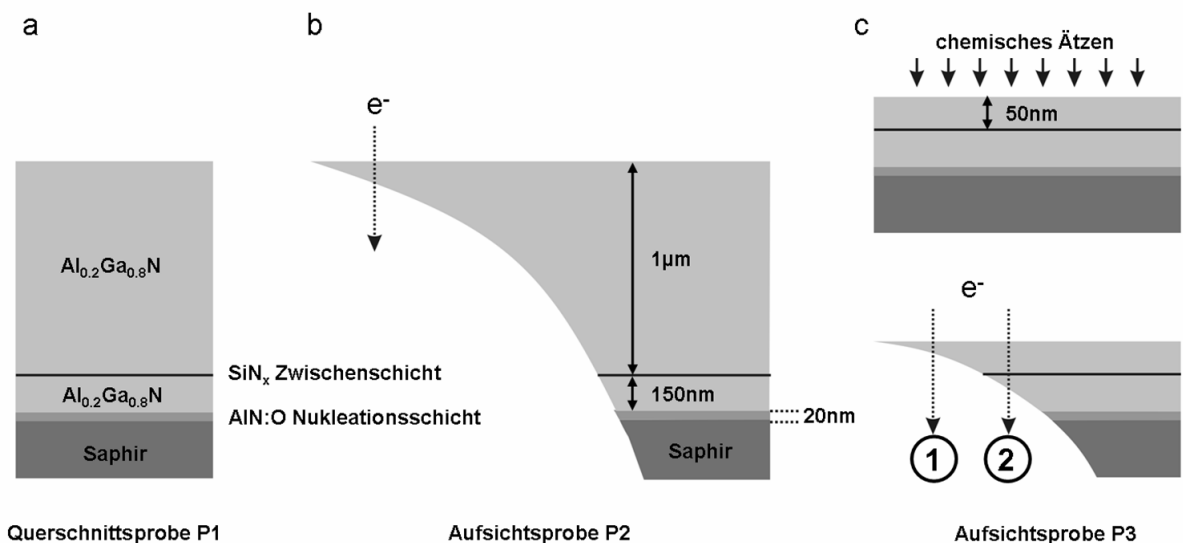


Abb. 5.1: Schematische Darstellung des untersuchten Schichtsystems. In (a) ist die $\text{Al}_{0.2}\text{Ga}_{0.8}\text{N}$ Heterostruktur der Querschnittspröbe P1 veranschaulicht, während (b) und (c) die beiden Aufsichtspröben im Querschnitt zeigen. Durch vorheriges Abätzen der $\text{Al}_{0.2}\text{Ga}_{0.8}\text{N}$ Schicht wird eine Untersuchung in [0001]-Projektion sowohl direkt oberhalb der SiN_x Zwischenschicht (Bereich 1) als auch unter Einbezug der SiN_x Schicht (Bereich 2) möglich.

der SiN_x Depositionszeit und der Position der Zwischenschicht im Schichtsystem wurden von Kamran et al. in [87, 88] veröffentlicht. Neben der Querschnittspräparation wurden auch Aufsichtspräparate hergestellt, deren Querschnitte in Abbildung 5.1b und c dargestellt sind. Das Aufsichtspräparat P2 in Abbildung 5.1b, welches ohne weitere Zwischenschritte aus dem beschriebenen Schichtsystem hergestellt wurde, ermöglicht allerdings nur TEM Untersuchungen aus der [0001]-Projektion im Bereich der AlGaN Probenoberfläche. Da sich entsprechend den Ausführungen in Kapitel 4.3.2 durch die Dünnung der Probe von der Substratseite her der in Abbildung 5.1b dargestellte Probenquerschnitt ergibt, ist die Schicht für Aufsichtsuntersuchungen im TEM im Bereich der SiN_x Schicht zu dick. Um Versetzungsanalysen in der [0001]-Projektion auch im Bereich der SiN_x Zwischenschicht zu ermöglichen, wurde der klassischen Aufsichtspräparation ein spezieller Dünnungsprozess vorangestellt. Die Probe wurde durch chemisches Ätzen (RIE, reactive ion etching) von der AlGaN Seite bis auf eine Restdicke von ca. 50nm zur SiN_x Zwischenschicht abgedünnt (Abbildung 5.1c). Wie der sich nach der im Anschluss durchgeführten klassischen Aufsichtspräparation ergebende Probenquerschnitt zeigt, ist die Probe P3 im Bereich der SiN_x Zwischenschicht nun ausreichend dünn, um im TEM in der [0001]-Projektion untersucht werden zu können. Des Weiteren ergeben sich mit dieser Präparationsmethode zwei im TEM durchstrahlbare Probenbereiche mit unterschiedlichem Informationsgehalt, die in Abbildung 5.1c mit „1“ und „2“ markiert sind. Wird die Aufsichtspröbe P3 nahe dem Präparationsloch untersucht (Bereich 1), ist aufgrund des Dünnprozesses nur die AlGaN Schicht direkt oberhalb der SiN_x Zwischenschicht vorhanden, sodass in der [0001]-Projektion nur die Versetzungen detektiert werden, die direkt oberhalb der SiN_x Schicht noch existieren. Im Gegensatz dazu enthält der Bereich 2 weiter entfernt vom Präparationsloch die unter SiN_x liegende AlGaN Schicht, die SiN_x Zwischenschicht selbst und die unmittelbar darüber gewachsene AlGaN Schicht. Im TEM werden somit auch die Versetzungen erfasst, welche unterhalb der defektreduzierenden SiN_x Schicht vorhanden sind. Da in diesem Bereich auch die SiN_x Schicht durchleuchtet wird, ermöglicht dieser Probenbereich eine Analyse hinsichtlich des Einflusses der SiN_x Maske auf die Propagation der Versetzungen in der [0001]-Aufsichtspröjektion.

5.2 Querschnittsuntersuchungen im Bereich der SiN_x Zwischenschicht

Abbildung 5.2 zeigt TEM Querschnittsaufnahmen von Probe P1 des identischen Probenbereichs. Das Schichtsystem ist entsprechend der Charakterisierung der Heterostruktur in Kapitel 5.1 in der Hellfeldaufnahme in Abbildung 5.2a gekennzeichnet. Das im Bereich der Wachstumsgrenzfläche zwischen Saphir und AlGaN aufgenommene Beugungsbild macht die [01-10] Orientierung der TEM Lamelle bezüglich der AlGaN Schicht deutlich. Die Hellfeldaufnahme sowie die beiden WBDF Aufnahmen in Abbildung 5.2b und c zeigen einen Bereich hoher defektreduzierender Effizienz der SiN_x Zwischenschicht. Darüber hinaus weist die direkt auf die Nukleationsschicht gewachsene 150nm dicke AlGaN Schicht eine homogene Versetzungsdichte auf. In der WBDF Aufnahme in Abbildung 5.2b unter Verwendung des 2-1-10 Reflexes sind gemäß dem Auslöschkriterium aus Tabelle 4.3 nur Versetzungen mit einem Burgers-Vektor vom Typ **a** und **a+c** sichtbar. Hingegen zeigt die mit dem 0002 Reflex durchgeführte WBDF Aufnahme nur Versetzungen mit einem Burgers-Vektor vom Typ **c** und **a+c**. Die meisten wachstumsinduzierten Durchstoßversetzungen unterhalb der SiN_x Zwischenschicht sind also reine Stufenversetzungen mit einem Burgers-Vektor vom Typ **a** und haben den größten Anteil an den hohen Versetzungsdichten im Bereich von 10^{10} cm^{-2} . Die äußerst effiziente Reduktion der **a**-Typ Durchstoßversetzungen im Bereich der in-situ deponierten SiN_x Maske ist klar in der Hellfeldaufnahme in Abbildung 5.2a und der WBDF Aufnahme in Abbildung 5.2b zu erkennen. Im Gegensatz zu den Beobachtungen von Engl et al. [38] ist es also möglich, auch in Al_{0.2}Ga_{0.8}N trotz der

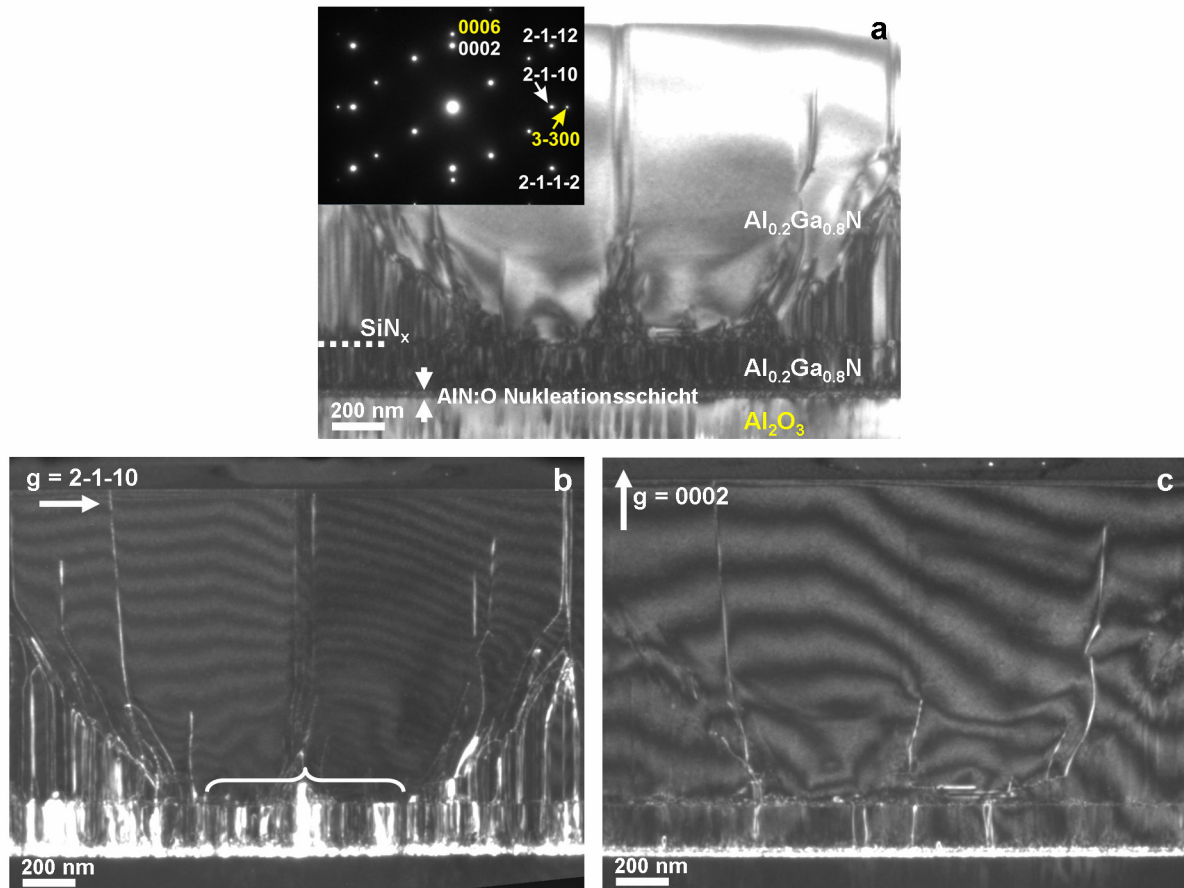


Abb. 5.2: TEM Querschnittsaufnahmen von Probe P1. Die Hellfeldaufnahme (a) aus der [01-10] Zone zeigt die AlGaIn Heterostruktur auf (0001) Saphir. Sowohl die Hellfeldaufnahme wie auch die WBDF Aufnahmen (b) und (c) unter Verwendung des angegebenen g -Reflexes wurden vom selben Probenbereich aufgenommen. In einem Bereich über mehrere 100nm hinweg entlang der SiN_x Zwischenschicht werden die a -Typ Stufenversetzungen wirksam an einer weiteren Propagation zur Oberfläche gehindert (weiße Markierung in (b)).

schlechteren selektiven und lateralen Wachstumseigenschaften im Vergleich zum GaN die Durchstoßversetzungen mittels einer SiN_x Maske an einer weiteren Propagation zur Oberfläche zu hindern. Um so mehr stellt sich die Frage, welche defektreduzierende Wirkung durch das Einbringen einer in-situ SiN_x Maskierung gegeben ist.

Die HRTEM Aufnahme in Abbildung 5.3a aus der [01-10] Zone, aufgenommen in einem

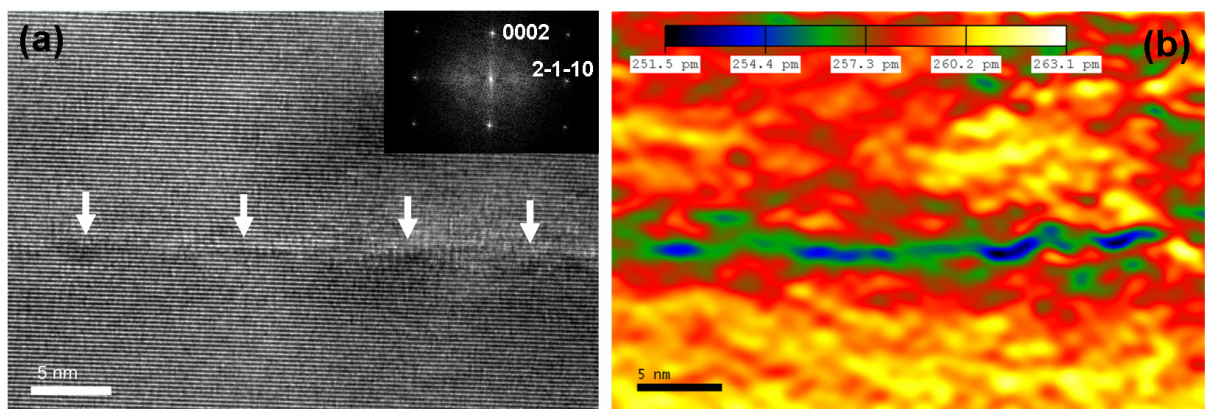


Abb. 5.3: Die HRTEM Aufnahme (a) und die mit dem 0002 Reflex durchgeführte geometrische Phasenanalyse (b) zeigen deutlich die unterbrochene Bedeckung von AlGaIn mit SiN_x in Form von SiN_x Nanoinseln in Bereichen hoher defektreduzierender Effizienz (weiße Markierungen in (a)). Darüber hinaus induzieren die SiN_x Nanoinseln eine kompressive Verspannung in das Materialsystem in [0001] Richtung.

Bereich hoher defektreduzierender Effizienz, zeigt die unterbrochene Struktur der SiN_x Nano-Maske (weiße Markierungen in Abbildung 5.3a). Eine genauere Analyse der Struktur der SiN_x Zwischenschicht wird durch eine geometrische Phasenanalyse (GPA, geometric phase analysis) der HRTEM Abbildung möglich (Abbildung 5.3b). Die GPA wurde entsprechend den Ausführungen von Hýtch et al. [129] unter Verwendung des 0002 Reflexes durchgeführt und ermöglicht unter anderem durch eine lokale Analyse der HRTEM Abbildung hinsichtlich einer Variation des ausgewählten **g**-Reflexes eine orts aufgelöste Bestimmung des entsprechenden Netzebenenabstandes und damit des lokalen Verspannungszustandes in Richtung des **g**-Reflexes (siehe Kapitel 4.1.6). Werden lokale Variationen im Netzebenenabstand mit unterschiedlichen Siliziumkonzentrationen korreliert, so lässt sich die SiN_x-Verteilung mittels der GPA bestimmen. Die Graustufenwerte für den lokalen Netzebenenabstand der (0002) Netzebene in der GPA in Abbildung 5.3b wurden zur besseren Sichtbarkeit mit Falschfarben kodiert. Wie in der HRTEM Abbildung 5.3a ist auch in der entsprechenden GPA in Abbildung 5.3b deutlich die unterbrochene Nanostrukturierung der SiN_x Maske zu erkennen. Blau kennzeichnet die Bereiche mit verringertem Netzebenenabstand und damit einer kompressiven Verspannung in [0001] Richtung, verursacht durch den deutlich geringeren Platzbedarf von Silizium im Vergleich zum Gallium im Kristall. Damit markieren die blauen Bereiche Orte hoher Siliziumkonzentration, während die Bereiche zwischen den SiN_x Nanoinseln, welche nahezu unverspannt vorliegen, dem AlGaIn zuzuordnen sind. In Bereichen hoher defektreduzierender Effizienz der SiN_x Zwischenschicht weist diese also eine Strukturierung mit SiN_x Nanoinseln auf, deren Ausdehnungen und Abstände nur wenige Nanometer betragen.

Die Bildung geschlossener Versetzungshalbschleifen als dominierende defektreduzierende Wirkung der SiN_x Zwischenschicht ist in Abbildung 5.4 dargestellt. Die 2-1-10 WBDF Aufnahme (Abbildung 5.4a) und die HRTEM Aufnahme (Abbildung 5.4b) zeigen klar, dass die **a**-Typ Stufenversetzungen durch die Bildung von Versetzungshalbschleifen im Bereich der SiN_x Maske an einer weiteren Propagation zur Oberfläche gehindert werden. Die Interaktion findet zwischen Versetzungen mit einem Abstand von nur wenigen Nanometern statt, welcher mit dem Abstand und der Ausdehnung der SiN_x Nanoinseln korreliert. Wie in Kapitel 3.4.2 bereits ausgeführt, wäre es durchaus denkbar, dass die Durchstoßversetzungen an der SiN_x Zwischenschicht gestoppt werden, wenn diese als epitaktische Grenzfläche wirkt. Eine derartige Terminierung der Durchstoßversetzungen an der SiN_x Zwischenschicht konnte in den untersuchten AlGaIn Proben nicht beobachtet werden. Stattdessen ist das laterale Überwachsen der SiN_x Nano-Maske durch AlGaIn und die damit verbundene Bildung von

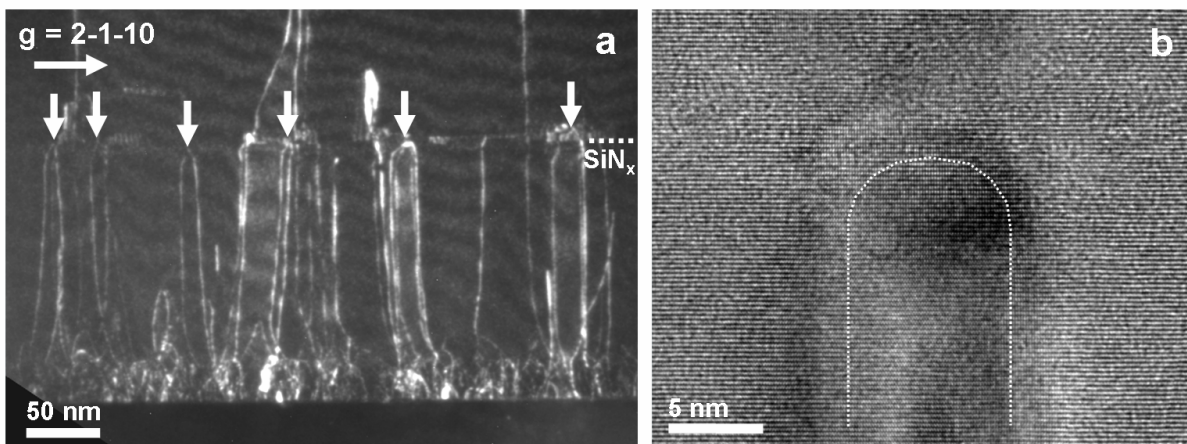


Abb. 5.4: 2-1-10 WBDF Aufnahme (a) und HRTEM Abbildung (b) in einem Bereich hoher defektreduzierender Effizienz der SiN_x Zwischenschicht. Die Bildung von Versetzungshalbschleifen (weiße Markierungen in (a)) mit einer Ausdehnung von nur wenigen Nanometern als dominierender Mechanismus zur Reduktion der **a**-Typ Versetzungen ist deutlich sichtbar.

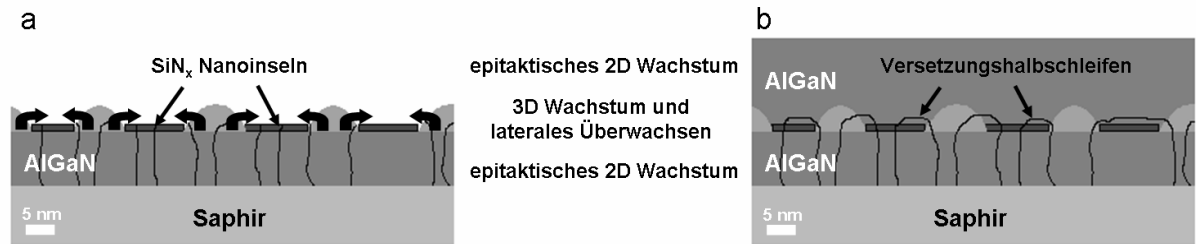


Abb. 5.5: Entstehung der Versetzungshalbschleifen durch laterales Überwachsen von SiN_x Nanoinseln. Der eingezeichnete Maßstab stellt keinen absoluten Wert dar und dient nur zur Veranschaulichung der Größenverhältnisse zwischen dem 3D AlGaIn Wachstum und den SiN_x Nanoinseln.

geschlossenen Versetzungshalbschleifen entscheidend für eine hohe defektreduzierende Wirkung. Die Defektreduktion durch Interaktion von Versetzungen mit entgegengerichtetem Burgers-Vektor steht grundsätzlich im Einklang mit den in [110] veröffentlichten Wachstumsuntersuchungen in reinem GaN. Allerdings wird dort die Bildung der Versetzungshalbschleifen der lateralen Koaleszenz der primären GaN Mikroinseln zugeschrieben, die mit einer Ausdehnung von mehreren 100nm in Bereichen ohne SiN_x Deposition lokalisiert sind (siehe Kapitel 3.4.2). In den in dieser Arbeit untersuchten AlGaIn Proben kann die Bildung der geschlossenen Versetzungshalbschleifen nicht der Koaleszenz der Mikroinseln zugeordnet werden, da diese Inseln Abstände von mehreren 100nm bis einige μm haben können und die Versetzungshalbschleifen, wie in Abbildung 5.4 ersichtlich, aus Versetzungen mit Abständen von wenigen Nanometern gebildet werden. In Abbildung 5.5 ist schematisch die Grundidee zur Entstehung der Versetzungshalbschleifen durch ein laterales Überwachsen von SiN_x Nanoinseln dargestellt. Durch die nicht-benetzende Wirkung der SiN_x Nanoinseln (SiN_x wirkt als anti-surfactant) bildet sich ein dreidimensionales AlGaIn Wachstum zwischen den Nanoinseln aus, die im Anschluss von AlGaIn lateral überwachsen werden (Abbildung 5.5a). Entsprechend der lateralen Wachstumsrichtung ändert sich die Propagation der Durchstoßversetzungen von der [0001] Richtung in eine basale Richtung. Die Interaktion der basalen Versetzungssegmente zweier Durchstoßversetzungen mit entgegengerichteten Burgers-Vektoren führt zur Bildung geschlossener Versetzungshalbschleifen direkt über der SiN_x Maske (Abbildung 5.5b). Ist im weiteren Wachstumsprozess das laterale Überwachsen aufgrund der Koaleszenz von AlGaIn direkt über der SiN_x Maske abgeschlossen, bildet sich wiederum ein zweidimensionales epitaktisches AlGaIn Wachstum in vertikaler c-Richtung. Der wesentliche Unterschied zur der in Abbildung 3.6 dargestellten defektreduzierenden Wirkung der SiN_x Zwischenschicht ist die Bildung von Versetzungshalbschleifen mit einer Ausdehnung von nur wenigen nm durch eine deutlich feinere Strukturierung der SiN_x Maske mit SiN_x Nanoinseln, deren Ausdehnung und Abstand im Bereich von etwa 5nm liegt.

Die 2-1-10 WBDF Aufnahme in Abbildung 5.6 zeigt eine Übersicht der Versetzungsstruktur in Probe P1. Klar zu erkennen sind die Bereiche mit hoher defektreduzierender Effizienz der SiN_x Zwischenschicht für die a-Typ Stufenversetzungen, wie bereits in den Abbildungen 5.2 und 5.4 dargestellt. Hingegen propagieren die Versetzungen ungehindert durch die SiN_x Zwischenschicht zwischen diesen Bereichen (vgl. vergrößerter Ausschnitt in Abbildung 5.6). Sehr auffallend ist der ungewöhnliche aber charakteristische Verbiegungs- und Bündelungseffekt der Versetzungen in Bereichen mit hohen Versetzungsdichten oberhalb der SiN_x Zwischenschicht, angedeutet durch die weißen Markierungen in Abbildung 5.6. Zonen hoher defektreduzierender Effizienz der SiN_x Zwischenschicht in Kombination mit dem Bündelungseffekt führen zu Bereichen von mehreren μm^2 mit niedrigen Versetzungsdichten an der Schichtoberfläche zwischen den Versetzungsbündeln. Detaillierte Untersuchungen zur Ursache dieses charakteristischen Versetzungsverhaltens und der variierenden defektreduzierenden Effizienz entlang der SiN_x Zwischenschicht werden in Kapitel 6

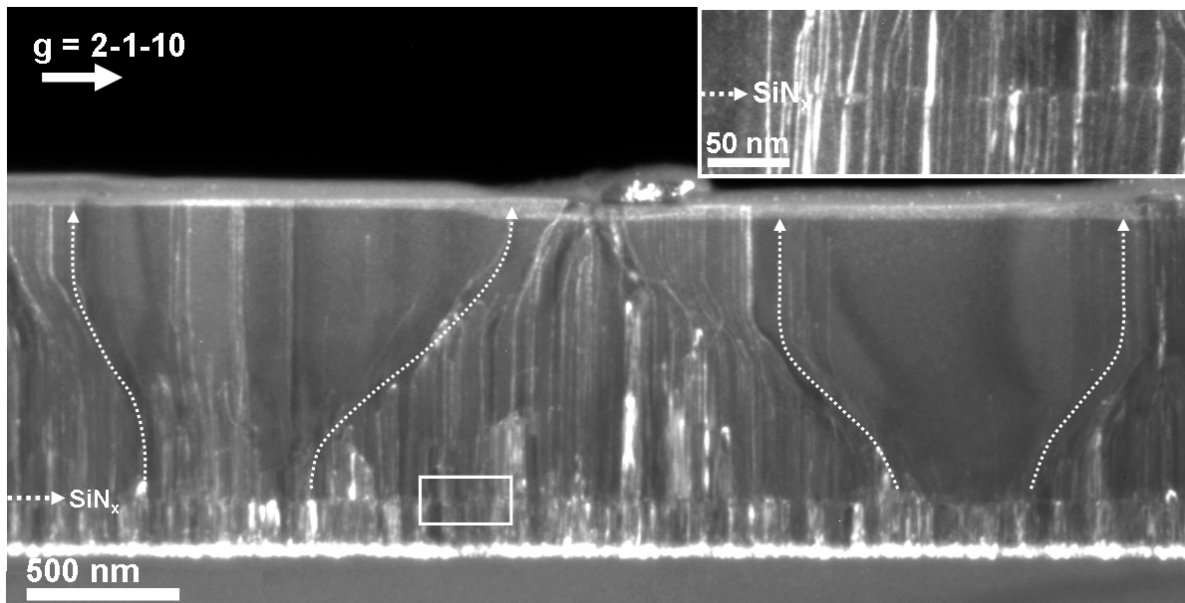


Abb. 5.6: 2-1-10 WBDF Aufnahme bei niedriger Vergrößerung. Die Übersichtsaufnahme von Probe P1 zeigt einen ungewöhnlichen aber charakteristischen Verbiegungs- und Bündelungseffekt der **a**-Typ Versetzungen, der in der gesamten Probe beobachtet werden kann. Die Versetzungsbündelung, angedeutet durch die weißen Pfeile, zeigt immer von den Bereichen mit hoher defektreduzierender Effizienz weg, was zu Bereichen von mehreren μm^2 mit niedrigen Defektdichten an der Schichtoberfläche zwischen den Versetzungsbündeln führt. Der vergrößerte Bereich zeigt eine ungehinderte Propagation der **a**-Typ Durchstoßversetzungen durch die SiN_x Zwischenschicht.

vorgestellt und diskutiert. Die folgenden Untersuchungen konzentrieren sich speziell auf die Charakterisierung der Versetzungshalbschleifen, die in den analysierten Proben den dominierenden defektreduzierenden Mechanismus darstellen.

5.3 Einfluss der SiN_x Nano-Maske auf die Propagation von Versetzungsdipolen

In den vorangegangenen Querschnittsuntersuchungen wurde gezeigt, dass eine hohe defektreduzierende Effizienz der SiN_x Zwischenschicht in AlGaIn auf die Bildung von Versetzungshalbschleifen zurückzuführen ist, die sich aus der Interaktion zweier **a**-Typ Durchstoßversetzungen mit einem Abstand von nur wenigen Nanometern ergeben. In den folgenden Untersuchungen sollen die Versetzungshalbschleifen genau charakterisiert werden. Die Präzisierung der Eigenschaften der Versetzungshalbschleifen wurde durch systematische WBDF- und HRTEM-Analysen sowohl in Querschnitts- wie auch Aufsichtsaufnahmen realisiert. Mittels vergleichender Bildsimulation wurden die experimentellen Ergebnisse verifiziert.

5.3.1 Entwicklung eines Versetzungsmodells aus experimentellen Aufsichtsaufnahmen

Zunächst wurden TEM Untersuchungen an der Aufsichtspröbe P3 gemäß den Bezeichnungen in Abbildung 5.1 im Bereich 1 durchgeführt. Wie bereits in Kapitel 5.1 erläutert, ermöglicht dieser Bereich eine Analyse in der [0001] Aufsichtspröjektion ausschließlich derjenigen Durchstoßversetzungen, die direkt oberhalb der SiN_x Zwischenschicht noch vorhanden sind und nicht an einer weiteren Propagation durch die SiN_x Maske gehindert wurden. Die bei geringer Vergrößerung aufgenommene Hellfeldaufnahme in Abbildung 5.7 zeigt die Versetzungsstruktur oberhalb der SiN_x Zwischenschicht in einem Bereich geringer defektreduzierender Effizienz. Deutlich zu erkennen sind die in den untersuchten AlGaIn

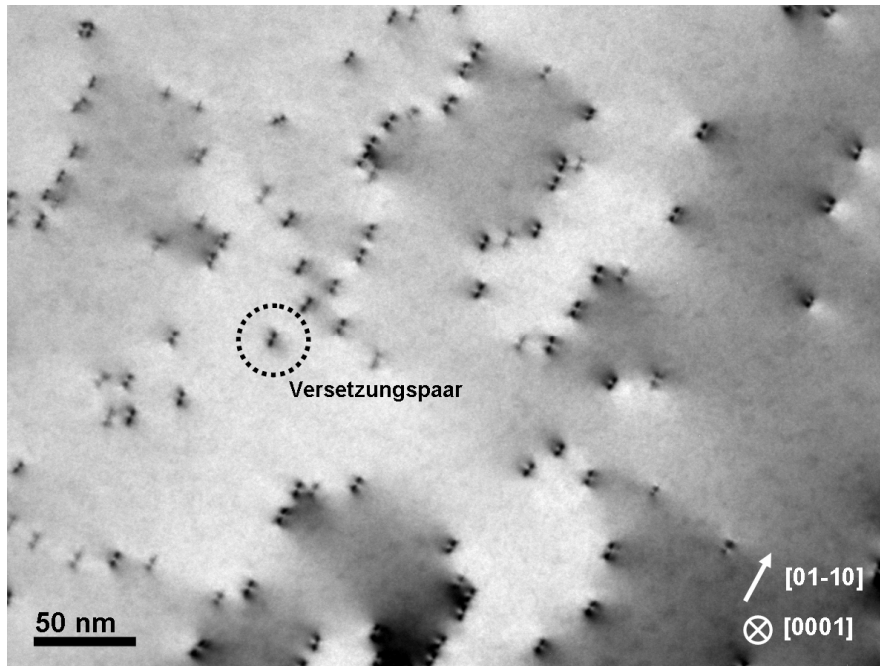


Abb. 5.7: Versetzungsstruktur oberhalb der SiN_x Zwischenschicht in einem Bereich geringer defektreduzierender Effizienz. Klar zu erkennen sind charakteristische Versetzungspaare, von denen der größte Anteil in eine kristalline Richtung hoher Symmetrie orientiert ist (hier [01-10]).

Proben charakteristischen Versetzungspaare, die sich über große Bereiche von mehreren μm^2 hinweg beobachten lassen. Auffallend ist die einheitliche Orientierung der Verbindungslinien zwischen zwei Durchstoßversetzungen eines Versetzungspaares in eine Richtung hoher kristalliner Symmetrie. Entsprechend sind die meisten in Abbildung 5.7 gezeigten Versetzungspaare in der [01-10] Richtung orientiert, wie die in der Hellfeldaufnahme angegebene Probenorientierung zeigt. Aufgrund der ausgeprägten Präsenz dieser Versetzungspaare in den untersuchten AlGaN Aufsichtspröben und einem mittleren Abstand zwischen den Durchstoßversetzungen eines Paares, welcher mit der mittleren Ausdehnung der in den Querschnittsuntersuchungen beobachteten Versetzungshalbschleifen korreliert, wurden die Versetzungspaare als mögliche Kandidaten für die Ausbildung der Versetzungshalbschleifen genauer untersucht.

Die mittels hochauflösender Transmissionselektronenmikroskopie durchgeführte Analyse eines Versetzungspaares ist in Abbildung 5.8 dargestellt. Abbildung 5.8b zeigt die HRTEM Aufnahme des in der Hellfeldabbildung markierten Versetzungspaares. Die aus dem Hochauflösungsbild berechnete FFT (fast Fourier transformation) belegt nun die [01-10] Orientierung der beiden Versetzungskerne zueinander. Zur Reduzierung des Hintergrundrauschens wurde die HRTEM Aufnahme unter Verwendung der $\{-1100\}$ -Reflexe fouriergefiltert. In der gefilterten HRTEM Abbildung des Versetzungspaares (Abbildung 5.8c) ist die durchgeführte Burgers-Vektor Analyse im Detail dargestellt. Die schwarzen Pfeile markieren die beiden Burgers-Umläufe um den jeweiligen Versetzungskern. Die Zahlenwerte geben dabei die Anzahl der durchgeführten Schritte von Atomsäule zu Atomsäule entlang einer $\langle 11-20 \rangle$ Richtung entsprechend der hexagonalen Symmetrie von [0001] AlGaN an. Die Schrittweite zwischen zwei Atomsäulen entspricht dabei dem a-Parameter der hexagonalen Einheitszelle. Der nicht geschlossene Burgers-Umlauf identifiziert beide Durchstoßversetzungen eindeutig als Stufenversetzungen mit Burgers-Vektoren vom Typ **a**, wobei der Burgers-Vektor **b**₁ dem Burgers-Vektor **b**₂ entgegengerichtet ist. Der geschlossene Burgers-Umlauf um beide Versetzungskerne (gelbe Pfeile in Abbildung 5.8c) bestätigt nochmals, dass $\mathbf{b}_1 + \mathbf{b}_2 = \mathbf{b}_1 - \mathbf{b}_1 = \mathbf{0}$ gilt. Das in Abbildung 5.8c eingesetzte Nebenbild verdeutlicht die Orientierung der beiden Burgers-Vektoren in Relation zur hexagonalen Einheitszelle, die

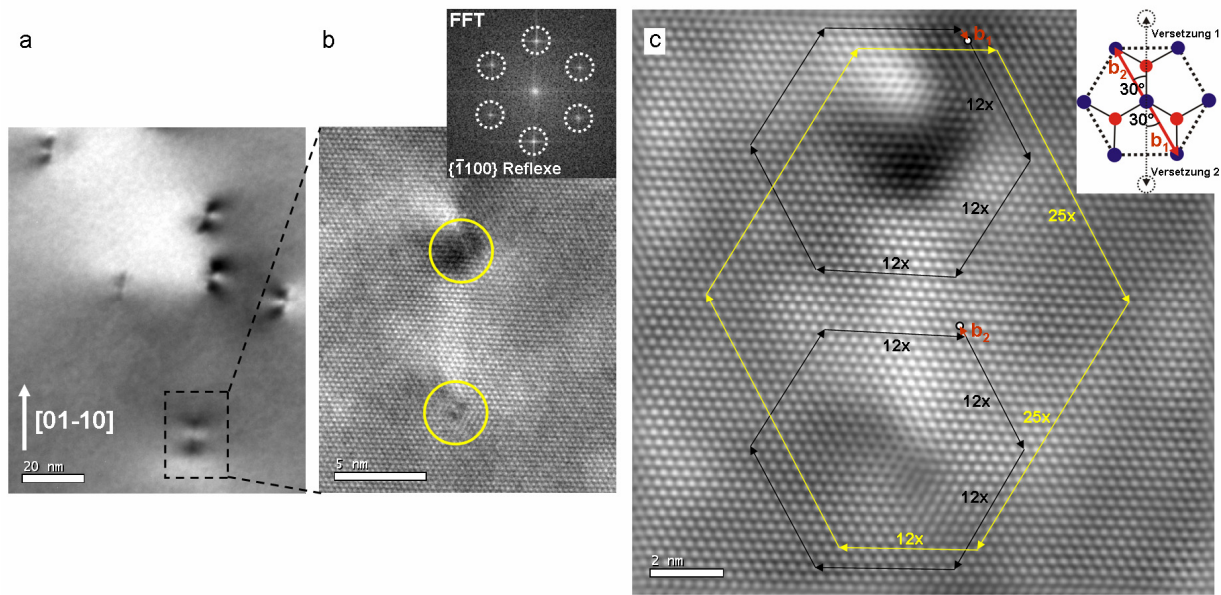


Abb. 5.8: Aufsichtsanalyse eines Versetzungspaares (a) in der Hochauflösung (b & c). Die gelben Kreise in der HRTEM Aufnahme (b) markieren die Position der beiden Durchstoßversetzungen des Versetzungspaares. Die aus der HRTEM Abbildung berechnete FFT bestätigt nun eindeutig die Orientierung des Versetzungspaares in [01-10] Richtung. Die Burgers-Vektor Analyse (c) in dem von Abbildung (b) fouriergefilterten Bild identifiziert das Versetzungspaar als sogenannten Versetzungsdipol.

einen Winkel von 30° zur Verbindungslinie zwischen den beiden Durchstoßversetzungen des Versetzungspaares einnehmen. Damit bilden die beiden Durchstoßversetzungen einen sogenannten Versetzungsdipol [136], der sich dadurch auszeichnet, dass die entgegengerichteten Burgers-Vektoren zweier paralleler Versetzungslinien mit gleichgerichtetem Linienvektor $\mathbf{u}$ zu zwei Gleitebenen führen, die zwar parallel zueinander sind nicht aber die selbe Ebene im Kristall bilden. Somit ist bei einem Versetzungsdipol gemäß den Ausführungen in Kapitel 3.1 eine Interaktion der beiden Versetzungssegmente zu einer Versetzungshalbschleife nicht ohne einen Kletterprozess möglich, da die Halbschleife selbst als Verbindungssegment zwischen den beiden Durchstoßversetzungen eine Orientierung mit einer Komponente senkrecht zu den Gleitebenen aufweist.

Die Beobachtung der in diesen Proben charakteristischen Versetzungsdipole in der Aufsichtprojektion gab Anlass, basierend auf den experimentellen Burgers-Vektor Analysen den Versetzungsdipol in einem atomaren Modell zu implementieren, um durch vergleichende Bildsimulationen die experimentellen Beobachtungen hinsichtlich der Defektreduktion an der SiN_x Zwischenschicht zu verifizieren. Abbildung 5.9 zeigt das schrittweise Vorgehen zur manuellen Konstruktion des Versetzungsdipols, durchgeführt mit Hilfe des Hypercube HyperchemTM Softwarepakets [137]. Entscheidend für die Realisierung des Versetzungsmodells sind hierbei die in Abbildung 5.8 durchgeführten HRTEM Analysen. Ziel ist es, einen Versetzungsdipol zu implementieren, der entsprechend den Beobachtungen in Abbildung 5.7 und 5.8 in [01-10] Richtung orientiert ist und dessen entgegengerichtete $\mathbf{a}$ -Typ Burgers-Vektoren jeweils einen Winkel von 30° zur Verbindungslinie zwischen den Versetzungskernen des Dipols bilden. Aufgrund dieser Symmetrieeigenschaften des Dipols lässt sich die Entwicklung des Versetzungsmodells auf Grundlage der theoretischen Beschreibung einer Volterra-Konstruktion [114] realisieren. Ohne die kristallographischen Eigenschaften des Versetzungsdipols im Wesentlichen zu verändern, wird zur Vereinfachung der Konstruktion als Material reines AlN anstelle der ternären Legierung AlGaIn verwendet. Ausgangspunkt der Konstruktion ist eine defektfreie AlN Superzelle, dargestellt in Abbildung 5.9a, die aus insgesamt 17480 Atomen und 10 Al/N-Basisatomdoppellagen in [0001] Richtung besteht. Das Grundprinzip der Konstruktion lässt sich durch einen Schnitt (Volterra-Schnitt) der Superzelle entlang der [01-10] Richtung beschreiben, wobei die sich hieraus

ergebende eine Schnittfläche durch Translation des Kristalls um den gewünschten Burgers-Vektor gegen die andere Schnittfläche verschoben wird. An den beiden Schnittgrenzen sind

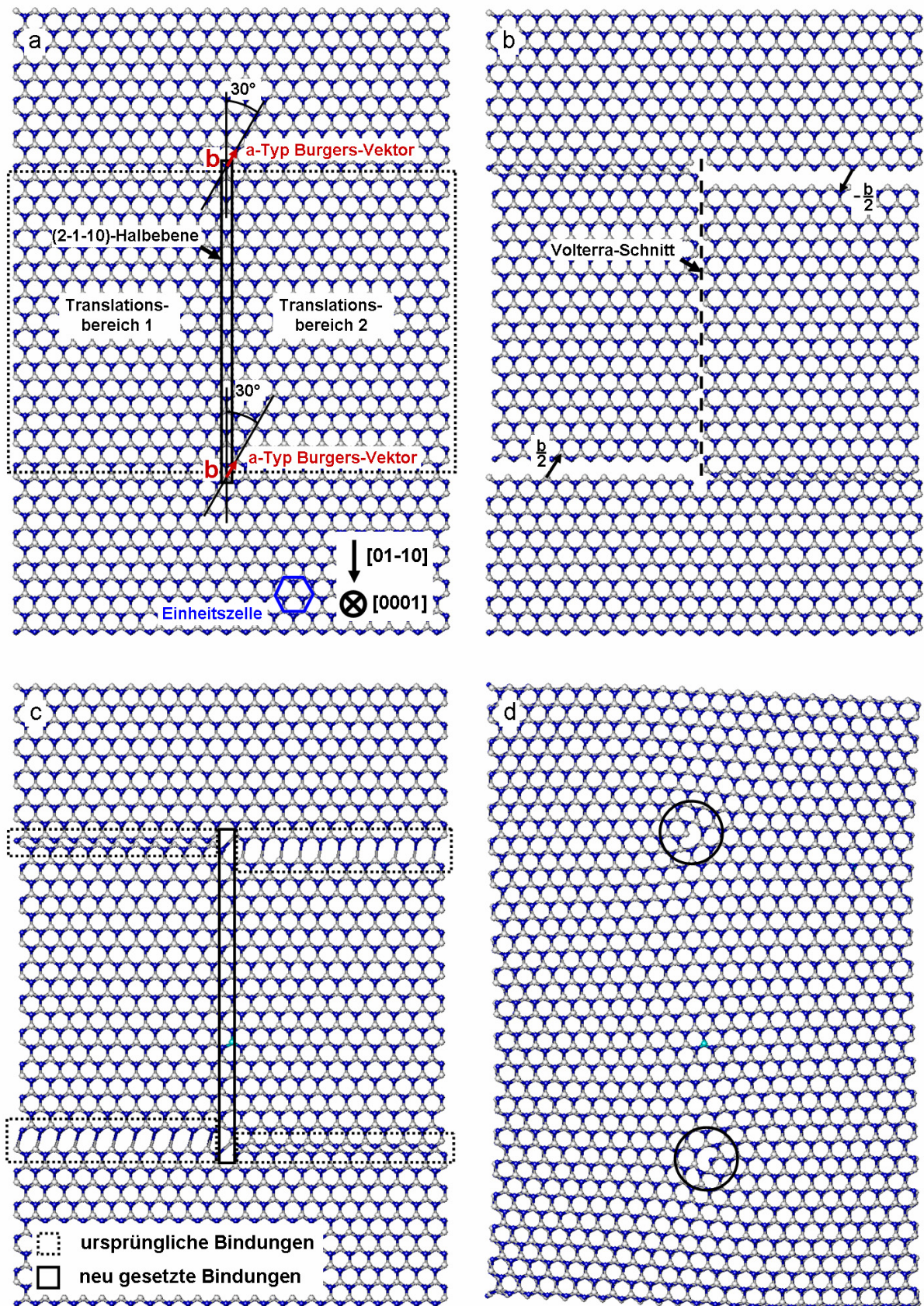


Abb. 5.9: Manuelle Implementierung des Versetzungsdipols in eine AlN Superzelle gemäß der theoretischen Beschreibung der Volterra-Konstruktion, dargestellt in den aufeinanderfolgenden Schritten a-d.

die zwei Durchstoßversetzungen des Dipols lokalisiert. Konkret wird die eine Schnittfläche durch Translation des Kristalls (Translationsbereich 1) um den geforderten in Abbildung 5.9a eingezeichneten **a**-Typ Burgers-Vektor verschoben. Hierdurch entsteht ein Materialüberlapp, der genau einer (2-1-10)-Halbebene entspricht und demzufolge entfernt werden muss (rechteckig markierter Bereich in Abbildung 5.9a). Die Verschiebung der Schnittfläche durch Translation des Kristalls nach Entfernen der (2-1-10)-Halbebene ist in Abbildung 5.9b dargestellt. Ebenfalls eingezeichnet ist der Bereich des durchgeführten Volterra-Schnitts. Um die im letzten Schritt mittels HyperchemTM berechnete Relaxation der Superzelle zu beschleunigen, werden anstelle einer Verschiebung nur des Translationsbereichs 1 um den **a**-Typ Burgers-Vektor beide Translationsbereiche gegeneinander verschoben, und zwar Translationsbereich 1 um $\frac{1}{2}\mathbf{b}$ und Translationsbereich 2 um $-\frac{1}{2}\mathbf{b}$, was einer äquivalenten Operation entspricht. Hierdurch befindet sich die Superzelle bereits näher am energetischen Minimum. Da softwarebedingt für die Translation eines Teilkristalls aus der Superzelle die Bindungen entfernt werden müssen, fehlen diese nicht nur im Bereich der entfernten Halbebene, sondern auch an den Randzonen der beiden Translationsbereiche. Wie Abbildung

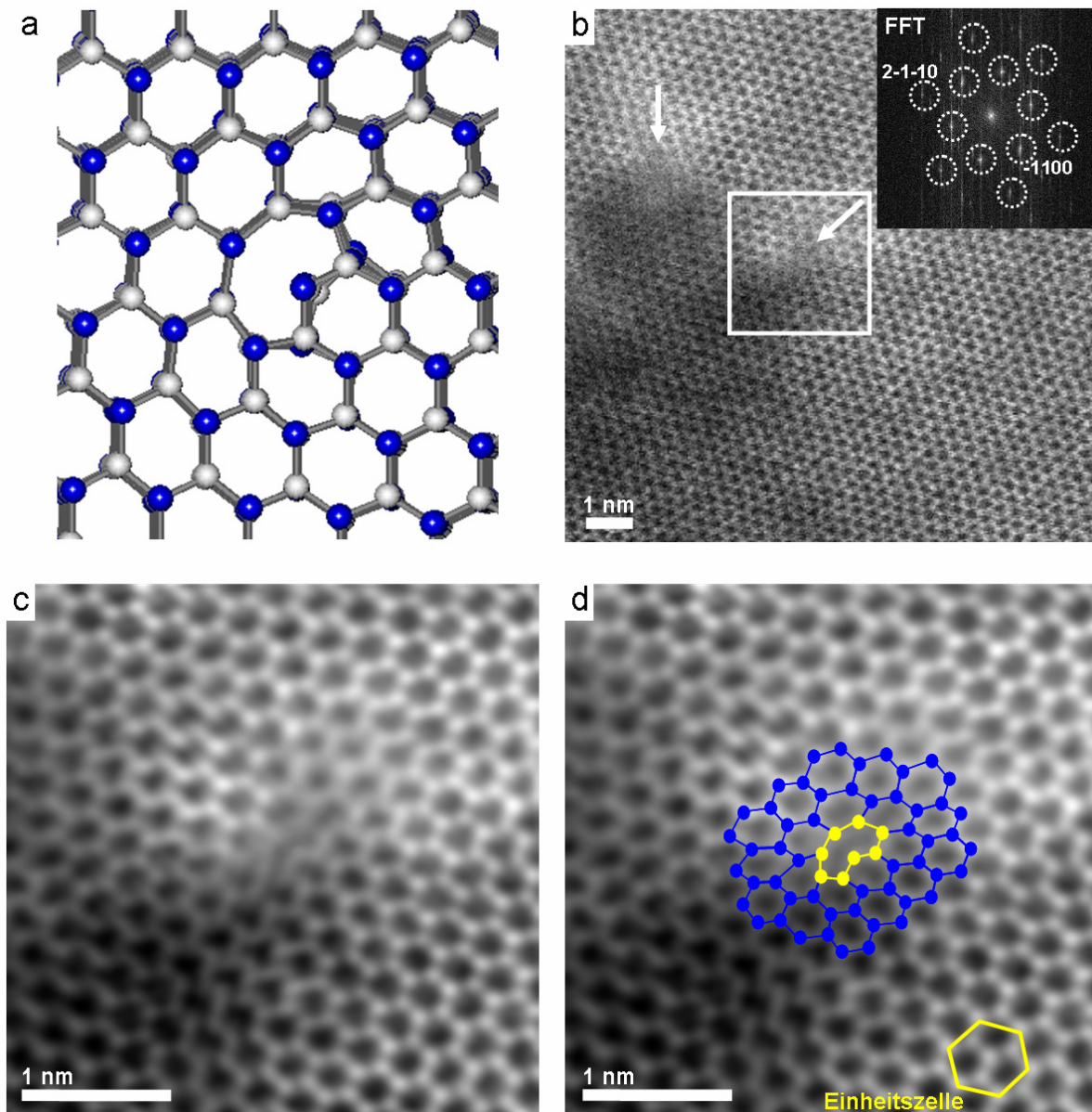


Abb. 5.10: Verifizierung der atomaren Struktur des Versetzungskerns im Modell mittels hochauflösender HAADF-STEM Aufnahmen von AlGaIn in der [0001] Projektion.

5.9c zeigt, werden im Anschluss sämtliche fehlenden Bindungen zwischen den Al-Atomen und N-Atomen gesetzt. Die gestrichelten Bereiche in Abbildung 5.9c kennzeichnen die Al-N Bindungen, die bereits in der defektfreien Superzelle vorhanden waren. Die im durchgezogenen Rechteck markierten Bindungen müssen aufgrund des Volterra-Schnitts in diesem Bereich neu gesetzt werden. Abbildung 5.9d zeigt das Ergebnis der im Anschluss durchgeführten Relaxation der Superzelle, die nach einer geometrischen Optimierung der 17480 Atompositionen realisiert wurde. Die mit HyperchemTM durchgeführte Berechnung erfolgte mittels eines molekularmechanischen Konjugierte-Gradienten-Verfahrens unter Benutzung eines Kraftfeldes vom Typ MM+ [138]. Die beiden sich ergebenden Versetzungskerne des Dipols sind in Abbildung 5.9d markiert. Es ist klar zu erkennen, dass die Superzelle nur im Bereich der beiden Versetzungen gestört ist, während alle Bereiche außerhalb der beiden Versetzungskerne abgesehen von elastischen Deformationsfeldern, die allerdings kristallographisch keine Defekte darstellen, defektfrei sind.

Abbildung 5.10a zeigt vergrößert die atomare Struktur des Versetzungskerns, wie sie sich nach der Relaxation des Versetzungsmodells ergibt. Der Versetzungskern wird gebildet durch einen Ring bestehend aus 8 Atomsäulen und ist als sogenannte „full-core“ Kernstruktur für **a**-Typ Durchstoßversetzungen in reinem GaN bekannt [139-141]. Die Richtigkeit des generierten Versetzungsmodells hinsichtlich der Kernstruktur der **a**-Typ Durchstoßversetzung in AlGaIn wurde experimentell mittels hochauflösenden HAADF-STEM Aufnahmen von Probe P3 im Bereich 1 überprüft¹. Abbildung 5.10b zeigt eine STEM Aufnahme aus der [0001] Projektion im Bereich von zwei **a**-Typ Durchstoßversetzungen (weiße Pfeile). Die fouriergefilterte Abbildung des weiß markierten Bereichs zeigt im Zentrum die atomare Struktur des Versetzungskerns (Abbildung 5.10c). Hinsichtlich des Auflösungsvermögens ist klar die erfolgte Trennung der direkt benachbarten Atomsäulen mit einem Abstand von 1.8Å zu erkennen. Zur Verdeutlichung der abgebildeten Kernstruktur ist diese in Abbildung 5.10d farblich hervorgehoben. Somit zeigen die hochauflösenden HAADF-STEM Untersuchungen die direkte Übereinstimmung der atomaren Struktur des Versetzungskerns im AlGaIn mit der im Versetzungsmodell.

5.3.2 Vergleichende Bildsimulation

Um die Richtigkeit des aus Aufsichtsuntersuchungen entwickelten Modells des Versetzungsdipols zu überprüfen, wurden an diesem Bildsimulationen unter Verwendung der in Kapitel 4.5 beschriebenen Multislice-Methode durchgeführt. Dabei wurde eine Übereinstimmung zwischen den simulierten und den experimentellen Bildkontrasten hinsichtlich einer Burgers-Vektor Analyse sowohl in der Hochauflösung als auch unter Verwendung der WBDF Technik gefordert. Die Aufnahme der experimentellen Hellfeld- und WBDF-Abbildungen wie auch die HRTEM Analyse in Abbildung 5.8 erfolgte am CM-20 nahe des Scherzer Defokus. In Übereinstimmung mit den experimentellen Mikroskopparametern wurden für die Bildsimulationen die in Tabelle 4.1 für das CM-20 angegebenen Abbildungsparameter verwendet. Abbildung 5.11 zeigt das Ergebnis der WBDF Bildsimulationen, durchgeführt jeweils unter der **g**-3**g** Bedingung für den 2-1-10 und den 0002 Reflex. Wie in Abbildung 5.11a dargestellt, zeigen die nahe der [01-10] Zone durchgeführten Simulationen den Versetzungsdipol in einer Querschnittsprojektion, die in Richtung der Verbindungslinie der beiden Versetzungskerne weist. In Übereinstimmung mit der experimentellen WBDF Analyse in Abbildung 5.2 kann durch die beiden Bildsimulationen das **g**•**b** Auslöschkriterium eindeutig verifiziert werden. Während in Abbildung 5.11b unter Verwendung des 2-1-10 Reflexes die Propagation der Durchstoßversetzung in [0001] Richtung klar sichtbar ist, wird bei Verwendung des 0002

¹ Durchgeführt am MINATEC Forschungszentrum in Grenoble/Frankreich an einem TITAN 80-300 mit STEM Aberrationskorrektor

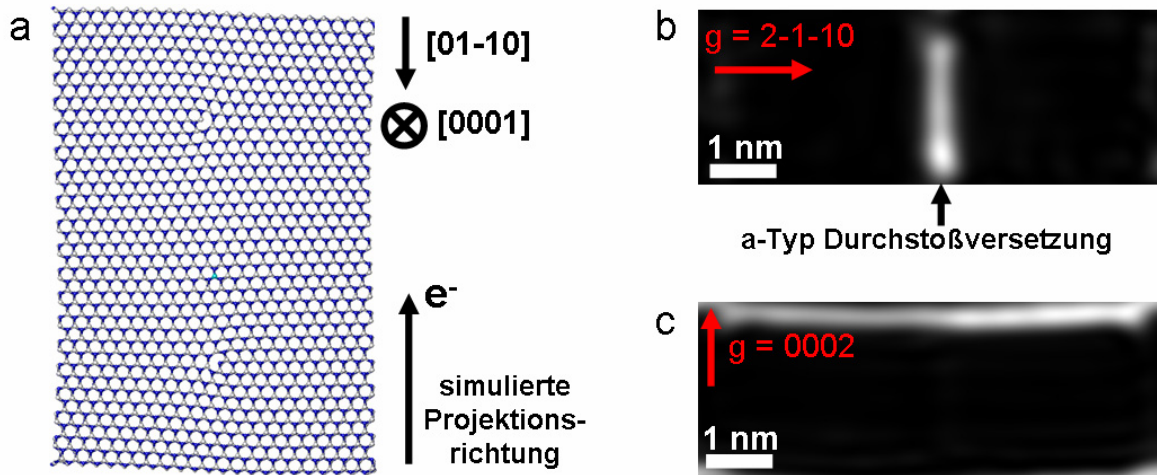


Abb. 5.11: Verifizierung des implementierten Versetzungsmodells hinsichtlich einer Burgers-Vektor Analyse durch Evaluation des $\mathbf{g} \cdot \mathbf{b}$ Auslöschkriteriums anhand von WBDF Bildsimulationen in der Querschnittsprojektion. Die beiden $\mathbf{g} \cdot 3\mathbf{g}$ WBDF Multislice-Simulationen identifizieren die Durchstoßversetzung eindeutig als Stufenversetzung mit einem Burgers-Vektor vom Typ **a**.

Reflexes in Abbildung 5.11c kein Versetzungscontrast hervorgerufen. Gemäß dem Auslöschkriterium kann die abgebildete Versetzungslinie eindeutig als reine Stufenversetzung mit einem Burgers-Vektor vom Typ **a** identifiziert werden. Da aufgrund der gewählten Projektionsrichtung beide Versetzungslinien des Dipols genau hintereinander liegen, ist dieser nur in Form einer Versetzungslinie in Abbildung 5.11b sichtbar. Somit ist das entwickelte Versetzungsmodell konsistent mit den experimentellen Untersuchungen hinsichtlich einer WBDF Analyse unter Verwendung des $\mathbf{g} \cdot \mathbf{b}$ Auslöschkriteriums.

Gemäß der in Abbildung 5.9 beschriebenen Implementierung des Versetzungsdipols sollten

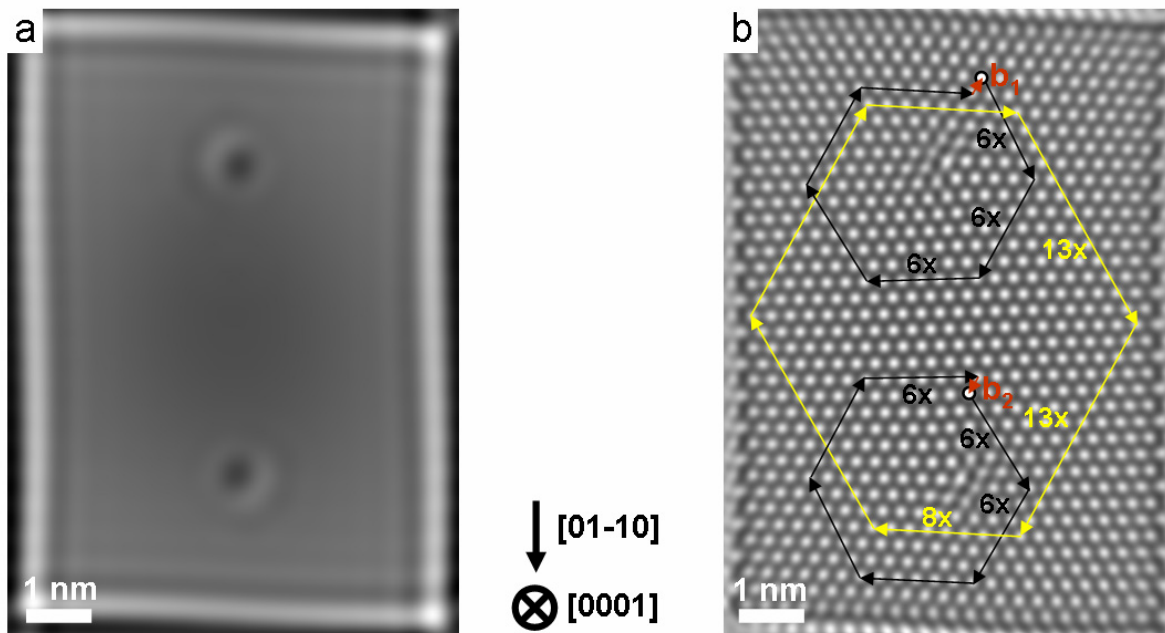


Abb. 5.12: Multislice-Simulationen in der $[0001]$ Aufsichtprojektion. Die simulierte Hellfelddaufnahme (a) zeigt klar das in $[01-10]$ Richtung orientierte Versetzungspaar im Beugungscontrast in Form zweier dunkler Punkte im Bereich der Versetzungskerne. In Übereinstimmung mit den experimentellen Beobachtungen (vgl. Abbildung 5.8) identifiziert die HRTEM Simulation (b) die beiden **a**-Typ Durchstoßversetzungen als Versetzungsdipol.

Multislice-Simulationen in der [0001] Aufsichtsprjektion hinsichtlich einer Burgers-Vektor Analyse mit den in Abbildung 5.8 durchgeführten Untersuchungen ebenfalls konsistent sein. Die Verifizierung des Versetzungsmodells mittels Bildsimulationen in der Aufsichtsprjektion ist in Abbildung 5.12 dargestellt. Abbildung 5.12a zeigt die aus dem Versetzungsmodell simulierte Hellfeldaufnahme des Versetzungsdipols. In Übereinstimmung mit den experimentellen Hellfeldaufnahmen der Versetzungspaare in den Abbildungen 5.7 und 5.8a sind die beiden Versetzungskerne des Dipols im Beugungskontrast als dunkle, punktförmige Bereiche sichtbar. Der Implementierung des Versetzungsmodells entsprechend zeigt auch die Bestimmung des Burgers-Vektors in der HRTEM Simulation (Abbildung 5.12b) die Übereinstimmung mit der Burgers-Vektor Analyse in der experimentellen HRTEM Aufnahme in Abbildung 5.8c. Die beiden Burgers-Vektoren $\mathbf{b}_1$ und $\mathbf{b}_2$ des in [01-10] Richtung orientierten Dipols sind entgegengerichtet und vom Typ **a**. Des Weiteren bilden sie genau wie im Experiment jeweils einen Winkel von 30° zur Verbindungslinie zwischen den beiden Versetzungskernen des Dipols. Somit zeigen die sowohl in der Aufsichts- als auch in der Querschnittsprjektion durchgeführten Bildsimulationen die Anwendbarkeit des implementierten Versetzungsmodells auf die im Experiment beobachteten Versetzungsdipole.

5.3.3 SiN_x bedingte Interaktion der Versetzungsdipole und Erweiterung des Versetzungsmodells

Aufgrund der ausgeprägten Präsenz der Versetzungsdipole in den untersuchten AlGaIn Aufsichtsprben und der Korrelation des mittleren Abstands zwischen den **a**-Typ Durchstoßversetzungen eines Dipols mit der mittleren Ausdehnung der in den Querschnittsprben beobachteten Versetzungshalbschleifen, wurden die Durchstoßversetzungen eines Dipols hinsichtlich einer möglichen Interaktion zu Versetzungshalbschleifen zunächst theoretisch im Modell untersucht. Experimentell wäre die Wechselwirkung der beiden **a**-Typ Durchstoßversetzungen eines Dipols entsprechend den Ausführungen in Kapitel 5.2 bedingt durch das laterale Überwachsen der SiN_x Nanoinseln mit AlGaIn im weiteren Wachstumsprozess. Generell ist es möglich, dass durch Wechselwirkung zweier Versetzungen mit den Burgers-Vektoren $\mathbf{b}_1$ und $\mathbf{b}_2$ eine neue Versetzung mit dem Burgers-Vektor $\mathbf{b}_3 = \mathbf{b}_1 + \mathbf{b}_2$ entsteht [76]. Sind, wie im untersuchten Versetzungsdipol, die Burgers-Vektoren der beiden Versetzungen mit gleichgerichteten Linienvektoren ($\mathbf{u}_2 = \mathbf{u}_1$)

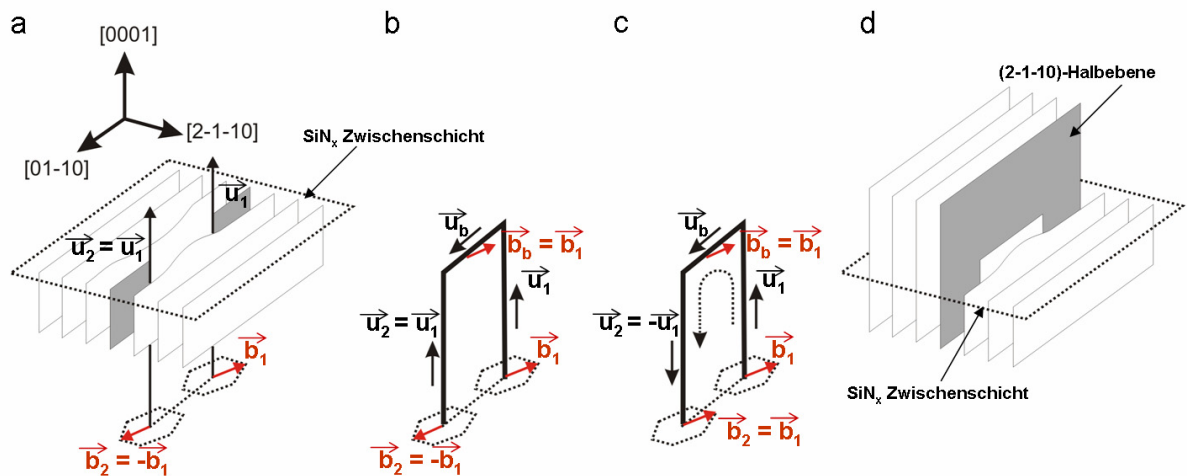


Abb. 5.13: Schematische Darstellung zur Entstehung der Versetzungshalbschleife aus dem **a**-Typ Versetzungsdipol an der SiN_x Zwischenschicht. Die Versetzungshalbschleife ergibt sich aus einem an der SiN_x Zwischenschicht endenden Volterra-Schnitt. Anschaulich entsteht die basale Verbindung der beiden Durchstoßversetzungen durch den Einschub einer (2-1-10)-Halbebene.

entgegengerichtet ($\mathbf{b}_2 = -\mathbf{b}_1$), kann sich eine geschlossene Versetzungshalbschleife ausbilden, die eine weitere Propagation der beiden Durchstoßversetzungen zur Wachstumsoberfläche verhindert. Abbildung 5.13a zeigt anschaulich in einer Netzebenenendarstellung nochmals den implementierten und im Experiment verifizierten Versetzungsdipol. Entsprechend der in den Abbildungen 5.8c und 5.12b dargestellten Burgers-Vektor Analyse in der Hochauflösung impliziert der gleiche Drehsinn der beiden Burgers-Umläufe, dass die Linienvektoren der beiden Durchstoßversetzungen des Dipols in gleicher Richtung orientiert sind ($\mathbf{u}_2 = \mathbf{u}_1$), wobei sich hieraus zwei entgegengerichtete Burgers-Vektoren ergeben ($\mathbf{b}_2 = -\mathbf{b}_1$). In der Netzebenenendarstellung in Abbildung 5.13a ist klar die Entstehung des Versetzungsdipols durch das Fehlen einer (2-1-10)-Halbebene, bedingt durch den Volterra-Schnitt, zu erkennen. Abbildung 5.13b veranschaulicht schematisch die SiN_x bedingte Interaktion der beiden Durchstoßversetzungen. Entsprechend der lateralen Wachstumsrichtung von AlGaIn beim Überwachsen der SiN_x Nanoinseln ändert die Durchstoßversetzung mit dem Linienvektor $\mathbf{u}_1$ und dem Burgers-Vektor $\mathbf{b}_1$ ihre vertikale Propagation in eine basale Richtung mit dem Linienvektor $\mathbf{u}_b$. Da es sich bei der Ausbildung der Basalversetzung $\mathbf{u}_b$ nur um eine Richtungsänderung der Durchstoßversetzung $\mathbf{u}_1$ handelt, kann der Basalversetzung der identische Burgers-Vektor $\mathbf{b}_b = \mathbf{b}_1$ zugeordnet werden. Tritt die Basalversetzung $\mathbf{u}_b$ mit der Durchstoßversetzung $\mathbf{u}_2$ in Wechselwirkung, bildet sich aufgrund der entgegengerichteten Burgers-Vektoren ($\mathbf{b}_2 = -\mathbf{b}_b$) eine Versetzungshalbschleife aus. Gemäß der in Abbildung 5.9 beschriebenen Implementierung des Versetzungsdipols mittels eines Volterra-Schnitts entlang der [01-10] Richtung und Verschiebung der einen Schnittfläche gegen die Andere um einen entsprechenden a-Typ Burgers-Vektor mit Entnahme einer (2-1-10)-Halbebene, kann der Versetzungsdipol auch charakterisiert werden durch zwei Versetzungslinien mit entgegengerichteten Linienvektoren ($\mathbf{u}_2 = -\mathbf{u}_1$) und identischen Burgers-Vektoren ($\mathbf{b}_2 = \mathbf{b}_1$), da das Versetzungspaar aus einem Volterra-Schnitt hervorgeht. Entsprechend kann die gesamte Versetzungshalbschleife beschrieben werden als eine zusammenhängende Versetzungslinie mit dem Linienvektor $\mathbf{u}$ und einem Burgers-Vektor $\mathbf{b}_1 = \mathbf{b}_b = \mathbf{b}_2$ (Abbildung 5.13c). Die Versetzungshalbschleife ergibt sich somit aus der in Abbildung 5.9 beschriebenen Volterra-Konstruktion, wobei der Volterra-Schnitt an der SiN_x Zwischenschicht endet. Anschaulich entspricht das Ersetzen der vertikalen Propagation zweier a-Typ Durchstoßversetzungen durch den horizontalen Verlauf einer Basalversetzung dem Einschub einer zusätzlichen (2-1-10) Halbebene, wie in Abbildung 5.13d dargestellt. In diesem Zusammenhang kann

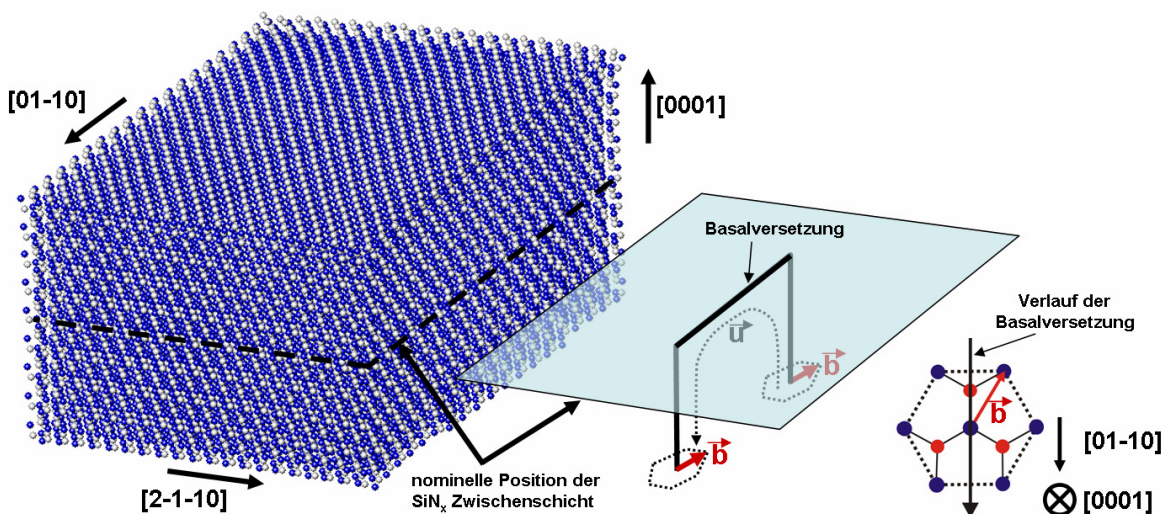


Abb. 5.14: AlN Superzelle mit implementierter Versetzungshalbschleife gemäß der Darstellung in Abbildung 5.13 nach Relaxation mittels einer geometrischen Optimierung von 28888 Atompositionen. Ebenfalls dargestellt ist schematisch die Lage der Versetzungshalbschleife in der Superzelle.

abgesehen von einer wachstumsinduzierten Änderung des Versetzungsverlaufs in eine basale Richtung durch das laterale Überwachen der SiN_x Nanoinseln mit AlGaN auch ein verspannungsinduzierter Mechanismus in Betracht gezogen werden. Unter der Annahme einer tensilen Restverspannung im Bereich der SiN_x Zwischenschicht könnte diese durch den Einschub einer Halbebene abgebaut werden. Es bleibt zu erwähnen, dass dem Mechanismus der beschriebenen Interaktion der beiden **a**-Typ Durchstoßversetzungen des Dipols auf atomarer Ebene ein Kletterprozess in Kombination mit einem Gleiten der Versetzung zugrunde liegt, da der Linienvektor $\mathbf{u}_b$ der Basalversetzung sowohl eine Komponente senkrecht als auch parallel zu den beiden Gleitebenen aufweist.

Entsprechend des in Abbildung 5.13 beschriebenen Interaktionsprozesses der beiden **a**-Typ Durchstoßversetzungen des Dipols wurde nun das in Kapitel 5.3.1 entwickelte Versetzungsmodell hinsichtlich einer Halbschleifenbildung erweitert. Ausgangspunkt hierzu ist das in Abbildung 5.9c dargestellte Versetzungsmodell des Dipols vor der Relaxation der Superzelle. Wie in Abbildung 5.13 beschrieben, basiert die Bildung der Versetzungshalbschleife auf einem an der SiN_x Zwischenschicht endenden Volterra-Schnitt. Im Versetzungsmodell wird dies realisiert durch das Aufsetzen einer defektfreien AlN Deckschicht in [0001] Richtung auf die (0001) Basalebene des in Abbildung 5.9c dargestellten nicht relaxierten Modells des Versetzungsdipols. Die laterale Ausdehnung der Deckschicht in [01-10] und [2-1-10] Richtung ist dabei identisch mit der defektfreien Superzelle aus Abbildung 5.9a. In [0001] Richtung besteht die Superzelle der Deckschicht aus 8 Al/N-Basisatomdoppellagen, sodass sich die erweiterte Superzelle aus insgesamt 28888 Atomen zusammensetzt. Durch manuelles Setzen der Al-N Bindungen wird die defektfreie Superzelle der Deckschicht mit der Superzelle des implementierten Versetzungsdipols verbunden. Abbildung 5.14 zeigt das Ergebnis der im Anschluss durchgeführten Relaxation der gesamten Superzelle, die nach einer geometrischen Optimierung aller Atompositionen mittels HyperchemTM realisiert wurde. Ebenfalls dargestellt ist die Lage der Versetzungshalbschleife in der AlN Superzelle.

Abbildung 5.15 zeigt die am implementierten Versetzungsmodell aus Abbildung 5.14 durchgeführten **g**-3 $\mathbf{g}$ WBDF Multislice-Simulationen zur Verifizierung des **g**•**b** Auslöschkriteriums. Die Simulationen in Abbildung 5.15a und b wurden nahe der [01-10] Zone unter Verwendung des 2-1-10 bzw. 0002 Reflexes durchgeführt. Hierbei sind die simulierten Versetzungskontraste hinsichtlich des Auslöschkriteriums konsistent mit den experimentellen Beobachtungen aus Abbildung 5.2. Während unter Verwendung des 2-1-10 Reflexes die Propagation der Durchstoßversetzung in [0001] Richtung klar sichtbar ist, wird bei Verwendung des 0002 Reflexes kein Versetzungskontrast hervorgerufen. Dies identifiziert die Durchstoßversetzung analog zu den in Abbildung 5.11 durchgeführten Simulationen als

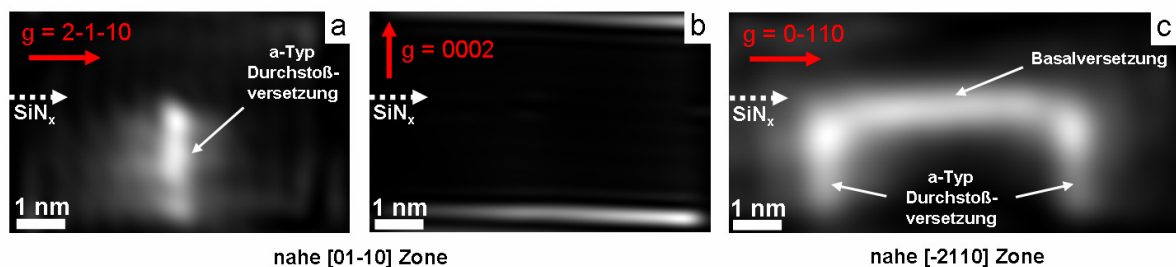


Abb. 5.15: Verifizierung des **g**•**b** Auslöschkriteriums mittels WBDF Multislice-Simulationen am implementierten Modell der Versetzungshalbschleife. Simulation (a) zeigt aufgrund der gewählten [01-10] Projektionsrichtung eine **a**-Typ Durchstoßversetzung, die an der nominellen SiN_x Zwischenschicht zu terminieren scheint. Bei Wahl des 0002 Reflexes (b) wird kein Versetzungskontrast erzeugt. In Übereinstimmung mit der experimentellen WBDF Aufnahme in Abbildung 5.4a zeigt die WBDF Simulation in der Einstrahlrichtung senkrecht zur Halbschleifenebene bei Verwendung des 0-110 Reflexes die gebildete Versetzungshalbschleife.

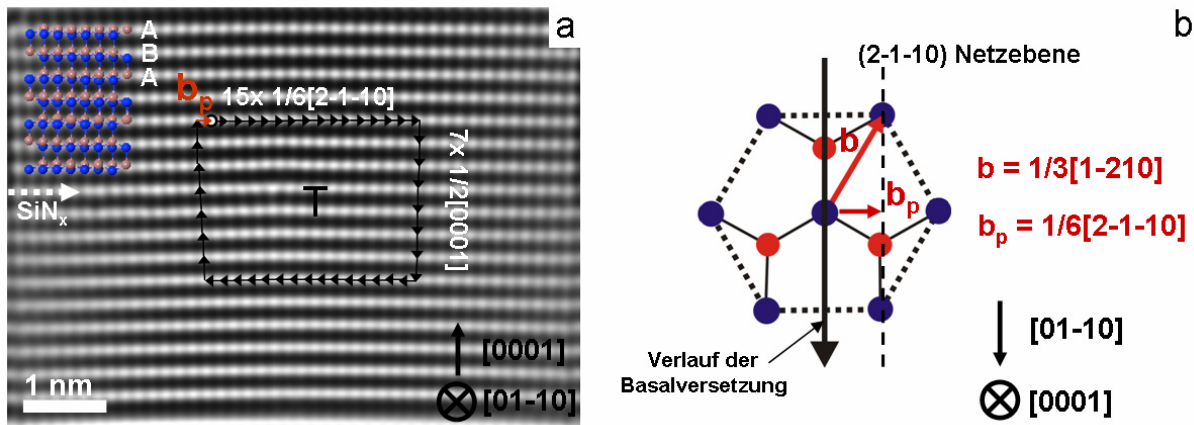


Abb. 5.16: HRTEM Multislice-Simulation am Modell der implementierten Versetzungshalbschleife in der [01-10] Projektion. Die basale Versetzungslinie im Bereich der nominell deponierten SiN_x Zwischenschicht verläuft senkrecht zur Projektionsebene. Mit dem in der Simulation ausgeführten Burgers-Umlauf wird ein projizierter Burgers-Vektor $\mathbf{b}_p$ mit einer Notation von $1/6[2-1-10]$ gemessen (a). In (b) ist die Ursache für die projektionsbedingte Abweichung zwischen dem gemessenen Burgers-Vektor $\mathbf{b}_p$ und dem tatsächlichen $\mathbf{a}$ -Typ Burgers-Vektor $\mathbf{b} = 1/3[1-210]$ der Versetzungshalbschleife schematisch dargestellt.

reine Stufenversetzung vom Typ **a** entsprechend der angewandten Methode zur Implementierung des Versetzungsdipols. Aufgrund der für die Simulation gewählten [01-10] Einstrahlrichtung ist der Versetzungsdipol in Abbildung 5.15a als solcher nicht zu erkennen, da die beiden Versetzungslinien des Dipols in der betrachteten Projektionsrichtung hintereinander liegen. Vielmehr zeigt der Versetzungskontrast in Abbildung 5.15a eine Versetzungslinie, die an der nominellen SiN_x Zwischenschicht zu terminieren scheint. Der Nachweis zur Existenz zweier Durchstoßversetzungen und deren Interaktion über eine Basalversetzung zur Versetzungshalbschleife wird in Übereinstimmung mit dem Auslöschkriterium durch eine WBDF Simulation nahe der $[-2110]$ Zone unter Verwendung des 0-110 Reflexes in Abbildung 5.15c erbracht. In der Projektionsrichtung senkrecht zur Halbschleifenebene zeigt der simulierte Versetzungskontrast in Übereinstimmung mit der experimentellen WBDF Aufnahme in Abbildung 5.4a die Ausbildung der Versetzungshalbschleife durch Interaktion zweier **a**-Typ Durchstoßversetzungen über eine Basalversetzung.

Interessant ist darüber hinaus eine Burgers-Vektor Analyse an einer HRTEM Multislice-Simulation aus der [01-10] Zone, d.h. aus einer Einstrahlrichtung parallel zur Versetzungslinie der Basalversetzung, da diese Aufschluss gibt über mögliche Abweichungen des aus dem Burgers-Umlauf gemessenen Burgers-Vektors vom tatsächlichen Burgers-Vektor einer Versetzung. Eine nicht vorhandene Übereinstimmung zwischen dem aus dem Burgers-Umlauf bestimmten Burgers-Vektor einer Versetzung und dem tatsächlichen Burgers-Vektor kann abhängig von der Orientierung des Burgers-Vektors relativ zur Einstrahlrichtung projektionsbedingt sein. Abbildung 5.16a zeigt die HRTEM Simulation aus der [01-10] Projektion am Modell der implementierten Versetzungshalbschleife unter den Abbildungsbedingungen des CM-20 im Scherzer-Defokus. Ebenfalls eingezeichnet ist der Burgers-Umlauf um die senkrecht zur Projektionsebene verlaufende basale Versetzungslinie und der sich hieraus ergebende Burgers-Vektor. Das über die Multislice-Simulation gelegte atomare AlN Gitter demonstriert, dass der kleinste atomare Abstand von $0.6\text{\AA}$ zwischen der Aluminium- und Stickstoffsäule in der [01-10] Projektion nicht aufgelöst wird und die Schrittweite des Burgers-Umlaufs in lateraler Richtung dem Netzebenenabstand der (2-1-10) Netzebene und in vertikaler Richtung dem Netzebenenabstand der (0002) Netzebene entspricht. Die Schrittweiten lassen sich also jeweils durch eine kristallographische Notation von $1/6[2-1-10]$ bzw. $1/2[0001]$ identifizieren. Der sich aus dem Umlauf ergebende projizierte

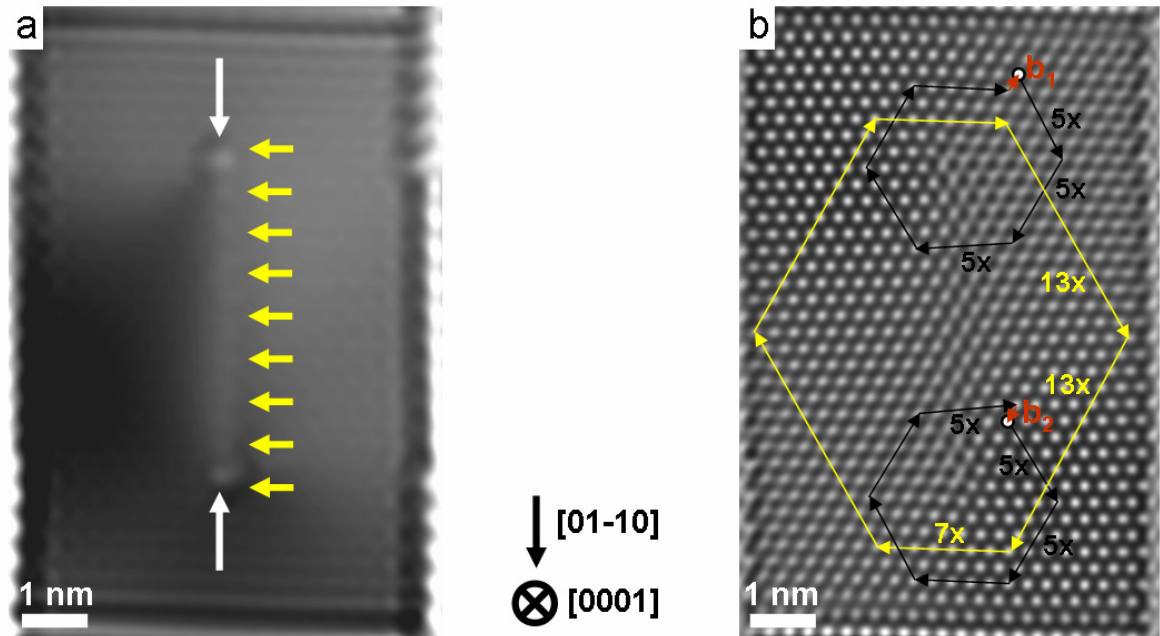


Abb. 5.17: Multislice-Simulationen in der [0001] Aufsichtsprjektion am Modell der implementierten Versetzungshalbschleife. Die Hellfeldsimulation (a) zeigt im Beugungskontrast das basale Versetzungssegment der Versetzungshalbschleife als Verbindungslinie zwischen den beiden **a**-Typ Durchstoßversetzungen des Dipols. Auch bei Ausbildung einer Versetzungshalbschleife ist in der HRTEM Simulation der Versetzungsdipol zu identifizieren (b).

Burgers-Vektor $\mathbf{b}_p$ ist vom Typ $1/6[2-1-10]$ und hat demzufolge einen Betrag, der der Hälfte des **a**-Typ Burgers-Vektors mit der Notation $1/3[1-210]$ entspricht, obwohl der gesamten Versetzungshalbschleife entsprechend dem implementierten Versetzungsmodell ein Burgers-Vektor **b** vom Typ **a** zuzuordnen ist. Die Ursache hierfür liegt an dem zur Projektionsebene nicht parallelen Verlauf des **a**-Typ Burgers-Vektors, wie Abbildung 5.16b verdeutlicht. Aufgrund der Orientierung des der Versetzungshalbschleife zuzuordnenden **a**-Typ Burgers-Vektors **b** mit der Notation $1/3[1-210]$ in eine Richtung von 30° zur basalen Versetzungslinie wird mit dem Burgers-Umlauf in der simulierten Projektionsrichtung nur ein Burgers-Vektor mit der Notation $1/6[2-1-10]$ gemessen.

Zur vollständigen transmissionselektronenmikroskopischen Beschreibung des im Modell implementierten Interaktionsprozesses des Versetzungsdipols ist noch eine Versetzungsanalyse anhand von Multislice-Simulationen in der [0001] Aufsichtsprjektion notwendig. Abbildung 5.17 zeigt in Analogie zu Abbildung 5.12 die simulierten Bildkontraste der Versetzungshalbschleife in der [0001] Aufsichtsprjektion. In der Hellfeldsimulation in Abbildung 5.17a ist im Beugungskontrast klar das basale Versetzungssegment der Versetzungshalbschleife in Form einer Verbindungslinie (gelbe Pfeile) zwischen den beiden Durchstoßversetzungen des Dipols (weiße Pfeile) sichtbar. Die Burgers-Vektor Analyse in der HRTEM Simulation in Abbildung 5.17b zeigt, dass trotz der Verbindung der beiden **a**-Typ Durchstoßversetzungen durch eine basale Versetzungslinie diese nach wie vor als Versetzungsdipol identifiziert werden können. Werden wie beschrieben die **a**-Typ Durchstoßversetzungen in den untersuchten AlGaIn Proben bedingt durch die SiN_x Zwischenschicht tatsächlich durch die Ausbildung von Halbschleifen aus zwei Durchstoßversetzungen mit einem Abstand von nur wenigen Nanometern in Form einer Dipolinteraktion an einer weiteren Propagation gehindert, sollten die basalen Anteile der Versetzungshalbschleifen entsprechend dem simulierten Kontrast in Abbildung 5.17a auch im Experiment an Aufsichtsprjektionen nachzuweisen sein. Auch die Versetzungsanalyse in der Hochauflösung an einem basalen Versetzungssegment sollte mit dem Ergebnis aus Abbildung

5.17b übereinstimmen. Die experimentelle Überprüfung hierzu erfolgt im nachfolgenden Kapitel.

5.3.4 Verifizierung der betrachteten Dipolinteraktion im Experiment

Bezugnehmend auf den Vergleich zwischen den experimentellen WBDF Aufnahmen in den Abbildungen 5.2 und 5.4a und den simulierten Versetzungscontrasten in Abbildung 5.15 wurde hinsichtlich des $\mathbf{g} \cdot \mathbf{b}$ Auslöschkriteriums die Anwendbarkeit des implementierten Versetzungsmodells zur Dipolinteraktion gezeigt. Nun wird auch die modellierte Dipolinteraktion bezüglich einer Burgers-Vektor Analyse in der Hochauflösung sowohl in der Querschnitts- als auch in der Aufsichtsprjektion im Experiment auf Konsistenz überprüft. Darüber hinaus soll auch die beschriebene Dipolinteraktion im Bereich der SiN_x Zwischenschicht durch die Aufnahme basaler Versetzungssegmente im Hellfeld in der Aufsichtsprjektion nachgewiesen werden.

Abbildung 5.18a zeigt eine WBDF Aufnahme nahe der [01-10] Zone unter Verwendung des 2-1-10 Reflexes im Bereich der SiN_x Zwischenschicht. Neben den ausgebildeten **a**-Typ Versetzungshalbschleifen ist in der betrachteten Projektionsrichtung eine **a**-Typ Durchstoßversetzung zu sehen, die analog zum simulierten Versetzungscontrast in Abbildung 5.15a an der SiN_x Zwischenschicht zu terminieren scheint. Die HRTEM Aufnahme aus der [01-10] Zone in Abbildung 5.18b ermöglicht eine Burgers-Vektor Analyse der Durchstoßversetzung an der SiN_x Zwischenschicht. Zur Verbesserung des Signal-Rausch-Verhältnisses wurde die Aufnahme unter Verwendung der {0002} und {2-1-10} Reflexe fouriergefiltert (Abbildung 5.18c). Der nicht geschlossene Burgers-Umlauf ergibt in der gewählten Projektion einen Burgers-Vektor $\mathbf{b}_p$ mit der Notation $1/6[2-1-10]$ und entspricht dem halben **a**-Typ Burgers-Vektor in Übereinstimmung mit der in Abbildung 5.16 durchgeführten Burgers-Vektor Analyse an der simulierten HRTEM Aufnahme. Dies lässt den Schluss zu, dass die untersuchte **a**-Typ Durchstoßversetzung gemäß dem Modell der Versetzungshalbschleife nicht an der SiN_x Zwischenschicht terminiert, sondern wachstumsbedingt die Propagation in eine basale Richtung ändert und einen Verlauf senkrecht zur Projektionsebene aufweist.

Für den Nachweis der Versetzungshalbschleifen in der [0001] Aufsichtsprjektion wurde wie für die Aufsichtsaufnahmen in Kapitel 5.3.1 die Probe P3 untersucht. Um die Versetzungshalbschleifen in der [0001] Projektion zu erfassen, entspricht allerdings das nun untersuchte Probengebiet gemäß den Ausführungen in Kapitel 5.1 dem Bereich 2, der die AlGaIn Schicht unterhalb der SiN_x Zwischenschicht, die SiN_x Zwischenschicht selbst und die

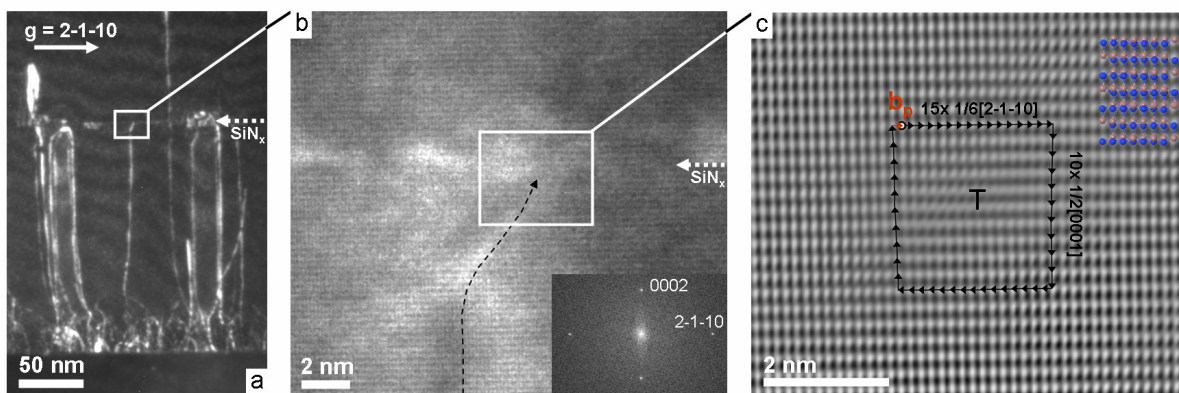


Abb. 5.18: HRTEM Burgers-Vektor Analyse an einer an der SiN_x Zwischenschicht zu terminieren scheinenden **a**-Typ Durchstoßversetzung. Die 2-1-10 WBDF Aufnahme (a) identifiziert die Versetzung gemäß dem Auslöschkriterium als **a**-Typ Stufenversetzung. Die Burgers-Vektor Analyse in der aus (b) fouriergefilterten HRTEM Aufnahme (c) ergibt einen projizierten Burgers-Vektor $\mathbf{b}_p$ mit der Notation $1/6[2-1-10]$ in Übereinstimmung mit der in Abbildung 5.16 durchgeführten Analyse im Modell.

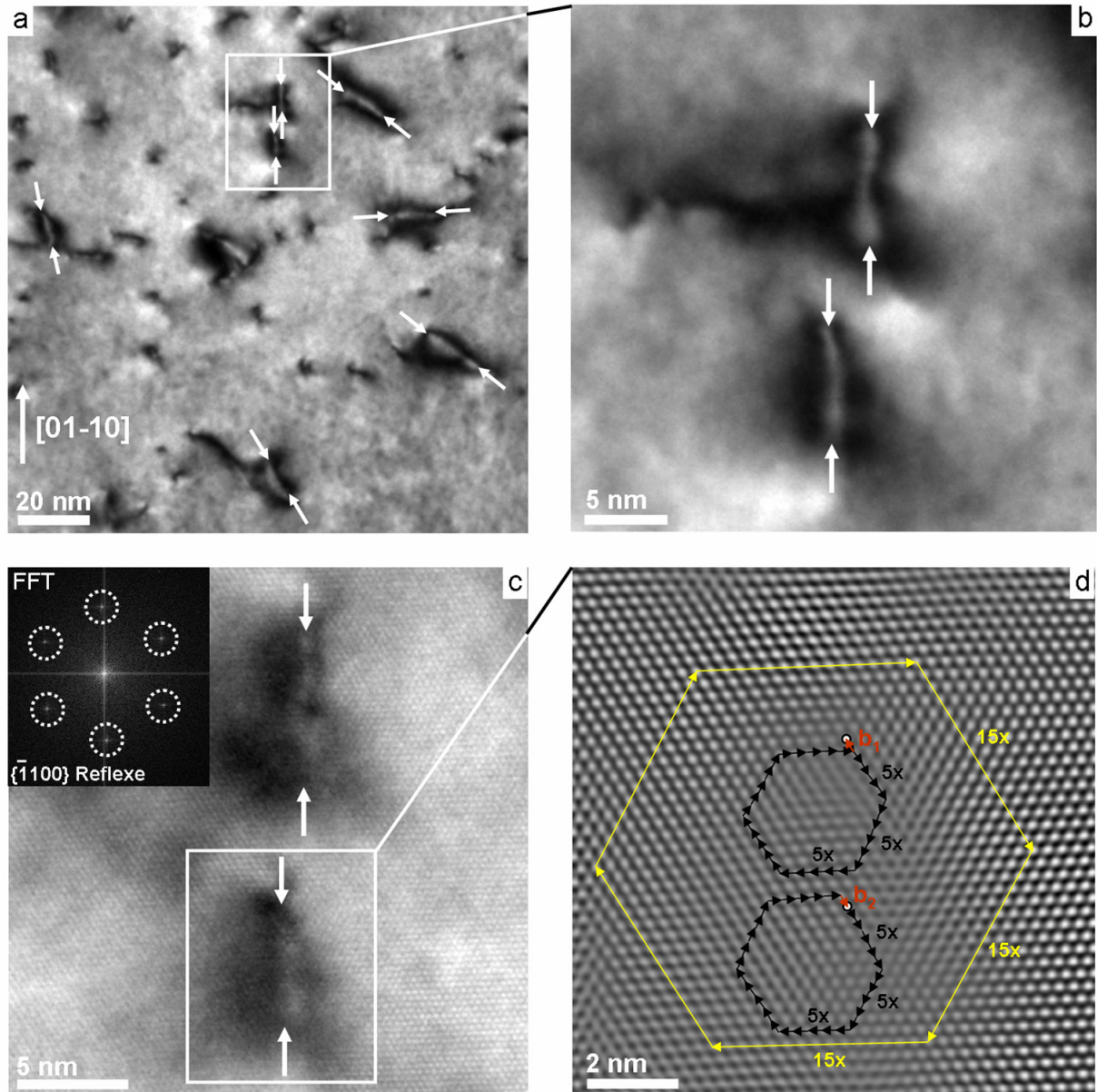


Abb. 5.19: Nachweis der basalen Versetzungssegmente durch Aufsichtsuntersuchungen der Probe P3 im Bereich 2. Die Hellfeldaufnahme (a) und (b) zeigt in Übereinstimmung mit der Simulation in Abbildung 5.17a die basale Verbindung der Versetzungsdipole im Beugungskontrast. In Einklang mit der HRTEM Simulation in Abbildung 5.17b identifiziert die Burgers-Vektor Analyse (d) in der aus (c) fouriergefilterten HRTEM Aufnahme den Dipol einer Versetzungshalbschleife.

auf eine Restdicke von ca. 50nm abgeätzte AlGaIn Deckschicht enthält. Während den Untersuchungen hat sich gezeigt, dass der insbesondere für die Hochauflösung untersuchbare Bereich 2 mit maximal 2µm in lateraler Richtung weg vom Präparationsloch aufgrund der schnell zunehmenden Probendicke relativ klein ist. Dennoch ist es gelungen, die Versetzungshalbschleifen auch in der [0001] Aufsichtsprjektion nachzuweisen und in der Hochauflösung zu analysieren, wie die Untersuchungen in Abbildung 5.19 demonstrieren. Abbildung 5.19a zeigt eine Hellfeldaufnahme in der Aufsichtsprjektion im Bereich hoher defektreduzierender Effizienz der SiN_x Zwischenschicht. Klar zu erkennen sind die linienartigen Beugungskontraste ähnlich der Hellfeldsimulation in Abbildung 5.17a, deren Enden mit weißen Pfeilen markiert sind. Abbildung 5.19b zeigt einen vergrößerten Ausschnitt zweier basaler Versetzungssegmente, deren jeweilige Zugehörigkeit zu einem Versetzungsdipol durch Bildung einer Versetzungshalbschleife vermutet wird. Demzufolge

ist zu erwarten, dass den in Abbildung 5.19b markierten Endpunkten eines basalen Versetzungssegments je eine Durchstoßversetzung mit zueinander entgegengerichteten Burgers-Vektoren zuzuordnen ist und eine Burgers-Vektor Analyse an einem solchen Segment in der Hochauflösung ein Ergebnis liefern sollte, das mit der in Abbildung 5.17b durchgeführten Untersuchung am Modell übereinstimmt. Abbildung 5.19c zeigt die HRTEM Aufnahme der beiden basalen Versetzungssegmente. Die an dieser Aufnahme berechnete FFT belegt nun auch eindeutig den in [01-10] Richtung orientierten Verlauf der beiden betrachteten basalen Versetzungssegmente. Die an der fouriergefilterten Aufnahme in Abbildung 5.19d ausgeführten Burgers-Umläufe an einem Versetzungssegment belegen nun klar die Existenz zweier Durchstoßversetzungen mit entgegengerichteten Burgers-Vektoren $\mathbf{b}_1$ und $\mathbf{b}_2$ in Übereinstimmung mit der am Versetzungsmodell durchgeführten Analyse in Abbildung 5.17b. Es sei erwähnt, dass die hier im Kapitel 5.3 im Detail untersuchte Ausbildung von Versetzungshalbschleifen aus einem Versetzungsdipol mit einer Lage in [01-10] Richtung in der Aufsichtsprjektion nicht die einzig mögliche Orientierung für die Entstehung von Versetzungshalbschleifen im Kristall darstellt, wie die unterschiedlich orientierten Markierungen an den basalen Versetzungssegmenten in Abbildung 5.19a zeigen. Vielmehr ist in Analogie zur betrachteten Dipolinteraktion eine Ausbildung von basalen Versetzungssegmenten allgemein in $\langle 01-10 \rangle$ und $\langle 11-20 \rangle$ Richtungen hoher kristalliner Symmetrie möglich.

5.4 Bestimmung der Versetzungsdichten

Wie bereits in Kapitel 3 erläutert wurde, ist die Reduzierung der Defektdichte entscheidend für die Verbesserung der Eigenschaften von auf AlGaIn basierenden optoelektronischen Bauelementen. Es ist deshalb notwendig, die Versetzungsdichte einer epitaktisch gewachsenen Heterostruktur möglichst genau zu bestimmen, um die Wirkung von defektreduzierenden Maßnahmen, wie das Einbringen einer SiN_x Zwischenschicht, beurteilen zu können. Die Versetzungsdichte D_v selbst bestimmt sich nach der bereits in Kapitel 3.2 angegebenen Gleichung (3.3). Um aus einer Querschnittsprjektion im TEM die Versetzungsdichte zu ermitteln, müsste allerdings die projizierte Probendicke der TEM-Lamelle bestimmt werden, um das Kristallvolumen im untersuchten Bereich berechnen zu können. Die Bestimmung von Probendicken im TEM ist allerdings mit einem nicht zu vernachlässigenden Aufwand verbunden, weswegen sich die Messung von Versetzungsdichten insbesondere bei Schichtsystemen mit senkrecht zur Schichtoberfläche verlaufenden Durchstoßversetzungen aus der Aufsichtsprjektion etabliert hat. Ohne die projizierte Dicke in der Aufsicht zu kennen, ergibt sich unter Annahme eines zur Einstrahlrichtung parallelen Verlaufs der meisten Durchstoßversetzungen die Versetzungsdichte hinreichend genau durch die Anzahl der Durchstoßpunkte pro projizierter Bildfläche.

Die beiden für die TEM Untersuchungen in dieser Arbeit gemäß den Ausführungen in Kapitel 5.1 unterschiedlich präparierten Aufsichtsprben P2 und P3 ermöglichen nun eine Beurteilung der defektreduzierenden Wirkung der SiN_x Zwischenschicht hinsichtlich der Defektdichten in verschiedenen Tiefen des Schichtsystems, veranschaulicht durch die weiß schraffierten Bereiche in Abbildung 5.20a. Die Breite eines Balkens deutet dabei den in der [0001] Aufsichtsprjektion erfassbaren Schichtbereich in Strahlrichtung an. Die direkt aus dem Schichtsystem präparierte Aufsichtsprbe P2 ermöglicht die Bestimmung der Versetzungsdichte im Oberflächenbereich der Probe. Die zuvor abgeätzte Probe P3 erlaubt die Bestimmung der Versetzungsdichte sowohl knapp oberhalb der SiN_x Zwischenschicht als auch unter Einbezug der unter der Zwischenschicht liegenden AlGaIn Schicht. Dies ist abhängig davon, ob die Probe P3 entsprechend den in Kapitel 5.1 eingeführten Bezeichnungen im Bereich 1 bzw. Bereich 2 untersucht wird. Abbildung 5.20b zeigt eine

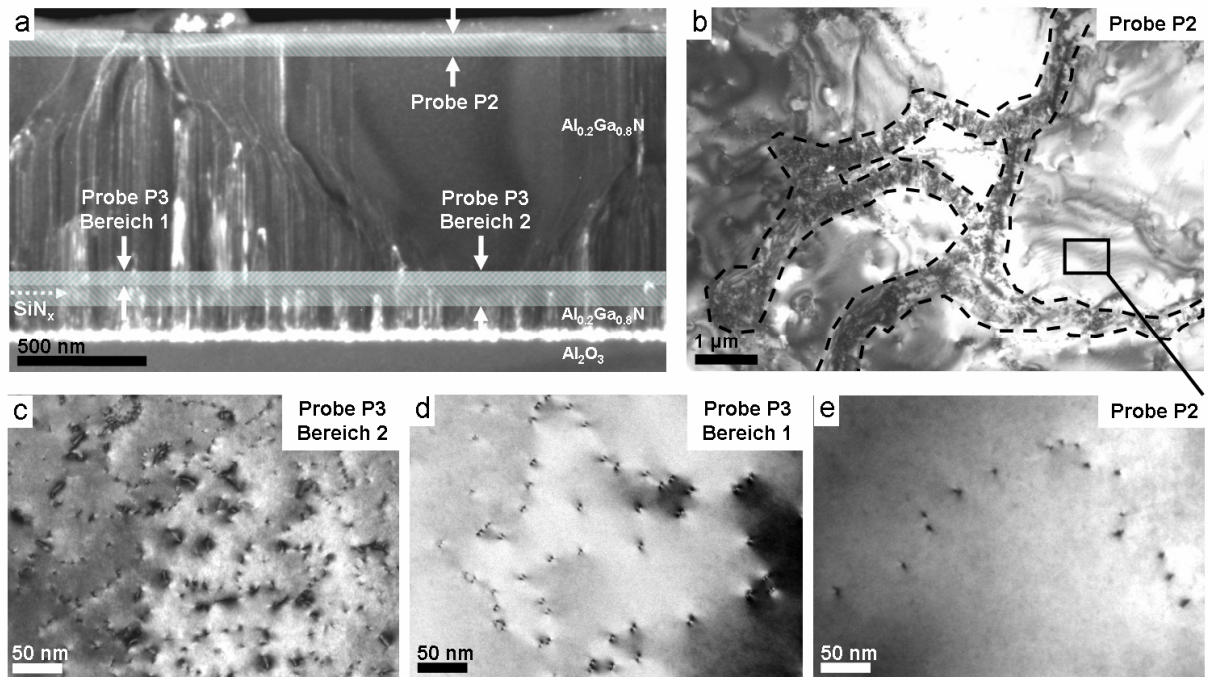


Abb. 5.20: Bestimmung der Versetzungsdichte mittels Aufsichtuntersuchungen an den Proben P2 und P3. In der WBDF Aufnahme (a) sind die in der jeweiligen Aufsichtsprüfung erfassbaren Schichtbereiche durch die weiß schraffierten Flächen hervorgehoben. Die bei geringer Vergrößerung aufgenommene Hellfeldabbildung (b) zeigt in Übereinstimmung mit dem Bündelungseffekt im Querschnitt sowohl große Bereiche mit niedriger Defektdichte als auch bandartige Bereiche innerhalb der gestrichelten Linien mit hoher Defektdichte (Bereich der Versetzungsbündel) in der Aufsichtsprüfung. Die Hellfeldaufnahmen (c-e) veranschaulichen die defektreduzierende Wirkung der SiN_x Zwischenschicht in Bezug auf die Versetzungsdichte unterhalb der Zwischenschicht (c), direkt oberhalb der Zwischenschicht in einem Bereich geringer defektreduzierender Effizienz (d) und oberhalb der Zwischenschicht in einem Bereich hoher defektreduzierender Effizienz (e).

Hellfeldaufnahme von Probe P2 bei niedriger Vergrößerung. In Übereinstimmung mit den Querschnittsuntersuchungen in Kapitel 5.2 und dem bereits angedeuteten Bündelungseffekt der Durchstoßversetzungen, der an der Probenoberfläche sowohl zu Bereichen mit nach wie vor hohen Defektdichten innerhalb eines Versetzungsbündels als auch zu Bereichen mit sehr geringen Defektdichten zwischen den Bündeln führt, sind in Abbildung 5.20b relativ große Bereiche von mehreren μm^2 mit sehr geringer Versetzungsdichte (Bereiche zwischen den Bündeln) und innerhalb der gestrichelten Linien bandartige Bereiche mit hohen Defektdichten (Bündelbereiche) sichtbar. Die Hellfeldaufnahmen in den Abbildungen 5.20c bis e geben exemplarisch Aufschluss über die unterschiedlichen Versetzungsdichten in den angegebenen Bereichen des Schichtsystems. Da in Abbildung 5.20c die Durchstoßversetzungen unterhalb der SiN_x Zwischenschicht enthalten sind, kann mit dieser Aufnahme die Versetzungsdichte unterhalb der SiN_x Zwischenschicht in der auf die Nukleationsschicht gewachsenen AlGaIn Schicht bestimmt werden. Hingegen zeigt Abbildung 5.20d nur die Durchstoßpunkte der Versetzungen, die oberhalb der SiN_x Zwischenschicht in einem Bereich geringer defektreduzierender Effizienz noch vorhanden sind. Der Vergleich der aus Abbildung 5.20d bestimmten Versetzungsdichte mit der aus Abbildung 5.20c gibt also den Grad der Defektreduktion in Bereichen mit geringer defektreduzierender Effizienz der SiN_x Zwischenschicht an. Mit Abbildung 5.20e wird die Versetzungsdichte an der Probenoberfläche in Bereichen geringster Defektdichten zwischen den Versetzungsbündeln gemessen. Zwar vergrößern sich, wie die Querschnittsaufnahmen zeigen, durch den Bündelungseffekt die Bereiche geringster Defektdichten zwischen den Versetzungsbündeln zur Probenoberfläche hin in lateraler Richtung. Die Querschnittsaufnahmen zeigen allerdings auch, dass sich in dem kompletten Bereich geringster Defektdichten zwischen den Versetzungsbündeln die Versetzungsdichte nicht ändert. Somit entspricht die aus Abbildung

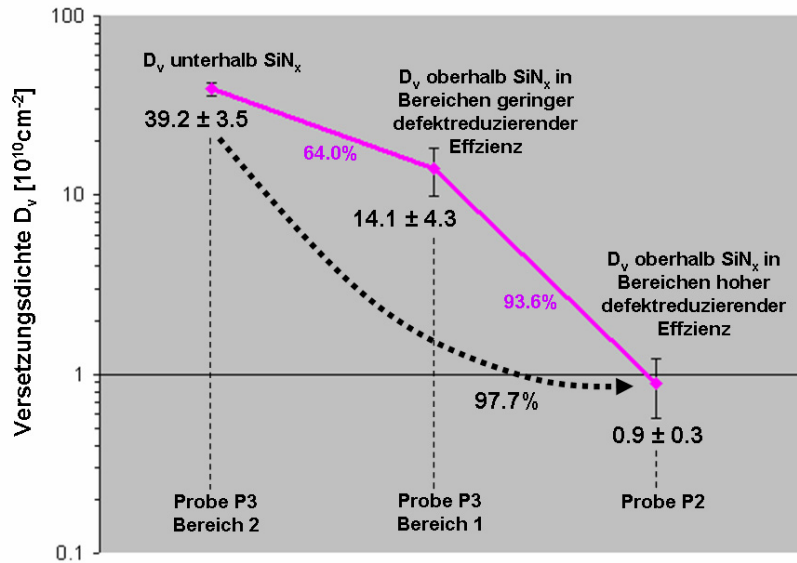


Abb. 5.21: Zusammenfassung der gemessenen Versetzungsdichten an den beiden Proben P2 und P3. Die Messung zeigt, dass zumindest lokal die Versetzungsdichte auch in Al_{0.2}Ga_{0.8}N mit einer SiN_x Zwischenschicht um mehr als 97% verringert werden kann.

5.20e ermittelte Versetzungsdichte auch der Versetzungsdichte, die direkt oberhalb der SiN_x Zwischenschicht in Bereichen hoher defektreduzierender Effizienz gemessen werden kann. Der Vergleich der aus Abbildung 5.20c bestimmten Versetzungsdichte mit der aus Abbildung 5.20e gibt also Aufschluss über den mittels SiN_x maximal erzielten Grad der Defektreduktion in den gewachsenen AlGa_{0.8}N Proben. Die gemessenen Versetzungsdichten an den beiden Proben P2 und P3 sind im Diagramm in Abbildung 5.21 zusammengefasst. Für die Bestimmung der Defektdichten wurden zur Verbesserung der Fehlerstatistik jeweils 20 verschiedene mit den Aufnahmen in den Abbildungen 5.20c bis e vergleichbare Bildbereiche ausgewertet. Ebenfalls angegeben ist der jeweilige prozentuale Grad der Defektreduktion. Wie die Messungen verdeutlichen, verringert sich die Versetzungsdichte von $(39.2 \pm 3.5) \cdot 10^{10} \text{cm}^{-2}$ unterhalb der SiN_x Zwischenschicht auf eine Dichte von $(0.9 \pm 0.3) \cdot 10^{10} \text{cm}^{-2}$ direkt oberhalb der SiN_x Zwischenschicht für die Bereiche mit hoher defektreduzierender Effizienz. Somit wird gezeigt, dass zumindest lokal die Versetzungsdichte auch in Al_{0.2}Ga_{0.8}N mit einer SiN_x Zwischenschicht um mehr als 97% reduziert werden kann.

5.5 Zusammenfassung

In Kapitel 5 wurden detaillierte TEM Untersuchungen zur defektreduzierenden Wirkung von in-situ gewachsenen SiN_x Zwischenschichten in Al_{0.2}Ga_{0.8}N durchgeführt. Die WBDF Querschnittsuntersuchungen und die Messung der Versetzungsdichten anhand von verschiedenen Aufsichtspräparaten zeigen, dass durch eine Optimierung der SiN_x Deposition die Versetzungsdichte auch in Al_{0.2}Ga_{0.8}N um bis zu 97% reduziert werden kann.

Das Ziel der Untersuchungen war es, ein tieferes Verständnis über den eigentlichen defektreduzierenden Mechanismus zu erlangen, der vor allem die **a**-Typ Durchstoßversetzungen an der SiN_x Zwischenschicht an einer weiteren Propagation zur Oberfläche hindert. Die WBDF Untersuchungen in der Querschnittsprojektion belegen, dass eine hohe defektreduzierende Effizienz der SiN_x Zwischenschicht auf die Ausbildung von Versetzungshalbschleifen zwischen Stufenversetzungen mit einem Abstand von nur wenigen Nanometern zurückzuführen ist. Eine Terminierung von Versetzungen an der SiN_x Zwischenschicht konnte nicht beobachtet werden. Die Bildung und Struktur der Versetzungshalbschleifen im Kristall wurde durch die Entwicklung eines atomaren Versetzungsmodells im Detail analysiert. Die Konsistenz der am Modell simulierten TEM

Aufnahmen mit den experimentellen Untersuchungen bestätigt die Anwendbarkeit des implementierten atomaren Versetzungsmodells auf die Propagation der **a**-Typ Durchstoßversetzungen an der SiN_x Zwischenschicht im untersuchten Kristallsystem. Durch die simulationsgestützten Hellfeld-, WBDF- und HRTEM-Analysen sowohl in der Aufsicht- als auch in der Querschnittsprojektion wurde gezeigt, dass es sich bei der Halbschleifenbildung um einen Interaktionsprozess von **a**-Typ Versetzungsdipolen handelt, die entsprechend dem kristallinen System in Richtungen hoher Symmetrie orientiert sind. Wie das atomare Versetzungsmodell belegt, erfolgt die Annäherung der beiden Durchstoßversetzungen eines Dipols über einen kombinierten Gleit- und Kletterprozess.

Die Ursache für die Bildung der Versetzungshalbschleifen durch das sowohl im Experiment wie auch im Modell verifizierte Ersetzen der vertikalen Propagation zweier **a**-Typ Durchstoßversetzungen mit entgegengerichtetem Burgers-Vektor durch eine horizontal verlaufende Basalversetzung wird in einer unterbrochenen Nanostrukturierung der SiN_x Zwischenschicht vermutet, die mittels einer geometrischen Phasenanalyse an experimentellen HRTEM Aufnahmen im Bereich der SiN_x Zwischenschicht nachgewiesen wurde. Da der Abstand und die Ausdehnung der SiN_x Nanoinseln mit dem Abstand der miteinander interagierenden Durchstoßversetzungen korrelieren, wird angenommen, dass die Bildung der Versetzungshalbschleifen durch ein laterales Überwachsen der SiN_x Nanoinseln mit AlGaN induziert wird. Die nicht-benetzende Wirkung der SiN_x Nanoinseln führt zu einem dreidimensionalen AlGaN Wachstum zwischen den Nanoinseln, die von AlGaN lateral überwachsen werden. Entsprechend der lateralen Wachstumsrichtung ändert sich die Propagation der Durchstoßversetzungen in eine basale Richtung. Die Interaktion der basalen Versetzungssegmente zweier Durchstoßversetzungen mit entgegengerichteten Burgers-Vektoren führt zur Bildung geschlossener Versetzungshalbschleifen direkt über der SiN_x Maske. Dies steht im Gegensatz zu der gebräulichen Beschreibung der Defektreduktion mittels SiN_x Zwischenschichten in reinem GaN, welche die eigentliche defektreduzierende Wirkung in einem lateralen Zusammenwachsen von wesentlich größeren GaN Mikroinseln begründet sieht, die in Bereichen nukleieren, welche frei von SiN_x sind.

Nach wie vor ungeklärt ist die Ursache für die sehr charakteristische Versetzungsstruktur in dem untersuchten Schichtsystem. Die WBDF Übersichtsaufnahmen zeigen zum einen eine variierende defektreduzierende Effizienz der SiN_x Zwischenschicht, indem sich Bereiche mit hoher und niedriger defektreduzierender Wirkung entlang der Zwischenschicht abwechseln. Darüber hinaus wird in Bereichen geringer defektreduzierender Effizienz ein charakteristischer Bündelungseffekt für die durch die SiN_x Zwischenschicht zur Oberfläche propagierenden Durchstoßversetzungen beobachtet. Die hierzu durchgeführten Untersuchungen werden im Detail im nachfolgenden Kapitel vorgestellt und sollen darüber hinaus Aufschluss über den bereits vermuteten Zusammenhang zwischen der Nanostrukturierung der SiN_x Zwischenschicht und deren defektreduzierenden Wirkung geben.

6 Entwicklung eines Modells für das Wachstum von AlGaIn auf SiN_x

Im vorangegangenen Kapitel wurde auf Basis eines atomaren Versetzungsmodells der eigentliche defektreduzierende Mechanismus, der die a-Typ Durchstoßversetzungen an der SiN_x Zwischenschicht an einer weiteren Propagation zur Oberfläche hindert, eingehend untersucht. Wie bereits im Kapitel 5.2 angedeutet wurde und in der WBDF Übersichtsaufnahme in Abbildung 5.6 ersichtlich ist, wird im untersuchten Schichtsystem für das Wachstum von Al_{0,2}Ga_{0,8}N auf der SiN_x Zwischenschicht eine ungewöhnliche aber charakteristische Versetzungsstruktur beobachtet. Diese zeichnet sich durch eine variierende defektreduzierende Effizienz der SiN_x Zwischenschicht in Kombination mit einem Bündelungseffekt in der AlGaIn Deckschicht für die durch die SiN_x Zwischenschicht zur Oberfläche propagierenden Durchstoßversetzungen in Bereichen geringer defektreduzierender Effizienz aus. Mittels der im Kapitel 6 durchgeführten Untersuchungen soll die Entstehung dieser Versetzungsstruktur analysiert werden, die schlussendlich zur Entwicklung eines Modells für das Wachstum von AlGaIn auf SiN_x führen. Die im Kapitel 6 vorgestellten Untersuchungen und Ergebnisse wurden in [96] veröffentlicht.

6.1 Untersuchung wachstumsunterbrochener Schichten – Zusammenhang zwischen Versetzungspropagation und Variationen im epitaktischen Wachstum

Im vorliegenden Kapitel soll zunächst die Ursache für die beobachtete Bündelung der Durchstoßversetzungen in der AlGaIn Deckschicht in Bereichen geringer defektreduzierender Effizienz analysiert werden. Grundsätzlich können für die Versetzungsverbiegung und –bündelung zwei mögliche Ursachen in Betracht gezogen werden. Zum einen wäre eine verspannungsbedingte Änderung der Propagation der Durchstoßversetzungen während des epitaktischen Wachstums der AlGaIn Deckschicht möglich. Ebenfalls denkbar ist, dass die Durchstoßversetzungen aufgrund von Variationen in den epitaktischen Wachstumsrichtungen der auf der SiN_x Zwischenschicht deponierten AlGaIn Deckschicht ihre Propagationsrichtung ändern. Ein wachstumsinduzierter Bündelungseffekt lässt sich allerdings nur schwerlich aus Untersuchungen an der Querschnittsprobe P1 nachweisen, da in dem fertig gewachsenen Schichtsystem die Oberfläche der 1µm dicken AlGaIn Deckschicht bereits über mehrere Mikrometer hinweg eine geringe Rauigkeit aufweist und dadurch mögliche Variationen in den epitaktischen Wachstumsrichtungen während des Schichtwachstums nicht mehr nachvollzogen werden können. Daraus entstand die Idee, wachstumsunterbrochene Schichten zu untersuchen, bei denen unter ansonsten identischen Wachstumsbedingungen (siehe Kapitel 5.1) das Wachstum der auf der SiN_x Zwischenschicht deponierten AlGaIn Deckschicht nach unterschiedlichen Überwachszeiten unterbrochen wurde. Dies ermöglicht die Untersuchung des AlGaIn Wachstums auf der SiN_x Zwischenschicht in verschiedenen Wachstumsstadien, sodass mögliche Variationen in der AlGaIn Epitaxie erfasst werden können. In dieser Arbeit wurden zwei wachstumsunterbrochene Schichten untersucht, die entsprechend den Bezeichnungen in Kapitel 5.1 fortlaufend mit P4 und P5 bezeichnet werden. Bei Probe P4 wurde das Wachstum der AlGaIn Deckschicht nach 4min und bei Probe P5 nach 13min gestoppt. Unter Berücksichtigung typischer empirischer Wachstumsraten von $\sim 1.3\mu\text{m h}^{-1}$ für Al_{0,2}Ga_{0,8}N können nominelle Dicken von $\sim 90\text{nm}$ und $\sim 280\text{nm}$ für die AlGaIn Deckschichten in Probe P4 bzw. P5 erwartet werden.

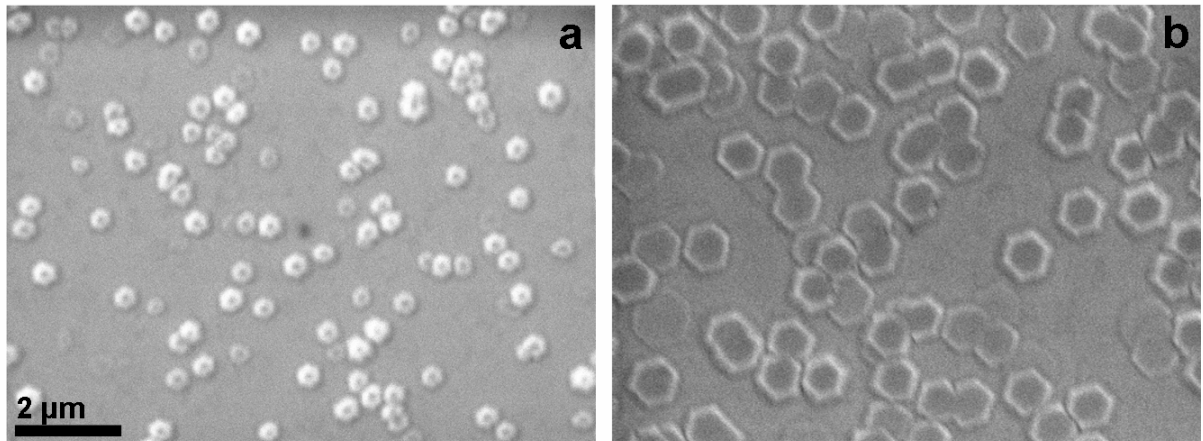


Abb. 6.1: SEM Aufnahmen der Oberflächen von Probe P4 (a) und P5 (b) nach einer Wachstumszeit der AlGaIn Deckschicht von 4 bzw. 13min. Klar ist die Ausbildung von primären hexagonalen AlGaIn Mikroinseln zu sehen, die sich in lateraler Richtung ausdehnen.

Abbildung 6.1 zeigt SEM Aufnahmen der AlGaIn Oberfläche von Probe P4 und P5 nach 4min (Abbildung 6.1a) bzw. 13min (Abbildung 6.1b) Überwachszeit². Deutlich ist das Wachstum von hexagonalen AlGaIn Mikroinseln zu erkennen, deren Ausdehnung in lateraler Richtung zunimmt. Ebenfalls kann ein Zusammenwachsen von benachbarten AlGaIn Mikroinseln nach einer Überwachszeit von 13min beobachtet werden. Bezugnehmend auf die in [27] durchgeführten Untersuchungen an reinem GaN und den Ausführungen in Kapitel 3.4.2 könnte zunächst angenommen werden, dass die Mikroinseln dort lokalisiert sind, wo sich auf der 150nm dicken AlGaIn Pufferschicht kein SiN_x deponiert hat, sodass die Bereiche mit SiN_x zwischen den AlGaIn Mikroinseln in Abbildung 6.1 frei von einer AlGaIn Deckschicht sind. Die TEM Aufnahmen in Abbildung 6.2 zeigen allerdings einen anderen Wachstumsverlauf. In der WBDF Aufnahme in Abbildung 6.2a von Probe P4 sowie in den Hellfeldaufnahmen in Abbildung 6.2b und c von Probe P5 ist klar das Wachstum der AlGaIn Mikroinseln zu sehen, die mit gestrichelten Linien markiert sind. Allerdings weisen die ebenen Bereiche zwischen den AlGaIn Inseln eine 80nm dicke AlGaIn Schicht bereits nach 4min Überwachszeit auf. Diese Bereiche zeigen hohe Defektdichten an der Oberfläche mit parallel zur [0001] Richtung propagierenden Durchstoßversetzungen aufgrund einer geringen defektreduzierenden Effizienz der darunterliegenden SiN_x Zwischenschicht. Das gleiche Versetzungsverhalten ist auch in den 230nm dicken ebenen Bereichen in Abbildung 6.2c nach einer Überwachszeit von 13min zu beobachten. Im Gegensatz dazu sind die AlGaIn Mikroinseln nahezu defektfrei aufgrund einer hohen defektreduzierenden Effizienz der SiN_x Maske unterhalb der Inseln. Die eingetretene Verbiegung der Versetzungen weg von den Mikroinseln und die daraus resultierende Versetzungsbündelung, wie sie bereits in Kapitel 5.2 erwähnt wurde, können bereits in den wachstumsunterbrochenen Proben P4 und P5 beobachtet werden. Der Wechsel zwischen dem Wachstum von Bereichen mit ebener AlGaIn Deposition und sich aus der Oberfläche erhebenden AlGaIn Mikroinseln in Kombination mit den jeweiligen Variationen in der Versetzungspropagation belegen unterschiedliche Wachstumsmodi mit sowohl vertikalen als auch lateralen epitaktischen Wachstumsrichtungen. Da die Ausbildung der AlGaIn Mikroinseln und der ebenen Bereiche zwischen den Inseln mit unterschiedlichen defektreduzierenden Effizienzen korrelieren, wird angenommen, dass Variationen in der SiN_x Maskierung, die in unterschiedlichen defektreduzierenden Effizienzen resultieren, verantwortlich für die variierenden Wachstumsmodi der AlGaIn Deckschicht sind. Weiterführende Untersuchungen hierzu werden im nachfolgenden Kapitel 6.2 vorgestellt und diskutiert. In Abbildung 6.2b und c sind bestimmte Bereiche des Schichtsystems mit

² Aufgenommen und zur Verfügung gestellt vom Institut für Optoelektronik, Universität Ulm

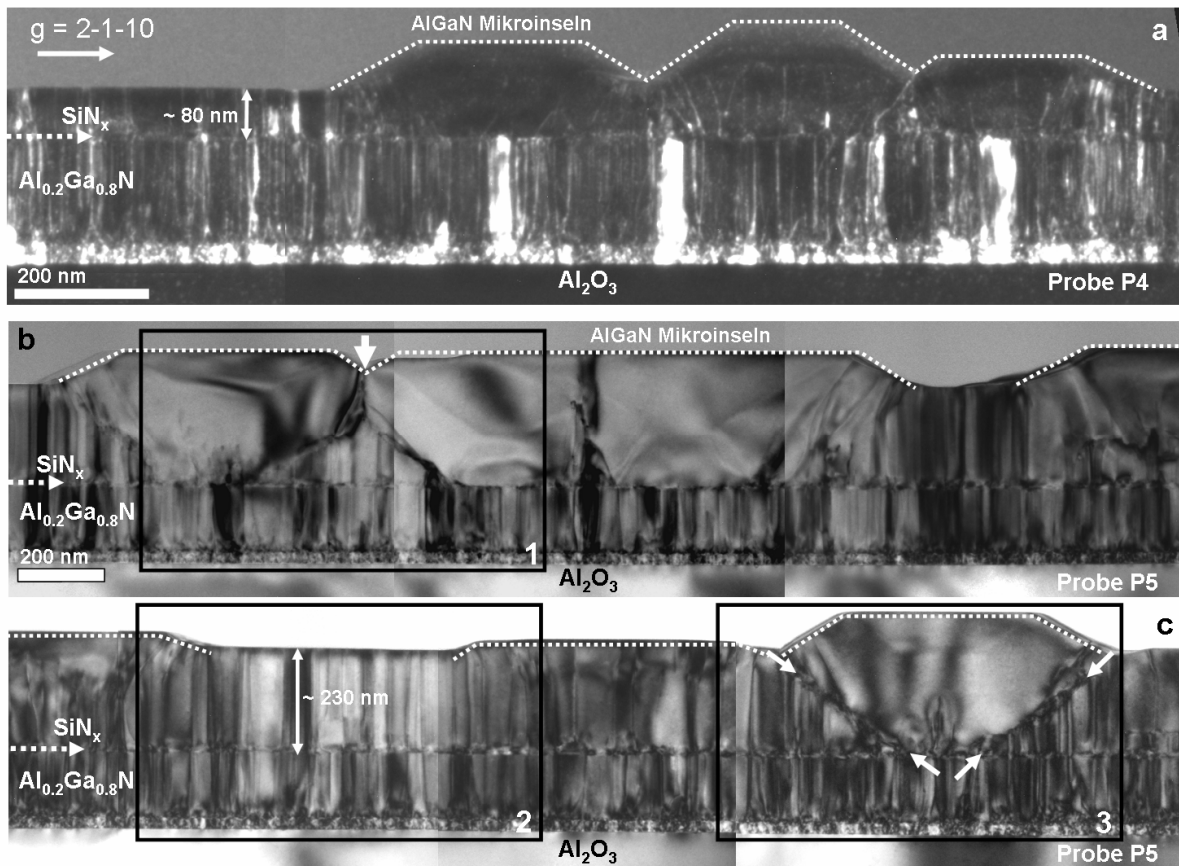


Abb. 6.2: Übersichtsaufnahmen in der Querschnittsprojektion der wachstumsunterbrochenen Probe P4 (a) und P5 (b, c). Die Überwachszeiten der AlGa_N Deckschicht betrugen 4 bzw. 13min. Die WBDF Aufnahme (a) wie auch die beiden Hellfeldaufnahmen (b, c) zeigen klar das Wachstum von primären AlGa_N Mikroinseln (gestrichelte Markierungen). Die ebenen Bereiche zwischen den Inseln sind nicht frei von AlGa_N (Schichtdicken von 80 und 230nm). Bemerkenswert sind die geringen Defektdichten und hohen defektreduzierenden Effizienzen immer unterhalb der AlGa_N Mikroinseln, wohingegen hohe Defektdichten mit geringer defektreduzierender Effizienz der SiN_x Zwischenschicht in den ebenen Bereichen zwischen den Inseln beobachtet werden.

Rechtecken markiert und fortlaufend durchnummeriert (Bereiche 1,2 und 3), auf die noch in den nachfolgenden Kapiteln 6.3 und 6.4 eingegangen wird.

Eine detailliertere Analyse der Versetzungsstruktur ist in den WBDF Aufnahmen von Probe P5 in Abbildung 6.3 dargestellt. Abbildung 6.3a zeigt einen Bereich zwischen zwei noch nicht zusammengewachsenen AlGa_N Mikroinseln. Die gestrichelten Pfeilmarkierungen skizzieren die allgemeine Verlaufsrichtung der Durchstoßversetzungen, die an der SiN_x Zwischenschicht nicht an einer weiteren Propagation in der AlGa_N Deckschicht gehindert wurden. Zwischen den Inseln propagieren die Versetzungen ungehindert parallel zur c-Achse, wohingegen die Verbiegung der Versetzungen weg von den AlGa_N Mikroinseln in den Grenzbereichen zur defektfreien Zone klar ersichtlich ist. Dies bedeutet, dass zwischen den Inseln in Bereichen mit glatter Oberfläche die Deposition der AlGa_N Deckschicht epitaktisch in vertikaler c-Richtung erfolgt. Das Wachstum der AlGa_N Mikroinseln induziert eine epitaktische Wachstumskomponente in lateraler Richtung, was zur Verbiegung und letztendlich zur Bündelung der Durchstoßversetzungen führt. Wenn zwei oder mehrere AlGa_N Mikroinseln während des Wachstumsprozesses koaleszieren, führt die Versetzungsbündelung zu nur sehr kleinen Bereichen an der Oberfläche mit noch relativ hohen Defektdichten, was in Abbildung 6.3b festgehalten ist. Abgesehen von der Versetzungsbündelung selbst weist die laterale Koaleszenz der AlGa_N Mikroinseln einen defektreduzierenden Effekt durch die Ausbildung von Versetzungshalbschleifen auf (weiße Pfeile in Abbildung 6.3b). Darüber hinaus kann die

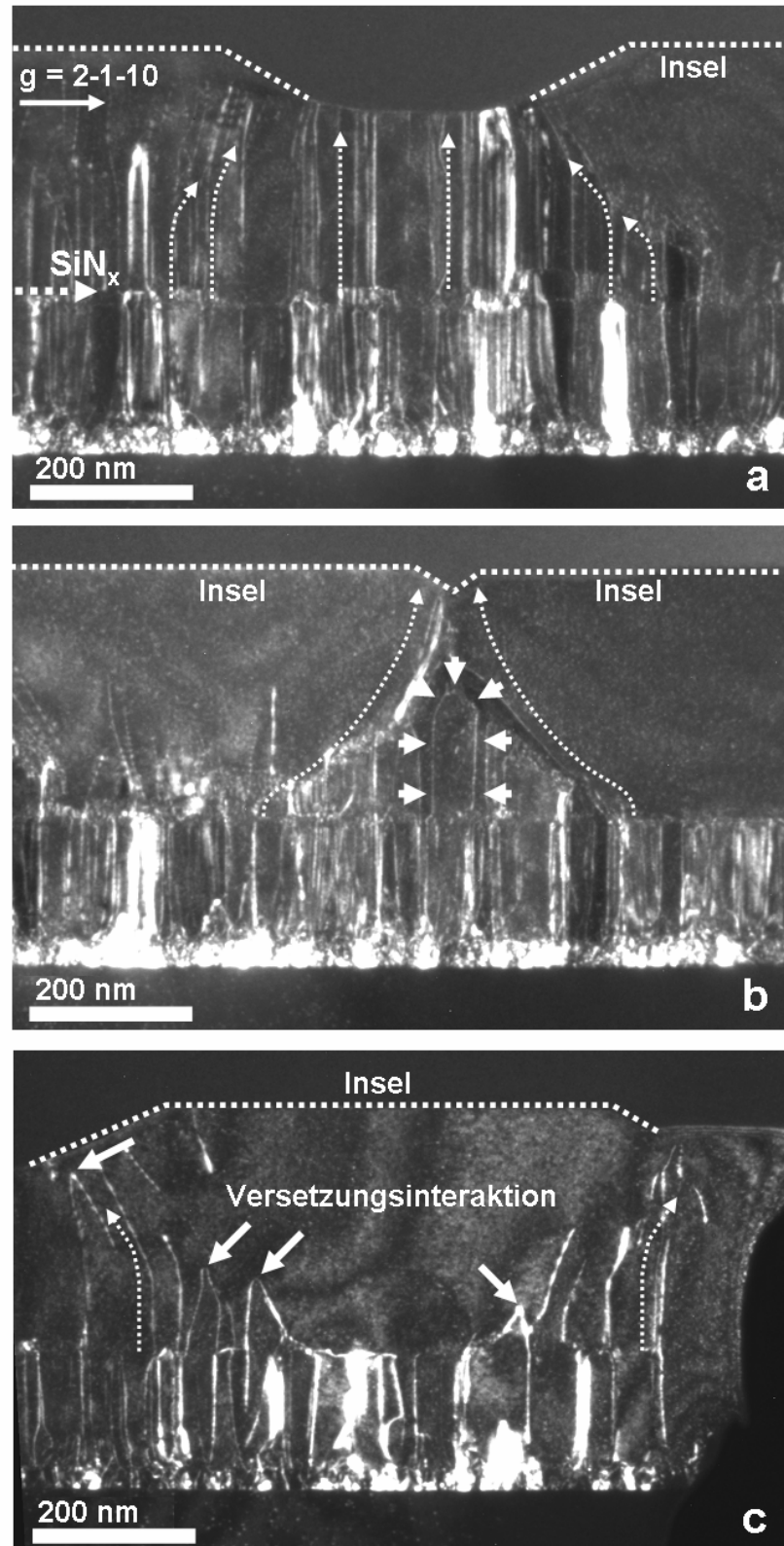


Abb. 6.3: WBDF Aufnahmen von Probe P5 zwischen zwei AlGaN Mikroinseln (a, b) und im Zentrum einer Insel (c). Die gestrichelten Pfeile skizzieren die Propagationsrichtung der Durchstoßversetzungen in der AlGaN Deckschicht. Zwischen nicht koaleszierten Inseln (a) verlaufen die Durchstoßversetzungen gerade in c-Richtung, wobei die Verbiegung der Versetzungen weg von den defektfreien Zonen in allen drei Aufnahmen klar zu erkennen ist. Die Koaleszenz zweier Inseln (b) führt zu nur sehr kleinen Bereichen an der Oberfläche mit noch relativ hohen Defektdichten aufgrund des Bündelungseffekts und der Ausbildung von Versetzungshalbschleifen (weiße Pfeile in (b)). Bedingt durch die Verbiegung der Versetzungen selbst in den Grenzbereichen zur defektfreien Zone kann eine Verringerung der Versetzungsdichte aufgrund von Versetzungsinteraktionen beobachtet werden (weiße Pfeile in (c)).

Verbiegung der Versetzungen in den Grenzbereichen zur defektfreien Zone mit lateralem und vertikalem Wachstum zur Interaktion von Durchstoßversetzungen führen, die dadurch nicht weiter zur Oberfläche propagieren (weiße Pfeile in Abbildung 6.3c). Bezugnehmend auf die Übersichtaufnahme in Abbildung 5.6 in Kapitel 5.2 weist die AlGa_N Deckschicht eine glatte Oberfläche mit geringer Rauigkeit nach einer Dicke von 1 µm auf, unabhängig davon, ob die primären AlGa_N Mikroinseln während des Schichtwachstums koalesziert sind oder nicht. Dies wird durch Oberflächen-AFM Messungen auch für größere Überwachsdicken bestätigt [88]. Wenn zwei benachbarte AlGa_N Mikroinseln aufgrund ihres zu großen Abstandes zueinander nicht lateral zusammenwachsen, bleiben relativ große Bereiche im µm-Bereich mit noch relativ hohen Defektdichten an der Oberfläche aufgrund der nun deutlich größeren lateralen Ausdehnung des Versetzungsbündels bestehen. Dies bedeutet allerdings auch, dass ab einer bestimmten Schichtdicke das epitaktische Wachstum in c-Richtung zwischen den AlGa_N Mikroinseln dasselbe Niveau wie die Inseln erreicht. Hat sich auf diese Weise eine glatte Oberfläche über die gesamte Schicht hinweg ausgebildet, setzt sich das Wachstum mit einem rein epitaktischen Wachstum in c-Richtung ohne laterale Komponente fort. Die gebündelten Versetzungen werden dann entsprechend der epitaktischen Wachstumsrichtung parallel zur c-Achse weiter propagieren. Dies entspricht genau der in Abbildung 5.6 erfassten Versetzungsstruktur.

6.2 Ursache variierender defektreduzierender Effizienz von SiN_x und wechselnder epitaktischer Wachstumsmodi

Die im vorangegangenen Kapitel durchgeführten Untersuchungen an wachstumsunterbrochenen Schichten gaben Aufschluss über den Wachstumsprozess der auf die SiN_x Zwischenschicht gewachsenen AlGa_N Deckschicht. Die Korrelation der unterschiedlich orientierten AlGa_N Facetten, bedingt durch die Ausbildung von AlGa_N Mikroinseln, mit der Propagationsrichtung der Durchstoßversetzungen hat gezeigt, dass der Verbiegungs- und Bündelungseffekt der Versetzungen wachstumsinduziert ist und durch die laterale Wachstumskomponente der AlGa_N Mikroinseln induziert wird. Um ein tiefergehendes Verständnis über die Wachstumsmechanismen der AlGa_N Deckschicht zu erlangen und ein komplettes Wachstumsmodell zu entwickeln, muss geklärt werden, warum die primären AlGa_N Mikroinseln immer in Bereichen mit hoher defektreduzierender Effizienz lokalisiert sind und was die Ursache für die variierende defektreduzierende Wirkung der SiN_x Zwischenschicht ist.

Die direkt an der SiN_x Zwischenschicht bei identischen Erfassungszeiten von 60s aufgenommenen EDX Spektren an Probe P5, dargestellt in Abbildung 6.4, führen zu einer Erklärung für die variierenden defektreduzierenden Effizienzen entlang der SiN_x Maske. Um im Bezug auf die Nachweisgrenze des EDX Detektors die geringen Si Konzentrationen der SiN_x Nano-Maske messen zu können, wurde im TEM mittels des Kondensorstigmators die Probenausleuchtung so manipuliert, dass der parallel zur SiN_x Zwischenschicht linienförmig verzerrte Strahl diese über einen Bereich von etwa 400nm erfasst. Die beiden für die Aufnahme der EDX Spektren durchleuchteten Probenbereiche sind in der in Abbildung 6.4 eingesetzten Hellfeldaufnahme von Probe P5 eingezeichnet. Wie die EDX Spektren zeigen, ist Silizium in Bereichen hoher defektreduzierender Effizienz nicht nachweisbar, wohingegen das EDX Spektrum aus einem Bereich geringer Defektreduktion ein klares Siliziumsignal aufweist. Dies ist ein zunächst sehr unerwartetes Messergebnis, wenn man annimmt, dass die Ursache für eine geringe defektreduzierende Effizienz mit geradlinig durch die nominelle Zwischenschicht weiterpropagierenden Durchstoßversetzungen in einer dort verringerten bzw. nicht vorhandenen SiN_x Deposition liegt, weswegen eine denkbare Versetzungsterminierung und Halbschleifenbildung durch laterales Wachstum nicht stattfindet. Dies gab Anlass, die Interpretation der EDX Messung in einer variierenden SiN_x

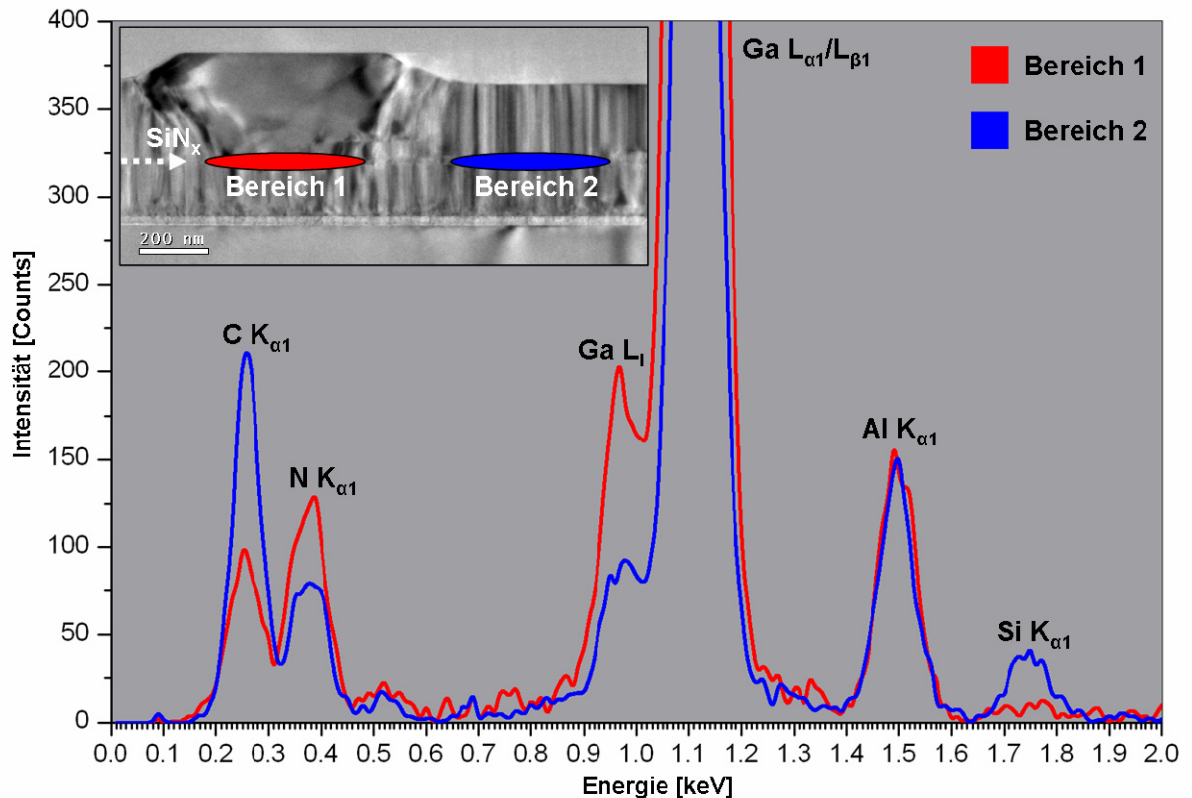


Abb. 6.4: EDX Spektren, aufgenommen an der SiN_x Zwischenschicht bei identischen Erfassungszeiten von 60s in einem Bereich hoher defektreduzierender Wirkung (Bereich 1) und geringer Defektreduktion (Bereich 2). Die Verwendung eines zur SiN_x Zwischenschicht parallel verzerrten Strahls durch eine entsprechende Manipulation des Kondensorstigmators ermöglicht die Detektion von Silizium trotz der durch die lediglich durchgeführte SiN_x Nano-Maskierung geringen Si Konzentration im Schichtsystem. Entgegen der Erwartung ist Silizium im Bereich hoher Defektreduktion nicht nachweisbar, während das im Bereich 2 aufgenommene Spektrum ein klares Siliziumsignal aufweist.

Verteilung innerhalb eines Bereichs mit hoher defektreduzierender bzw. geringer defektreduzierender Effizienz zu suchen. Bezugnehmend auf die HRTEM Analysen in Abbildung 5.3 wurde mittels einer geometrischen Phasenanalyse die Existenz von SiN_x Nanoinseln nachgewiesen, die aufgrund ihrer Verteilung als mögliche Voraussetzung für die Ausbildung der Versetzungshalbschleifen gesehen wurden. Dabei wird, wie in Abbildung 5.5 dargestellt, die Interaktion der Durchstoßversetzungen zu Versetzungshalbschleifen durch das laterale Überwachsen der SiN_x Nanoinseln mit AlGaIn induziert. Das Problem der an Probe P1 durchgeführten HRTEM Analyse in Abbildung 5.3 besteht in der Korrelation der detektierten SiN_x Nano-Maskierung mit den Bereichen hoher defektreduzierender Effizienz. Da für die HRTEM Analyse die Notwendigkeit von sehr dünnen TEM Proben besteht, sind die meisten Versetzungen präparationsbedingt bereits herausgedünnt worden, so dass diese nicht mehr zur Identifikation des untersuchten Probenbereichs hinsichtlich einer hohen oder niedrigen defektreduzierenden Effizienz der SiN_x Zwischenschicht herangezogen werden können. Die wachstumsunterbrochenen Schichten bieten allerdings eine Möglichkeit, die SiN_x Verteilung in der Hochauflösung mittels einer geometrischen Phasenanalyse zu untersuchen und diese auch ohne vorhandene Versetzungen mit Bereichen hoher bzw. niedriger defektreduzierender Wirkung der SiN_x Zwischenschicht zu korrelieren. Da basierend auf den Aufnahmen in Abbildung 6.2 und 6.3 bekannt ist, dass die AlGaIn Mikroinseln den Bereichen hoher defektreduzierender Effizienz zuzuordnen sind und die Bereiche zwischen den Mikroinseln nur eine geringe Defektreduktion aufweisen, können die AlGaIn Mikroinseln anstelle der Versetzungen als Marker zur Identifikation des untersuchten Probenbereichs in der Hochauflösung herangezogen werden. Analog zu der bereits an Probe

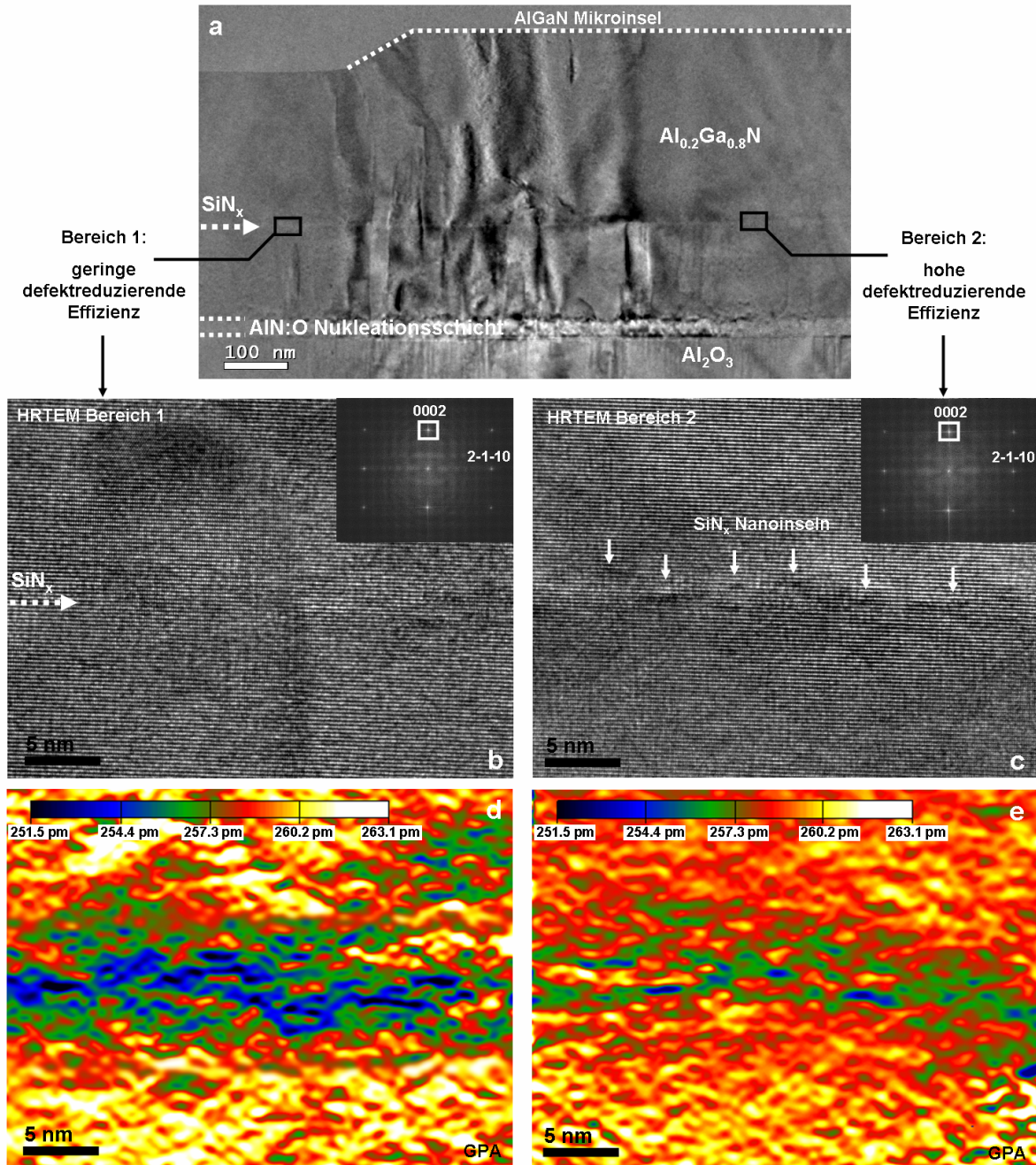


Abb. 6.5: Vergleich der SiN_x Verteilung in der Hochauflösung mittels geometrischer Phasenanalyse zwischen einem Bereich geringer (b, d) und hoher (c, e) defektreduzierender Effizienz der Zwischenschicht. Anstelle der Versetzungen kann durch Verwendung der wachstumsunterbrochenen Probe P5 (a) eine AlGa_{0.2}N Mikroinsel als Marker zur Identifikation des untersuchten Probenbereichs hinsichtlich geringer bzw. hoher Defektreduktion herangezogen werden. Die GPA (d) unter Verwendung des 0002 Reflexes zeigt im Bereich geringer defektreduzierender Effizienz ein im Vergleich zu Abbildung (e) deutlich ausgedehntes Spannungsfeld sowohl in vertikaler als auch in lateraler Richtung (blau gefärbte Bereiche), bedingt durch einen vermehrten Einbau von Silizium. Während die SiN_x Zwischenschicht in (d) praktisch eine geschlossene Bedeckung der darunterliegenden AlGa_{0.2}N Schicht aufweist, sind in (e) klar voneinander getrennte SiN_x Nanoinseln zu erkennen.

P1 durchgeführten HRTEM Analyse an der SiN_x Zwischenschicht wurden HRTEM Aufnahmen an der wachstumsunterbrochenen Probe P5 im Bereich der SiN_x Zwischenschicht mittels geometrischer Phasenanalyse ausgewertet. Die vergleichende Analyse der SiN_x Verteilung zwischen einem Bereich geringer (Messung abseits der AlGa_{0.2}N Mikroinsel) und hoher Defektreduktion (Messung im Bereich der AlGa_{0.2}N Mikroinsel) ist in den Abbildungen 6.5b und d bzw. den Abbildungen 6.5c und e dargestellt. Die in den Abbildungen 6.5d und e

unter Verwendung des 0002 Reflexes durchgeführten geometrischen Phasenanalysen zeigen, dass in Bereichen geringer defektreduzierender Effizienz die darunterliegende AlGa_{0,8}N Schicht eine geschlossene Bedeckung mit SiN_x aufweist, während sich in Bereichen hoher Defektreduktion unterhalb der AlGa_{0,8}N Mikroinseln voneinander getrennte SiN_x Nanoinseln ausgebildet haben, wie sie bereits an Probe P1 in Abbildung 5.3 gemessen wurden. Die in Bereichen geringer bzw. hoher defektreduzierender Wirkung voneinander verschiedenen SiN_x Verteilungen lassen sich auch mit den EDX Spektren aus Abbildung 6.4 hinsichtlich der gemessenen Si Konzentrationen in Einklang bringen. Darüber hinaus kann nun eine Erklärung für die variierende defektreduzierende Wirkung der SiN_x Zwischenschicht und wechselnden epitaktischen Wachstumsmodi mit der Ausbildung von AlGa_{0,8}N Mikroinseln in Bereichen hoher Defektreduktion gefunden werden. Hohe defektreduzierende Effizienz wird dort erzielt, wo die unter der Zwischenschicht liegende AlGa_{0,8}N Schicht eine unterbrochene Bedeckung mit SiN_x Nanoinseln aufweist, da diese die Ausbildung von Versetzungshalbschleifen beim lateralen Überwachsen der Nanoinseln durch AlGa_{0,8}N begünstigen. Die durch die ledigliche Ausbildung von SiN_x Nanoinseln bedingten geringen Si Konzentrationen verhindern den Nachweis von Silizium mittels EDX. Im Gegensatz dazu werden in Bereichen mit einer geschlossenen SiN_x Bedeckung und einer damit messbaren Si Konzentration mittels EDX keine geschlossenen Versetzungsdipole gebildet, da sich bei der Deposition der AlGa_{0,8}N Deckschicht direkt über der SiN_x Zwischenschicht kein laterales Wachstum einstellen kann. In diesen Bereichen wächst die AlGa_{0,8}N Deckschicht bereits direkt an der SiN_x Zwischenschicht epitaktisch in c-Richtung auf und die Versetzungen propagieren ungehindert durch die SiN_x Zwischenschicht hindurch parallel zur c-Achse (siehe vergrößerten Bereich in Abbildung 5.6). Dies bedeutet, dass eine geschlossene SiN_x Bedeckung das AlGa_{0,8}N nicht davon abhält, auf dem anti-surfactant zu nukleieren. Dieses Ergebnis ist konsistent mit den von Kato et al. [36] durchgeführten Untersuchungen und der in Kapitel 3.4 beschriebenen Problematik, dass AlGa_{0,8}N bezüglich einer Maskierung mit einem anti-surfactant schlechtere selektive Wachstumseigenschaften aufweist als reines GaN. Da es hinsichtlich des Haftkoeffizienten für die AlGa_{0,8}N Deckschicht günstiger ist, in Bereichen mit unterbrochener SiN_x Maskierung und ausgebildeten SiN_x Nanoinseln zu nukleieren, geht dort die Deposition von AlGa_{0,8}N mit einem ausgeglichenen Verhältnis zwischen epitaktisch vertikalem und lateralem Wachstum nach einem abgeschlossenen Überwachsen der SiN_x Nanoinseln dem Wachstum von AlGa_{0,8}N in Bereichen mit geschlossener SiN_x Bedeckung voraus. Dies stellt den Ursprung für die Bildung der primären AlGa_{0,8}N Mikroinseln dar, die aufgrund des zunächst lateralen Überwachsens der SiN_x Nanoinseln und der damit einhergehenden Interaktion der Versetzungsdipole nahezu defektfrei sind.

Zwar handelt es sich, wie bereits in Kapitel 3.4.2 beschreiben, bei der in-situ Maskierung von AlGa_{0,8}N mit SiN_x um einen stochastischen Prozess, dennoch gibt der charakteristische Wechsel zwischen Bereichen hoher und geringer defektreduzierender Effizienz entlang der SiN_x Zwischenschicht Anlass, nach einer möglichen Ursache für die die Defektreduktion bestimmende variierende SiN_x Verteilung zu suchen. Zusätzlich zu den in Abbildung 6.4 durchgeführten EDX Messungen an der SiN_x Zwischenschicht selbst wurden in Abbildung 6.6 orts aufgelöst EDX Spektren entlang zweier im TEM manuell geführter Messlinien unterhalb und oberhalb der SiN_x Zwischenschicht aufgenommen, um parallel zur SiN_x Zwischenschicht die Al, Ga und N Konzentrationen im Bereich einer AlGa_{0,8}N Mikroinsel zu bestimmen. Die im Wesentlichen vom Strahldurchmesser bestimmte Ortsauflösung während der Scans lag im Bereich von etwa 70nm. Die quantitative Auswertung der EDX Spektren erfolgte durch Anwendung der sogenannten „ionic compound“ – Methode von Van Cappellen und Doukhan, die sich auch für III-V Halbleiter als geeignet herausgestellt hat [142]. Die quantitative Auswertung der Spektren zeigt klar eine zunehmende Substitution von Al mit Ga unterhalb der SiN_x Zwischenschicht im Bereich mit gewachsener AlGa_{0,8}N Mikroinsel. Die in Al_{0,2}Ga_{0,8}N nominellen Al, Ga und N Konzentrationen von jeweils 10, 40 bzw. 50at% ändern

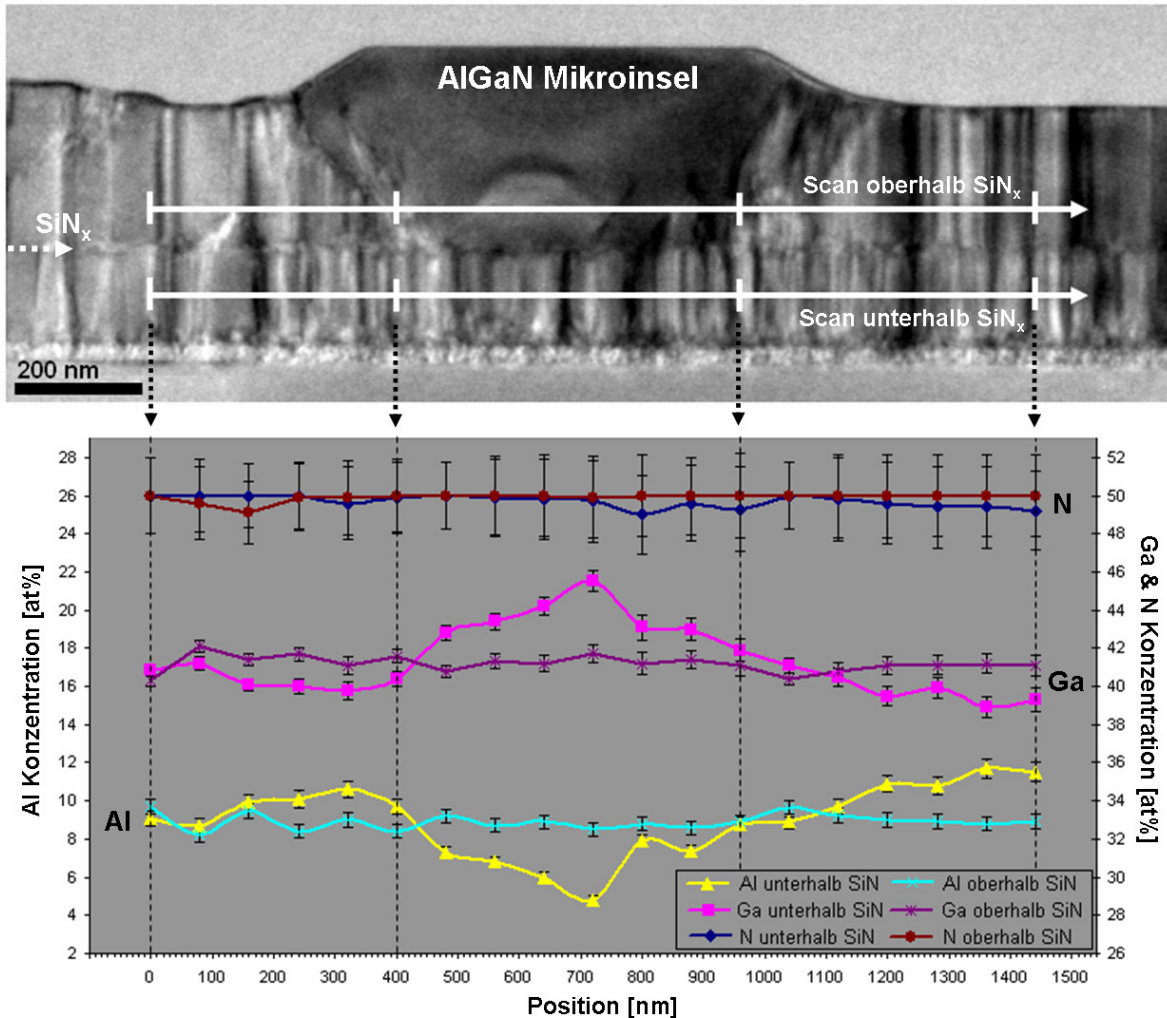


Abb. 6.6: Messung der Al, Ga und N Konzentrationen entlang einer primären AlGa_N Mikroinsel direkt oberhalb und unterhalb der SiN_x Zwischenschicht mittels ortsaufgelöster EDX Scans. Deutlich zu sehen ist eine erhöhte Ga und eine verringerte Al Konzentration in Bereichen unterhalb der AlGa_N Mikroinsel. Hingegen bleiben die Al, Ga und N Konzentrationen oberhalb der SiN_x Zwischenschicht weitgehend stabil im Bereich ihrer nominellen Werte von 10, 40 und 50at%.

sich zu Konzentrationen von 5at% für Al und 45at% für Ga, wohingegen die Al, Ga und N Konzentrationen oberhalb der SiN_x Zwischenschicht im Rahmen der Messgenauigkeit weitgehend stabil im Bereich ihrer nominellen Werte verbleiben. Dieses Ergebnis wurde durch zusätzliche EDX Linescans analog zu Abbildung 6.6 an drei verschiedenen AlGa_N Mikroinseln bestätigt. Von lokalen Variationen der Al und Ga Konzentration in einer epitaktisch gewachsenen AlGa_N Schicht, ebenfalls gemessen mit EDX, wird in der Publikation von Shih et al. berichtet [90]. Gemäß den Ausführungen in dieser Arbeit werden Konzentrationsfluktuationen während des AlGa_N Wachstums morphologischen Unregelmäßigkeiten der Nukleationsschicht zugeschrieben und entstehen bereits zu Beginn des Wachstums von AlGa_N auf der Nukleationsschicht. Im Rahmen des „Deep UV-LED“ Projekts wurden auch Kathodolumineszenz- (CL) und Photolumineszenzmessungen (PL) an den AlGa_N Mikroinseln durchgeführt, die zeigen, dass die während des Wachstums eingebaute Menge an Al bzw. Ga von der Wachstumsrichtung der AlGa_N Facetten abhängt [143]. Hinsichtlich des Kausalzusammenhangs kann leider nur schwerlich eine Aussage darüber getroffen werden, ob Fluktuationen in der Al/Ga Konzentration direkt verantwortlich sind für eine variierende SiN_x Verteilung und damit für unterschiedliche defektreduzierende Effizienzen der SiN_x Zwischenschicht. Allerdings ist die in Abbildung 6.6

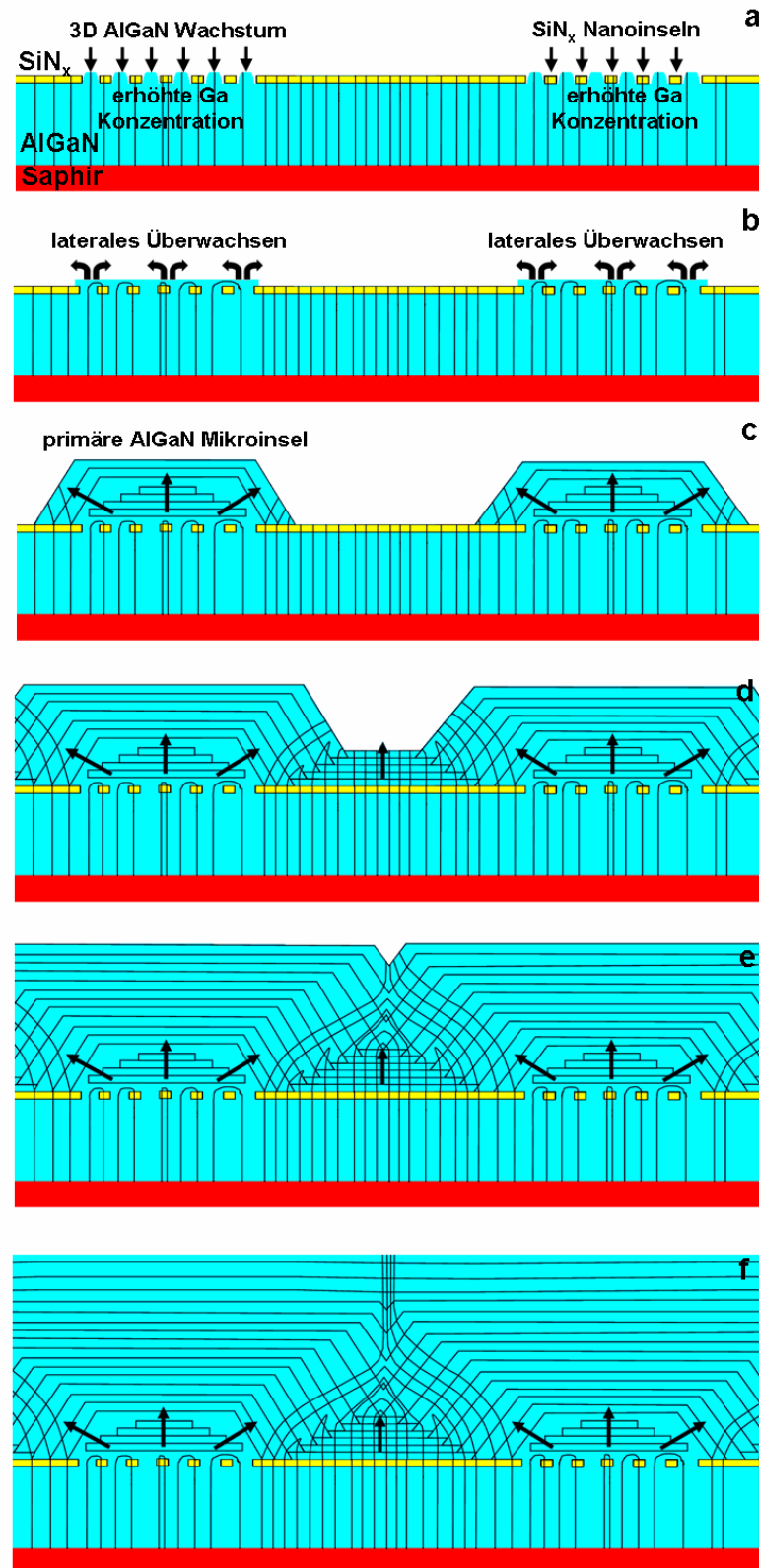


Abb. 6.7: Wachstumsmodell zur Koaleszenz zweier nahe beieinander liegender AlGaIn Mikroinseln, dargestellt in aufeinanderfolgenden Wachstumsstadien (a-f). Die Nukleation der Mikroinseln findet in Bereichen mit hoher defektreduzierender Effizienz statt, d.h. in Bereichen, in denen AlGaIn nur eine unterbrochene Bedeckung mit SiN_x Nanoinseln aufweist. Die Pfeile in (b) markieren das laterale Überwachsen der SiN_x Nano-Maske, das für die Ausbildung der Versetzungshalbschleifen verantwortlich ist. Die Pfeile in den Abbildungen (c-f) zeigen die epitaktisch vertikale und laterale Wachstumsrichtung an. Letztere führt zur Versetzungsverbiegung und –bündelung. Die Koaleszenz der Mikroinseln führt zu nur sehr kleinen Bereichen an der Oberfläche mit noch hoher Defektdichte (f).

gemessene Korrelation zwischen den Variationen in der Al/Ga Konzentration und den Bereichen mit hoher defektreduzierender Effizienz mit den dort lokalisierten AlGa_N Mikroinseln offensichtlich. Aus der unterhalb der SiN_x Zwischenschicht im Bereich hoher Defektreduktion gemessenen erhöhten Ga Konzentration könnte gefolgert werden, dass die metallatomterminierte Schicht direkt unterhalb vom SiN_x ebenfalls eine erhöhte Ga Konzentration aufweist und somit direkt die SiN_x Deposition hinsichtlich der Ausbildung von SiN_x Nanoinseln beeinflusst.

6.3 Veranschaulichung des AlGa_N Wachstums auf SiN_x im Modell

Basierend auf den in Kapitel 6 durchgeführten Untersuchungen an wachstumsunterbrochenen Schichten und dem in Kapitel 5 analysierten defektreduzierenden Mechanismus durch Interaktion von Versetzungsdipolen in Bereichen mit ausgebildeten SiN_x Nanoinseln soll nun

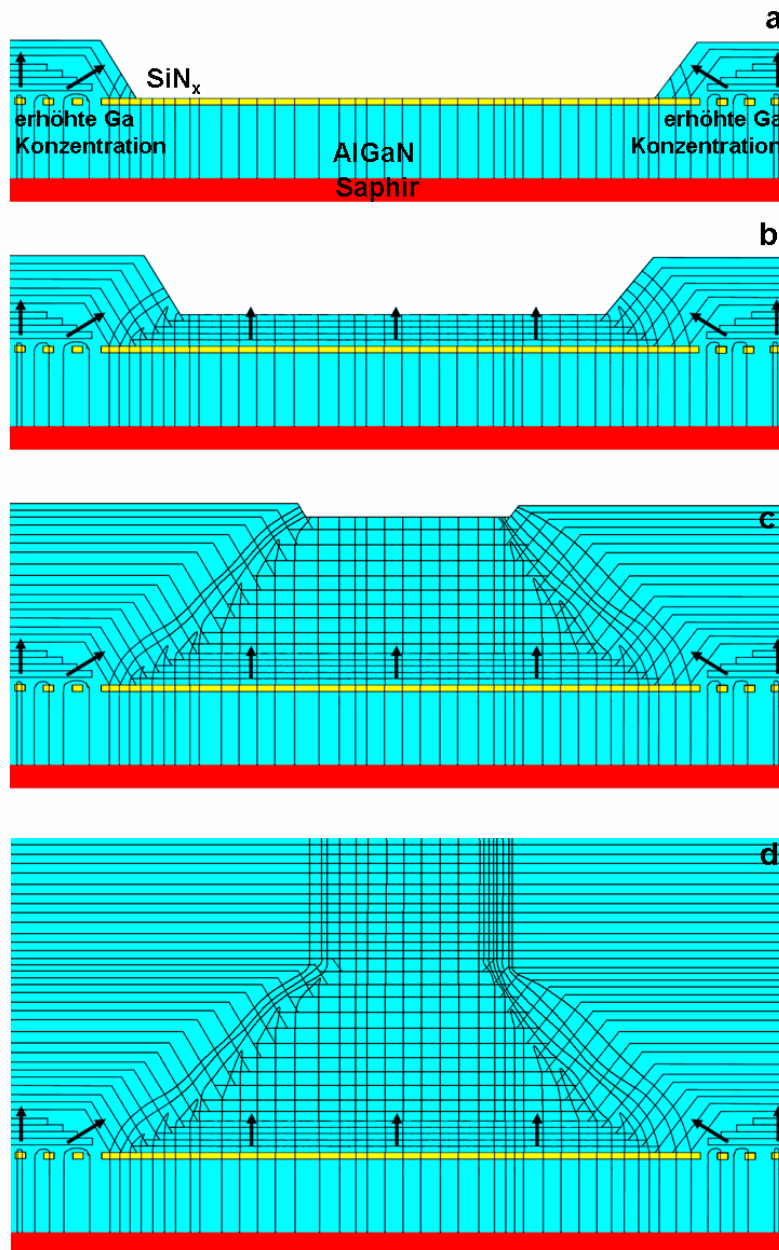


Abb. 6.8: Wachstumsmodell im Fall zweier weiter voneinander entfernter AlGa_N Mikroinseln, dargestellt in aufeinanderfolgenden Wachstumsstadien (a-d). Im Gegensatz zu Abbildung 6.7 führt die nicht eintretende Koaleszenz der Mikroinseln zu deutlich größeren Bereichen mit noch hoher Defektdichte an der Oberfläche

das bereits beschriebene Wachstumsverhalten der AlGaN Deckschicht auf der SiN_x Zwischenschicht schematisch in einem Wachstumsmodell dargestellt werden. Die Abbildungen 6.7 und 6.8 beschreiben den gesamten Wachstumsprozess der AlGaN Deckschicht auf die SiN_x Zwischenschicht bei einer jeweils unterschiedlichen Verteilung der SiN_x Nanoinseln. Wie bereits in Kapitel 6.1 ausgeführt, lassen sich abhängig vom Abstand zweier benachbarter AlGaN Mikroinseln zwei Wachstumsmechanismen voneinander unterscheiden. Abbildung 6.7 zeigt das Wachstum zweier dicht beieinander liegender AlGaN Mikroinseln, deren Koaleszenz zu sehr kleinen Bereichen mit noch hoher Defektdichte an der Oberfläche führt. Das in Abbildung 6.7d dargestellte Wachstumsstadium entspricht genau der Struktur, die in den TEM Aufnahmen in den Abbildungen 6.2a und 6.3a und c beobachtet werden kann. Die nahezu abgeschlossene Koaleszenz in Abbildung 6.7e ist experimentell in dem hervorgehobenen Bereich 1 in Abbildung 6.2b sowie in Abbildung 6.3b sichtbar. Wenn zwei AlGaN Mikroinseln wie in Abbildung 6.8 einen entsprechend großen Abstand zueinander haben, erreicht das epitaktische Wachstum in c-Richtung zwischen den AlGaN Mikroinseln dasselbe Niveau wie die Inseln selbst, bevor diese koaleszieren können. Dies führt zu deutlich größeren Bereichen mit noch hohen Defektdichten an der Oberfläche. Das in Abbildung 6.8c und d dargestellte Wachstumsstadium entspricht genau der im TEM erfassten Struktur im hervorgehobenen Bereich 2 in Abbildung 6.2c bzw. in Abbildung 5.6.

6.4 Bildung von Stapelfehlern und deren Bezug zum Wachstumsmodell

Die in den vorangegangenen Kapiteln durchgeführten Untersuchungen haben gezeigt, dass eine unterbrochene SiN_x Bedeckung mit einer optimalen Verteilung des SiN_x essentiell für hohe defektreduzierende Effizienzen ist, um die Ausbildung von Versetzungshalbschleifen durch laterales Überwachsen von SiN_x Nanoinseln mit AlGaN zu ermöglichen. Wie die folgenden TEM Analysen zeigen, muss noch ein weiterer defektreduzierender Mechanismus berücksichtigt werden, der die Durchstoßversetzungen in der AlGaN Deckschicht an einer Propagation zur Oberfläche hindert. Bei Querschnittsuntersuchungen an Probe P1 aus der [11-20] Einstrahlrichtung kann die Bildung von basalen Stapelfehlern (BSFs) in der AlGaN Deckschicht in Bereichen beobachtet werden, die in Bezug auf das entwickelte

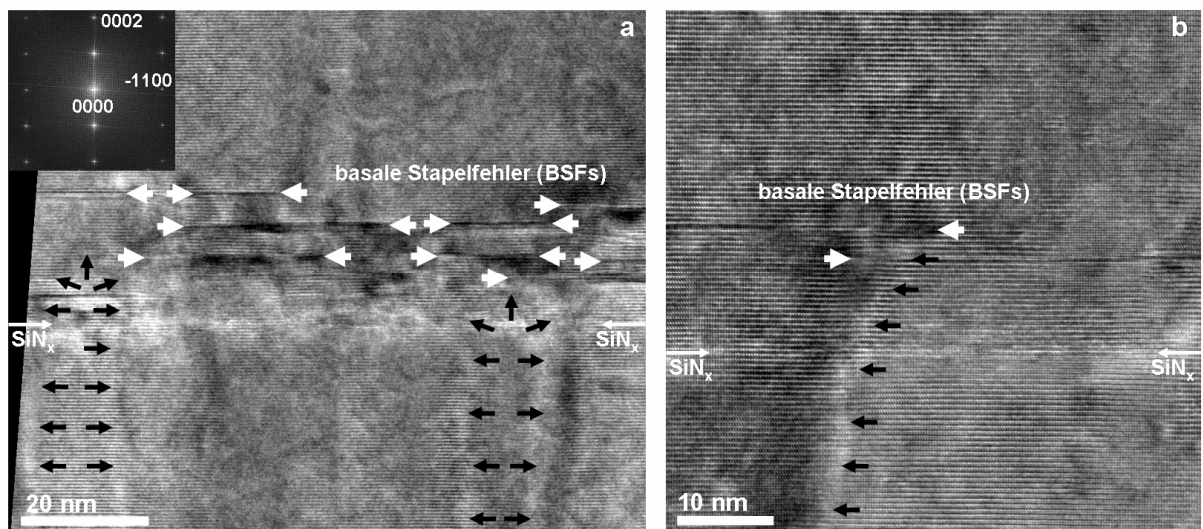


Abb. 6.9: HRTEM Aufnahmen von Probe P1 aus der [11-20] Zone im Bereich der SiN_x Zwischenschicht. Die Aufnahmen zeigen die Bildung von basalen Stapelfehlern direkt über der SiN_x Maske. Die schwarzen Pfeile markieren die Propagation der Durchstoßversetzungen. Aufnahme (a) zeigt klar die Bildung der bereits bekannten Versetzungshalbschleifen. Im Gegensatz dazu veranschaulicht Abbildung (b) die Bildung von BSFs durch Aufspaltung einer einzelnen Durchstoßversetzung, die folglich nicht mehr weiter zur Oberfläche propagiert.

Wachstumsmodell mit Bereichen variierender Wachstumsmodi korrelieren. Die HRTEM Aufnahme aus der [11-20] Zone in Abbildung 6.9a zeigt die Anhäufung von BSFs direkt oberhalb der SiN_x Zwischenschicht in einem Bereich hoher defektreduzierender Effizienz (weiße Markierungen), wohingegen die AlGaIn Deckschicht in Bereichen mit Abständen von mehr als 30nm von der SiN_x Zwischenschicht keine Stapelfehler mehr aufweist. Es wird deshalb angenommen, dass die Bildung der Stapelfehler im Zusammenhang mit der SiN_x Maske steht, die in die AlGaIn Deckschicht laterale Wachstumsrichtungen induziert. Dabei führen das laterale Überwachsen von SiN_x mit AlGaIn und die anschließende Koaleszenz der AlGaIn Nanoinseln zur Bildung basaler Stapelfehler unmittelbar über der Zwischenschicht. Ebenfalls in Abbildung 6.9a zu erkennen sind die bekannten Versetzungshalbschleifen, deren Verläufe mit den schwarzen Pfeilmarkierungen angedeutet sind. Im Gegensatz dazu zeigt Abbildung 6.9b eine einzelne Durchstoßversetzung, die im Bereich eines gebildeten Stapelfehlers nicht mehr weiter zur Oberfläche propagiert. Aus den Untersuchungen von Cho et al. [144] an bei niedrigen Temperaturen gewachsenen reinen GaN Pufferschichten ist bekannt, dass vertikale Versetzungen an BSFs verschwinden können. Hier liegt es allerdings nahe, dass diese Stapelfehler direkt aus einer Aufspaltung einer perfekten **a**-Typ Durchstoßversetzung mit $\mathbf{b} = 1/3[2-1-10]$ in zwei Shockley-Partialversetzungen entstehen, da dieser Prozess für die Bildung von BSFs in Verbindung mit perfekten Versetzungen in GaN nach den Ausführungen in [38] als am wahrscheinlichsten gilt. Der Stapelfehler wird dann terminiert durch zwei basale Shockley-Partialversetzungen, die sich mit den Burgers-Vektoren $\mathbf{b} = 1/3[1-100]$ und $1/3[10-10]$ entlang der Gleitebene bewegen können (siehe hierzu auch Kapitel 3.5). Abbildung 6.10 zeigt die HRTEM Analyse eines einzelnen basalen Stapelfehlers direkt über der SiN_x Zwischenschicht. Der vergrößerte Bereich in Abbildung 6.10b identifiziert den zweidimensionalen Defekt eindeutig als BSF mit einer einfachen Verletzung in der Stapelfolge, gegeben durch ABABABCBCBCBC. Wie bereits in Kapitel 3.5 erläutert, ist ein derartiger intrinsischer I₁-Typ Stapelfehler an eine Frank-Partialversetzung Typ I mit dem Burgers-Vektor $\mathbf{b} = 1/6[2-203]$ gebunden. Es ist bekannt, dass diese I₁-Typ Stapelfehler wachstumsinduziert während des Wachstumsprozesses und nicht verspannungsbedingt während oder nach dem Wachstum entstehen [115]. Dies bestätigt die Annahme, dass die BSFs während des Wachstumsprozesses bedingt durch die laterale Koaleszenz von AlGaIn Nanoinseln gebildet werden, induziert durch das Überwachsen des anti-surfactants SiN_x mit AlGaIn.

Ebenfalls bemerkenswert ist die spezielle Anordnung einer Vielzahl von BSFs in einer Richtung, die bezüglich des Wachstumsmodells mit dem Verlauf des Grenzbereichs interagierender vertikaler und lateraler Wachstumsrichtungen im Randbereich der

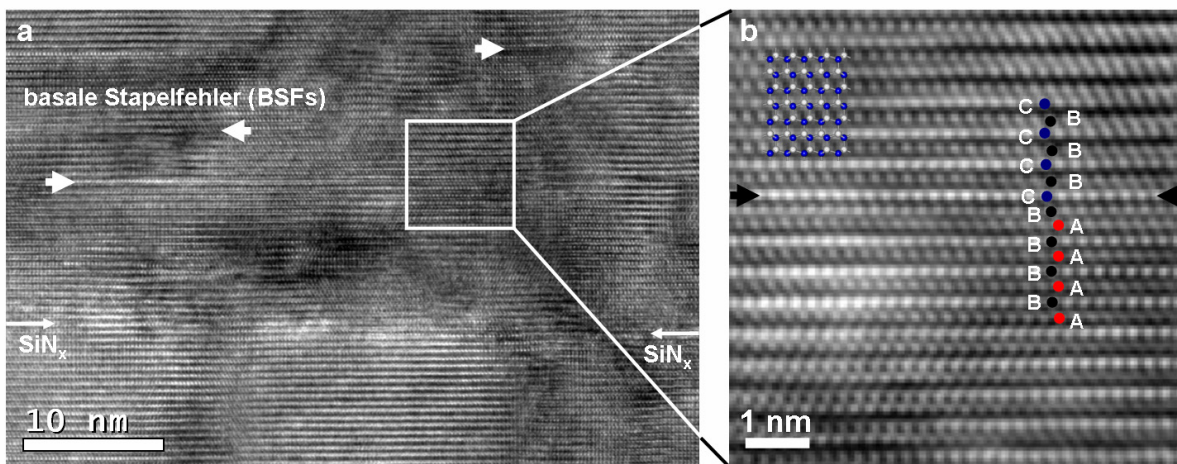


Abb. 6.10: HRTEM Analyse eines einzelnen basalen Stapelfehlers. Der vergrößerte Bereich in (b) identifiziert den Stapelfehler als einfache Verletzung der Stapelfolge, d.h. ABABABCBCBCBC.

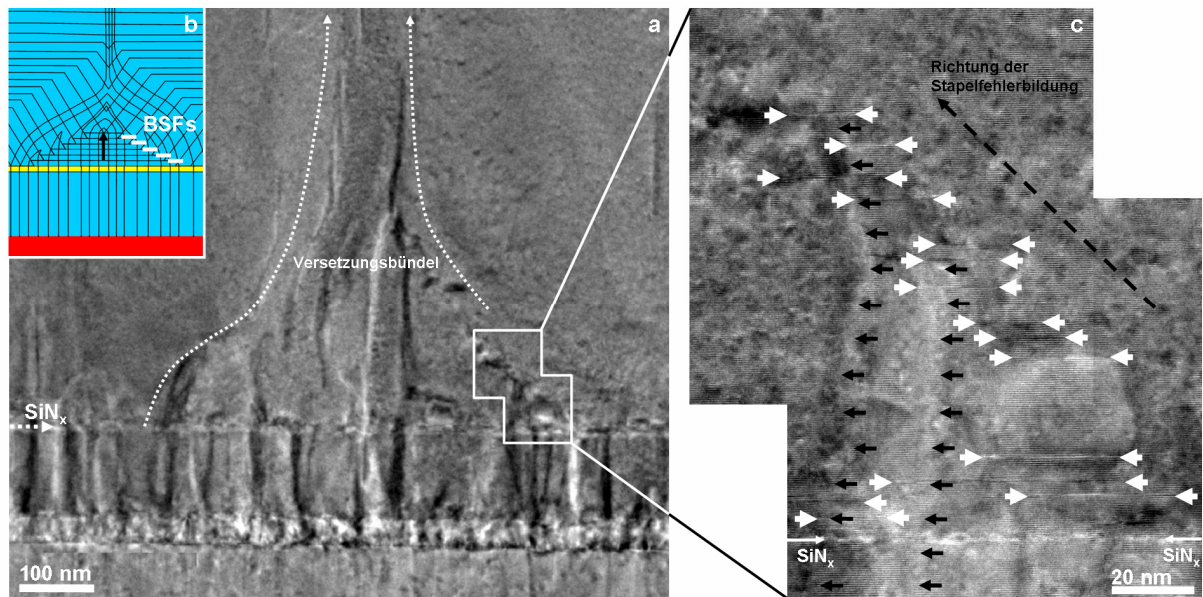


Abb. 6.11: Bildung von basalen Stapelfehlern (weiße Markierungen in (c)) mit zunehmendem Abstand von der SiN_x Zwischenschicht. In Übereinstimmung mit dem Wachstumsmodell (b) korreliert die Anordnung der BSFs mit dem Verlauf des Grenzbereichs interagierender vertikaler und lateraler Wachstumsrichtungen im Randbereich eines Versetzungsbündels. Einige Stapelfehler gehen aus der Aufspaltung von Durchstoßversetzungen in basale Partialversetzungen hervor, was sich in einer zusätzlichen Reduzierung der Versetzungsdichte äußert, da die perfekten Versetzungen an den so gebildeten Stapelfehlern nicht weiter zu Oberfläche propagieren. Der Verlauf zweier derartiger Versetzungen ist in (c) mit schwarzen Pfeilen markiert.

Versetzungsbündel korreliert. In Abbildung 6.11 ist der Zusammenhang dargestellt. Deutlich sind BSFs sichtbar, die eine gestapelte Anordnung entlang des Randbereichs eines Versetzungsbündels aufweisen. Die Stapelfehler reichen dabei mit einer Entfernung von der SiN_x Zwischenschicht von über 100nm relativ weit in AlGaIn Deckschicht hinein. Der in Abbildung 6.11c untersuchte Bereich ist in der Hellfeldaufnahme in Abbildung 6.11a markiert und stimmt mit den Bereichen überein, in denen entsprechend des Wachstumsmodells vertikale und laterale Wachstumsrichtungen der AlGaIn Deckschicht zusammentreffen. Der entsprechende Bereich im Wachstumsmodell ist in Abbildung 6.11b dargestellt, wobei die experimentell beobachteten BSFs zur Illustration im Modell ebenfalls eingezeichnet sind. Die HRTEM Aufnahme in Abbildung 6.11c zeigt darüber hinaus Durchstoßversetzungen, die wie im Bereits beschriebenen Prozess zu Abbildung 6.9b an einem basalen Stapelfehler nicht weiter zur Oberfläche propagieren. Die Bildung dieser Stapelfehler durch Aufspaltung von perfekten Versetzungen kann der Grund für das Entstehen von relativ scharf definierten Grenzen zwischen Bereichen hoher und niedriger Defektdichte in einigen primären AlGaIn Mikroinseln sein. Der hervorgehobene Bereich 3 in Abbildung 6.2c zeigt eine solche AlGaIn Mikroinsel. Die weißen Pfeile markieren die scharf definierte Grenzlinie zwischen dem Bereich hoher (innerhalb des Versetzungsbündels) und geringer Defektdichte (innerhalb der Mikroinsel), an der die BSFs durch Aufspaltung der Durchstoßversetzungen in basale Partialversetzungen gebildet werden.

Zusammenfassend lässt sich also folgern, dass wachstumsinduzierte BSFs und durch Aufspaltung von perfekten Versetzungen entstandene BSFs in Bereichen der AlGaIn Deckschicht auftreten, die in Übereinstimmung mit dem Wachstumsmodell in Zusammenhang mit Variationen in den Wachstumsmodi der Deckschicht stehen. Dies bedeutet, dass die Entstehung dieser Stapelfehler lokalen Störungen in der AlGaIn Epitaxie zugeordnet werden kann, da die BSFs in Bereichen auftreten, in denen gemäß des Wachstumsmodells unterschiedliche epitaktische Wachstumsrichtungen aufeinander treffen. Die laterale Wachstumskomponente von AlGaIn kann die Propagation einer Durchstoßversetzung in eine basale Richtung ändern. Es ist bekannt, dass sich eine in der

{0001} Basalebene liegende Versetzung aufgrund der niedrigen Bildungsenergie des Stapelfehlers in der Basalebene sehr leicht aufspalten kann [145, 146]. Die Aufspaltung von Durchstoßversetzungen resultiert in einer zusätzlichen Reduzierung der Versetzungsdichte, da die Versetzungen an den so gebildeten Stapelfehlern nicht weiter zur Oberfläche propagieren.

6.5 Zusammenfassung

In Kapitel 6 wurde ein Modell für das Wachstum der AlGa_N Deckschicht auf der SiN_x Zwischenschicht vorgestellt. Dabei erfolgte die Entwicklung des Wachstumsmodells anhand von Querschnittsuntersuchungen an wachstumsunterbrochenen Schichten, die Untersuchungen in unterschiedlichen Wachstumsstadien der AlGa_N Deckschicht ermöglichen. Es wurde gezeigt, dass die in der AlGa_N Deckschicht stattfindende Versetzungsverbiegung und –bündelung Variationen in den Wachstumsmodi zugeschrieben werden muss, die wiederum von der SiN_x Bedeckung und Verteilung abhängen. Das Wachstum von primären AlGa_N Mikroinseln mit sowohl vertikaler als auch lateraler Wachstumskomponente in Bereichen mit hoher defektreduzierender Effizienz wechselt sich mit einem ebenen AlGa_N Schichtwachstum mit einer Wachstumskomponente nur in vertikaler c-Richtung in Bereichen geringer defektreduzierender Effizienz ab. Die EDX Messungen auf der SiN_x Zwischenschicht zeigen eine hohe Si Konzentration in Bereichen, in denen die meisten Durchstoßversetzungen ungehindert durch die Zwischenschicht hindurch weiterpropagieren, wohingegen in Bereichen mit hoher defektreduzierender Wirkung Silizium mittels EDX nicht nachweisbar ist. Der durch die wachstumsunterbrochenen Schichten ermöglichte direkte Vergleich der SiN_x Verteilung zwischen Bereichen hoher und niedriger Defektreduktion mittels einer geometrischen Phasenanalyse an Hochauflösungsaufnahmen erklärt das mittels EDX erhaltene Ergebnis für die Si Konzentrationen. Während die SiN_x Zwischenschicht außerhalb der AlGa_N Mikroinseln in Bereichen geringer Defektreduktion praktisch eine geschlossene Bedeckung der darunterliegenden AlGa_N Schicht bildet, können in Bereichen hoher Defektreduktion innerhalb der Mikroinseln voneinander getrennte SiN_x Nanoinseln nachgewiesen werden. Um also eine hohe defektreduzierende Wirkung der SiN_x Nano-Maske zu erzielen, ist eine unterbrochene Bedeckung mit SiN_x und eine Verteilung der SiN_x Nanoinseln im Nanometerbereich notwendig, damit sich geschlossene Versetzungsdipole durch laterales Überwachsen der Nanoinseln bilden können. Dies bedeutet, dass die Bildung von Versetzungshalbschleifen nicht direkt der lateralen Koaleszenz der AlGa_N Mikroinseln zugeschrieben werden kann, da diese Abstände von mehreren 100nm bis μm haben können. Tatsächlich muss die Bildung der Versetzungshalbschleifen als dominierender defektreduzierender Effekt auf das laterale Überwachsen der nur wenige Nanometer großen SiN_x Inseln innerhalb einer AlGa_N Mikroinsel zurückgeführt werden. Eine geschlossene Bedeckung mit SiN_x induziert kein laterales Wachstum und damit keinen defektreduzierenden Effekt. Allerdings trägt abgesehen von der Halbschleifenbildung ein weiterer Mechanismus zur Defektreduktion in der AlGa_N Deckschicht bei. Die Bildung von basalen Stapelfehlern (BSFs) durch Aufspaltung von perfekten Versetzungen in basale Partialversetzungen verhindert eine weitere Propagation von Durchstoßversetzungen zur Oberfläche. Dabei ist bemerkenswert, dass die BSFs in Bereichen der AlGa_N Deckschicht zu beobachten sind, die hinsichtlich des entwickelten Wachstumsmodells in Zusammenhang mit Variationen in der AlGa_N Epitaxie stehen.

Zusammenfassend lässt sich also sagen, dass der Schlüssel zu einer durchgehend niedrigen Defektdichte in einer mittels MOVPE gewachsenen Al_{0,2}Ga_{0,8}N Schicht in einer über das gesamte Schichtsystem hinweg optimalen Verteilung vom SiN_x in Form von SiN_x Nanoinseln liegt. Leider lässt sich die Verteilung der in-situ deponierten Maske nur indirekt über die Wachstumstemperatur und die SiH₄ Einlasszeit beeinflussen. Allerdings zeigen die orts aufgelösten EDX Messungen einen Zusammenhang zwischen Variationen in der Al/Ga

Konzentration unterhalb der SiN_x Zwischenschicht und der SiN_x Verteilung. Die in der Hochauflösung durchgeführten geometrischen Phasenanalysen in Verbindung mit den orts aufgelösten Konzentrationsmessungen an den wachstumsunterbrochenen Schichten mittels EDX zeigen, dass eine optimale SiN_x Verteilung in Bereichen beobachtet wird, wo Al zunehmend durch Ga substituiert wird, wobei die Konzentrationsfluktuationen in der vor SiN_x gewachsenen $\text{Al}_{0.2}\text{Ga}_{0.8}\text{N}$ Pufferschicht in Bereichen von bis zu 5at% liegen. Dies könnte bedeuten, dass die sich ändernde SiN_x Bedeckung, die zu unterschiedlichen Wachstumsmodi der AlGaN Deckschicht führt, aus Variationen in der Al/Ga Konzentration unterhalb der Zwischenschicht resultiert. Somit wären Variationen in der Zusammensetzung der vor der SiN_x Zwischenschicht gewachsenen AlGaN Pufferschicht ebenfalls ein entscheidender Parameter für die Optimierung der SiN_x Verteilung.

7 Abschließende Darstellung der Ergebnisse und Ausblick

7.1 Zusammenfassung der Ergebnisse

In der vorliegenden Arbeit wurden mittels MOVPE auf Saphir gewachsene AlGa_N Heterostrukturen durch Methoden der hochauflösenden Transmissionselektronenmikroskopie untersucht. Der Schwerpunkt lag dabei in der Analyse der defektreduzierenden Wirkung von in-situ abgeschiedenen SiN_x Zwischenschichten. Es wurde gezeigt, dass durch eine optimierte Deposition von SiN_x die Versetzungsdichte in Al_{0,2}Ga_{0,8}N oberhalb der Zwischenschicht um mehr als 95% auf $9 \cdot 10^9 \text{cm}^{-2}$ reduziert werden kann. Wie die Querschnittsuntersuchungen unter Anwendung der weak-beam dark-field (WBDF) Technik ergaben, wurde dieser hohe Grad der Defektreduktion für die **a**-Typ Durchstoßversetzungen jedoch nicht homogen für die gesamte SiN_x Zwischenschicht erreicht. Vielmehr wechseln sich entlang der SiN_x Zwischenschicht Bereiche mit hoher und niedriger defektreduzierender Wirkung bei einer lateralen Ausdehnung von jeweils mehreren 100nm ab. Allerdings wurden gerade durch die klare Trennbarkeit von Bereichen mit hoher und niedriger defektreduzierender Wirkung detaillierte TEM Analysen zur Wirkungsweise einer in-situ deponierten SiN_x Zwischenschicht unter Anwendung verschiedener Methoden wie WBDF, HRTEM und EDX möglich, da sich innerhalb eines Schichtsystems die jeweiligen Bereiche direkt miteinander vergleichen ließen. Aus den Querschnittsuntersuchungen war in dem gewachsenen Schichtsystem eine ungewöhnliche aber markante Versetzungsstruktur zu beobachten, gegeben durch eine variierende defektreduzierende Effizienz der SiN_x Zwischenschicht in Kombination mit einem charakteristischen Bündelungseffekt für die Durchstoßversetzungen oberhalb der Zwischenschicht in Bereichen geringer Defektreduktion. Hieraus folgten die in der Einleitung formulierten Fragestellungen, deren Beantwortung in dieser Arbeit zu einem tieferen Verständnis der Wirkungsweise von SiN_x Zwischenschichten führten. Nachfolgend werden die neuen wissenschaftlichen Erkenntnisse unter Bezugnahme auf die eingangs gestellten Fragen nochmals zusammengefasst:

- Wie kann der eigentliche Mechanismus der Defektreduktion mittels einer in-situ abgeschiedenen SiN_x Zwischenschicht in den untersuchten AlGa_N Heterostrukturen beschrieben werden?

Durch die Entwicklung eines atomaren Versetzungsmodells konnte mittels vergleichender Bildsimulationen gezeigt werden, dass die Defektreduktion hinsichtlich der **a**-Typ Stufenversetzungen auf die Entstehung von basalen Versetzungssegmenten an der SiN_x Zwischenschicht zurückzuführen ist, welche die Durchstoßversetzungen miteinander interagieren lassen und zur Ausbildung von Versetzungshalbschleifen führen. Eine Terminierung der Durchstoßversetzungen an der SiN_x Zwischenschicht konnte nicht beobachtet werden. Die bis auf atomarer Ebene gegebene Übereinstimmung der simulierten Bildkontraste mit den experimentellen Abbildungen identifizierte die Versetzungshalbschleifen als das Ergebnis einer Interaktion von Versetzungsdipolen über einen Kletterprozess. Eine entsprechend den Anforderungen an die TEM Untersuchungen speziell hergestellte Aufsichtsprobe, die vor der klassischen Präparation von der Schichtseite aus bis auf wenige Nanometer an die SiN_x Zwischenschicht heran abgeätzt wurde, ermöglichte im TEM sogar die direkte Abbildung und den Nachweis der basalen Versetzungssegmente an der SiN_x Zwischenschicht in einer Projektionsebene parallel zur Substratoberfläche. Darüber hinaus ermöglichte dieses Präparat in Kombination mit einer klassischen Aufsichtsprobe die Bestimmung der Versetzungsdichten in verschiedenen Tiefen des Schichtsystems. Hierdurch konnte die defektreduzierende Wirkung der SiN_x Zwischenschicht mit der selektiven Erfassung von Probenbereichen unterhalb und direkt

oberhalb der Zwischenschicht sowie an der Schichtoberfläche auch quantitativ bewertet werden.

- Was ist die Ursache für eine variierende defektreduzierende Effizienz der SiN_x Zwischenschicht, bzw. besteht ein Zusammenhang zwischen der defektreduzierenden Effizienz der Zwischenschicht und deren Nanostrukturierung?
- Wie beeinflusst die SiN_x Deposition das Wachstum der AlGaIn Deckschicht?

Aus epitaktischer Sicht und hinsichtlich einer möglichen weiteren Optimierung der defektreduzierenden Wirkung der SiN_x Zwischenschicht in AlGaIn ist die Beantwortung dieser Fragestellungen wohl am bedeutendsten einzustufen. Entscheidend für die Gewinnung neuer Erkenntnisse hierzu waren die Querschnittsuntersuchungen an Schichten, bei denen das Wachstum der AlGaIn Deckschicht nach unterschiedlichen Überwachszeiten abgebrochen wurde. Dadurch war es möglich, das Wachstumsverhalten der AlGaIn Deckschicht in verschiedenen Wachstumsstadien zu verfolgen und die in der fertig gewachsenen Schicht beobachtete Versetzungsstruktur einschließlich des Bündelungseffekts mit der Ausbildung verschiedener epitaktischer Wachstumsmodi während des Schichtwachstums zu korrelieren. Diese zeichnen sich durch das Wachstum von primären AlGaIn Mikroinseln mit sowohl vertikaler als auch lateraler Wachstumskomponente und einem ebenen AlGaIn Schichtwachstum mit nur vertikaler Komponente zwischen den Mikroinseln aus. Dabei sind die AlGaIn Mikroinseln in Bereichen mit hoher defektreduzierender Effizienz der Zwischenschicht lokalisiert und in der Querschnittsprojektion nahezu defektfrei. Hingegen wird das ebene zweidimensionale epitaktische Wachstum in nur vertikaler Richtung in Bereichen mit geringer Defektreduktion beobachtet. Es wurde gezeigt, dass eine unterschiedliche SiN_x Bedeckung die Ursache für die variierende defektreduzierende Effizienz der Zwischenschicht und für die Ausbildung verschiedener Wachstumsmodi ist. Während die SiN_x Zwischenschicht außerhalb der AlGaIn Mikroinseln in Bereichen geringer defektreduzierender Effizienz eine nicht unterbrochene geschlossene Bedeckung aufweist, wurden in Bereichen hoher Defektreduktion innerhalb der Mikroinseln voneinander getrennte SiN_x Nanoinseln nachgewiesen. Aufgrund des reduzierten selektiven Wachstums von AlGaIn deponiert sich das Material auch auf der SiN_x Schicht. Da sich allerdings bei einer geschlossenen SiN_x Bedeckung kein laterales Wachstum einstellen kann, propagieren die Durchstoßversetzungen entsprechend der epitaktischen Wachstumsrichtung in vertikaler Richtung weiter zur Oberfläche. Die Tatsache, dass die Durchstoßversetzungen nicht an der Zwischenschicht terminiert werden, deutet darauf hin, dass sich die SiN_x Schicht kristallin in das Schichtsystem einbaut. Innerhalb der Mikroinseln führt das zunächst laterale Überwachsen der voneinander getrennten SiN_x Nanoinseln mit AlGaIn zur Ausbildung der im Detail untersuchten Versetzungshalbschleifen. Entgegen der gängigen Annahme, dass die defektreduzierende Wirkung einer in-situ abgeschiedenen SiN_x Zwischenschicht in reinem GaN in der lateralen Koaleszenz der Mikroinseln liegt, die in Bereichen nukleieren, welche frei von SiN_x sind, muss in AlGaIn die eigentliche defektreduzierende Wirkung der Existenz von SiN_x Nanoinseln innerhalb einer AlGaIn Mikroinsel zugeschrieben werden, die durch laterales Überwachsen die Ausbildung von Versetzungshalbschleifen induzieren. Die Verknüpfung der aus verschiedenen TEM-Methoden erhaltenen Ergebnisse, darunter die simulationsgestützte Analyse der Dipolinteraktion, die Messung der variierenden SiN_x Verteilung und die aus den wachstumsunterbrochenen Schichten ermöglichte Korrelation der Versetzungsstruktur einschließlich des Bündelungseffekts mit der Ausbildung unterschiedlicher epitaktischer Wachstumsmodi oberhalb der SiN_x Zwischenschicht, erlaubte die Entwicklung eines Modells für das Wachstum der AlGaIn Deckschicht auf SiN_x .

Schlussfolgernd kann festgestellt werden, dass in $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ auch bei relativ hohen Al Konzentrationen von $x = 0.2$ eine in-situ deponierte SiN_x Zwischenschicht eine wirkungsvolle Möglichkeit bietet, die Versetzungsdichte zu reduzieren. Dabei stellt die Realisierung einer durchweg optimalen SiN_x Verteilung mit SiN_x Nanoinseln einen entscheidenden Parameter dar, über große Bereiche hinweg hohe defektreduzierende Effizienzen der Zwischenschicht zu erzielen.

Es sei abschließend erwähnt, dass es im Rahmen des „Deep UV-LED“ Projekts durch die Optimierung der $\text{Al}_{0.2}\text{Ga}_{0.8}\text{N}$ Quasisubstrate auf Saphir mittels SiN_x Zwischenschichten gelungen ist, AlGaN LED Heterostrukturen mit einer Emissionswellenlänge von 350nm abzuschneiden, die mit einer externen Quanteneffizienz (EQE) $> 1\%$ eine optische Lichtleistung im deutlichen mW-Bereich aufweisen [95].

7.2 Ausblick - Möglichkeiten der dreidimensionalen Analyse von Versetzungen in AlGaN mittels Elektronentomographie

In weiten Teilen dieser Arbeit war die bevorzugte Analysemethode im TEM die WBDF Technik. Mittels der WBDF Analyse von Querschnittspräparaten war es möglich, die Versetzungsstruktur über das gesamte Schichtsystem hinweg zu charakterisieren. So konnte eine variierende defektreduzierende Wirkung der SiN_x Zwischenschicht und deren defektreduzierender Mechanismus durch die Ausbildung von Versetzungshalbschleifen identifiziert werden. Zur genauen Beschreibung der Versetzungsinteraktion hinsichtlich eines möglichen Gleit- oder Kletterprozesses war allerdings projektionsbedingt die Analyse von Aufsichtspräparaten notwendig, um durch den Nachweis der basalen Versetzungssegmente die Lage der Versetzungshalbschleifen im Kristall bestimmen zu können. Um allerdings in der Aufsicht die SiN_x Zwischenschicht erfassen zu können, musste das Schichtsystem vor der eigentlichen Präparation zudem nahe an die SiN_x Schicht heran abgeätzt werden. Auch erforderte die inhomogene Versetzungsstruktur des Schichtsystems unterschiedliche Aufsichtspräparate, um die variierenden Versetzungsdichten in verschiedenen Probertiefen bestimmen zu können. Dementsprechend sind derartige Versetzungsanalysen in der konventionellen zweidimensionalen Transmissionselektronenmikroskopie sehr aufwändig. Darüber hinaus ermöglicht die Verwendung von Querschnitts- und Aufsichtspräparaten nicht die Analyse derselben Versetzungslinie aus unterschiedlichen Projektionen. Eine alternative Möglichkeit, derartige Versetzungsanalysen im TEM aus unterschiedlichen Projektionen mit nur einer Probe durchführen zu können, würde sich durch die dreidimensionale Erfassung der Versetzungsstruktur im Volumen mittels der Elektronentomographie ergeben. Die Durchführbarkeit der Versetzungstomographie speziell in AlGaN soll gestützt durch erste Experimente nachfolgend evaluiert werden.

7.2.1 Aspekte der Versetzungstomographie und experimentelle Voraussetzungen

Die grundlegenden Prinzipien der Elektronentomographie werden im Folgenden kurz zusammengefasst, wobei für umfangreiche Ausführungen auf die detaillierte Literatur verwiesen sei (siehe z.B. [147, 148]). Im Gegensatz zu konventionellen TEM Abbildungen (Projektionen) werden durch die Elektronentomographie im TEM dreidimensionale Darstellungen (Tomogramme) von Objekten möglich. Dabei basiert die Methode der Tomographie auf der Rekonstruktion dreidimensionaler Objekte aus zweidimensionalen Projektionen. Speziell in der TEM-Tomographie wird die Probe zur Aufnahme der zweidimensionalen Projektionen typischerweise um eine feste Achse rotiert. Dabei ergibt sich die sogenannte Kippserie als Bildstapel durch die Aufnahme zweidimensionaler TEM-Projektionen in einem konstanten Winkelintervall. Bei einer festen Schrittweite des

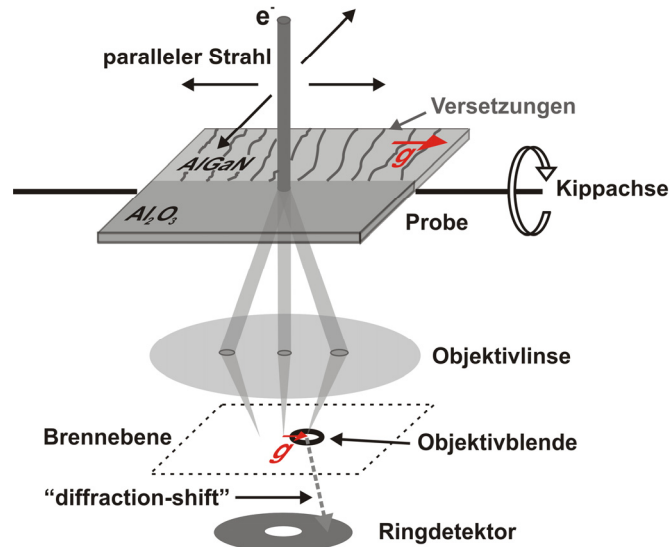


Abb. 7.1: „Microprobe“ dark-field STEM Modus zur dreidimensionalen Aufnahme von Versetzungen im Beugungskontrast. Der im Dunkelfeld verwendete g -Reflex wird mit der Objektivblende selektiert und mittels des „diffraction-shifts“ auf den Ringdetektor geschoben. Um den Anregungsfehler des g -Reflexes über die gesamte Kippserie hinweg konstant zu halten, muss der g -Vektor parallel zur Kippachse orientiert sein.

Kippwinkel ist die Anzahl der aufgenommenen Projektionen proportional zum erfassten Winkelbereich für die gesamte Kippserie und die Intensitätsprofile entlang einer Linie senkrecht zur Kippachse aus dem gesamten Bildstapel ergeben ein sogenanntes Sinogramm, das mathematisch eine Radon-Transformation darstellt und für die digitale tomographische Rekonstruktion benutzt wird. Aus der inversen Radon-Transformation ergibt sich dann als sogenannte Rückprojektion die Rekonstruktion des dreidimensionalen Objekts. Generell ist abhängig vom verwendeten Mikroskop und Probenhalter der maximale Winkelbereich für die Aufnahme der Kippserie limitiert und es ergeben sich im TEM typische Kippwinkel im Bereich von $\pm 70^\circ$. Dabei kann der nicht erfassbare Winkelbereich, auch „missing wedge“ genannt, zu Artefakten bei der Rekonstruktion führen. Eine wichtige Voraussetzung für die korrekte Rekonstruktion des dreidimensionalen Objekts wird in [147-149] formuliert. Dabei muss das projizierte Bildsignal eine streng monotone Funktion von einer projizierten physikalischen Größe sein. Konkret besagt dieses sogenannte Rekonstruktionstheorem, dass das Volumen eines Objekts mit homogener Massendichte in der Rekonstruktion nur dann richtig wiedergegeben wird, wenn sich das aufgenommene Bildsignal streng monoton mit der projizierten Objektdicke verhält. Diesbezüglich ist das Projektionskriterium bei Verwendung konventioneller TEM Hellfeldaufnahmen an kristallinen Materialien nicht erfüllt, da die abhängig von der Projektionsrichtung variierenden Beugungskontraste den Massendickekontrast dominieren. Deshalb wird im TEM zur Aufnahme einer tomographischen Kippserie an kristallinen Strukturen bevorzugt der HAADF-STEM Modus verwendet (siehe Kapitel 4.1.7), da sich durch die abnehmende Strahlkohärenz bei großen Streuwinkeln die Beugungskontraste unterdrücken lassen und so über den Massendickekontrast das dreidimensionale Objekt korrekt rekonstruiert werden kann.

Da Versetzungen im TEM allerdings gerade über den Beugungskontrast sichtbar gemacht werden (siehe Kapitel 4.1.4), stellt die experimentelle Aufnahme von Versetzungen in einer tomographischen Kippserie und auch die Rekonstruktion des Versetzungsnetzwerks im Volumen hinsichtlich des Rekonstruktionstheorems eine besondere Herausforderung dar. Entscheidend für einen optimalen Versetzungskontrast über sämtliche Projektionsrichtungen hinweg ist ein konstanter Anregungsfehler bezüglich des gewählten g -Reflexes während der Aufnahme der gesamten Kippserie. Erste Experimente zur dreidimensionalen Analyse von Versetzungsnetzwerken in GaN mittels der WBDF Elektronentomographie wurden bereits

von Barnard et al. [150] vorgestellt. Dabei erfolgte die Aufnahme der tomographischen Kippserie im TEM Modus unter der **g**-3**g** WBDF Bedingung. Alternativ zu den Experimenten von Barnard et al. wurden in der vorliegenden Arbeit erste Experimente zur Aufnahme einer tomographischen WBDF Kippserie zur dreidimensionalen Darstellung eines Versetzungsnetzwerks in AlGaIn mittels des „microprobe“ dark-field STEM Modus durchgeführt. Abbildung 7.1 zeigt schematisch den Strahlengang der verwendeten Aufnahmetechnik. Im Gegensatz zum konventionellen STEM Modus, bei welchem ein auf die Probe fokussierter konvergenter Strahl verwendet wird („nanoprobe“), kommt bei der „microprobe“ DF STEM Technik ein nahezu paralleler Strahl mit einem Strahldurchmesser von ca. 2nm zum Einsatz. Dies verringert zwar die laterale Auflösung, hat im Vergleich zum konventionellen STEM oder TEM Modus allerdings den großen Vorteil, dass bedingt durch die größere Tiefenschärfe auch bei hohen Kippwinkeln die Aufnahme über große Probenbereiche hinweg fokussiert bleibt [151]. Die im konventionellen STEM Modus notwendige dynamische Fokusanpassung während der Aufnahme der Kippserie entfällt somit. Eine Refokussierung der Probe im TEM Modus durch manuelle Anpassung der Probenhöhe, wie von Barnard et al. beschrieben [150], ist ebenfalls nicht erforderlich. Bei der untersuchten Probe handelt es sich um die in Kapitel 6.1 beschriebene wachstumsunterbrochene Schicht (Probe P5). In Abbildung 7.1 ebenfalls dargestellt ist die Orientierung der TEM Lamelle im Mikroskop. Um den Anregungsfehler des zur Aufnahme der **a**-Typ Durchstoßversetzungen verwendeten 2-1-10 Reflexes über die komplette Kippserie konstant zu halten, muss die den **g**-Reflex enthaltene systematische **g**-Reflexlinie parallel zur Kippachse des Probenhalters orientiert sein. Die Realisierung dieser Beugungsbedingung stellt im Experiment allerdings die größte Herausforderung dar, da zur exakten Justierung der Probe in einem standardmäßigen „single-tilt“ Tomo-Probenhalter die dafür notwendig zweite Kippachse fehlt. In den Experimenten von Hata et al. [152] zur dreidimensionalen Aufnahme von Versetzungsnetzwerken in Austenitstahl wurde das Problem durch den Einsatz eines speziellen „triple-axis“ Tomo-Probenhalters gelöst. Da in dieser Arbeit ein solcher Halter nicht zur Verfügung stand, war man von Präparationsseite her auf eine möglichst genaue Vororientierung der Probe im Halter angewiesen. Dennoch vorhandene Missorientierungen von wenigen Grad konnten durch Auswahl entsprechend verbogener Schichtbereiche kompensiert werden. Mittels der Objektivblende wird der **g**-Reflex selektiert und über den „diffraction-shift“ im Projektionssystem auf den Ringdetektor geschoben.

7.2.2 Aufnahme der Kippserie und erste Ergebnisse

Abbildung 7.2 zeigt nun die an der SiN_x Zwischenschicht aufgenommene tomographische Kippserie von Probe P5 in einem Grenzbereich hoher und niedriger defektreduzierender Effizienz. Gekippt wurde im Experiment von -60° bis +60° in 2°-Schritten. Höhere Kippwinkel wurden aufgrund der verringerten Bewegungsfreiheit des Probenhalters im TEM bei Verwendung der Objektivblende nicht angefahren. In Abbildung 7.2 sind die einzelnen Projektionen der Kippserie von 0° bis 50° in 10°-Schritten dargestellt. Zur besseren Erkennung sind die in der 0°-Projektion markierten Versetzungen in den weiteren Projektionen farblich markiert. Bereits bei einem Kippintervall zwischen 0° und 50° kann ein dreidimensionaler Eindruck über die Lage der Versetzungen im Kristallvolumen gewonnen werden. Während in der 0°-Querschnittsprojektion keine Aussage über die Position einer Versetzungshalbschleife in Projektionsrichtung möglich ist, lässt sich bei Verfolgung der Kippserie bis zum Winkel von 50° klar die Lage der markierten Versetzungen in unterschiedlichen Probentiefen erkennen. Auch scheinen die basalen Versetzungssegmente gleichermaßen in eine Richtung hoher Symmetrie orientiert zu sein (hier: [2-1-10]), wodurch die in Kapitel 5 erzielten Ergebnisse hinsichtlich der im Detail untersuchten Dipolinteraktion bestätigt werden. Es konnte in diesem Experiment bereits gezeigt werden, dass die „microprobe“ DF STEM Technik grundsätzlich zur dreidimensionalen Aufnahme von

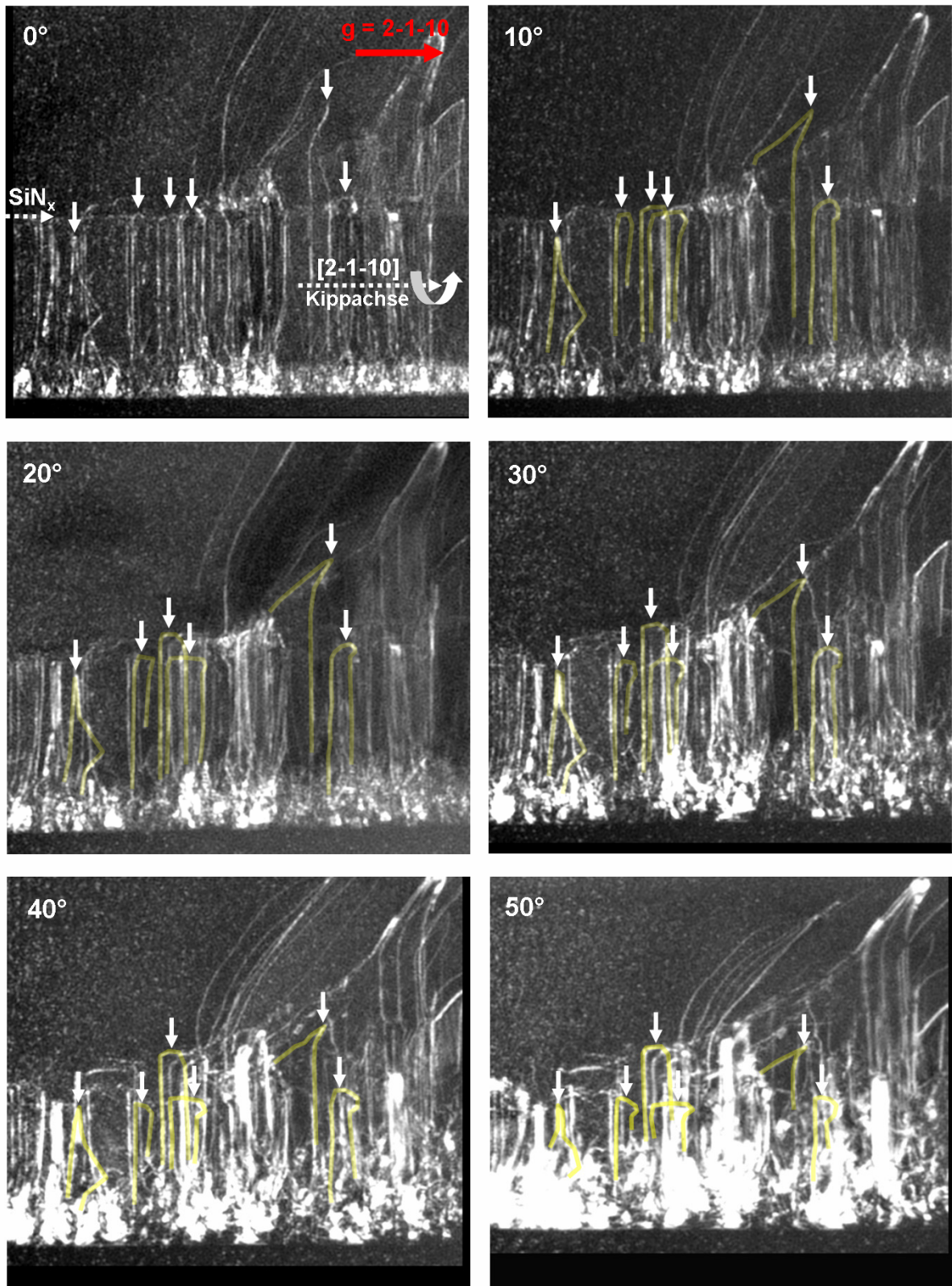


Abb. 7.2: Tomographische Kippserie aufgenommen mittels der „microprobe“ DF STEM Technik zur dreidimensionalen Abbildung des Versetzungsnetzwerks in AlGaIn nahe der SiN_x Zwischenschicht. Dargestellt sind Einzelprojektionen der Kippserie von 0° bis 50° in 10°-Schritten. Die Kippserie zeigt bereits die Anordnung der zur besseren Sichtbarkeit farblich markierten Versetzungen in unterschiedlichen Probentiefen. Ebenfalls erkennbar ist die Orientierung der basalen Versetzungssegmente gleichermaßen in eine Richtung hoher Symmetrie (hier: $[2-1-10]$).

Versetzungsnetzwerken geeignet ist. Leider war es noch nicht möglich, mittels der aufgenommenen Kippserie eine vollständige dreidimensionale Volumenrekonstruktion zu

erstellen. Der wesentliche Grund hierfür liegt in dem bei einem Kippbereich von $\pm 60^\circ$ noch zu großen „missing wedge“, der sich speziell bei Versetzungen mit einer Propagationsrichtung senkrecht zur Kippachse (**a**-Typ Durchstoßversetzungen) durch Rekonstruktionsartefakte bemerkbar macht. In der Publikation von Barnard et al. [153] wurde dieses Problem ebenfalls festgestellt. So konnten in reinem GaN nur sogenannte „in-plane“ Versetzungen mit einer Propagation parallel zur Kippachse gut rekonstruiert werden, während die zur Kippachse senkrechten Durchstoßversetzungen in der Rekonstruktion durch Artefaktbildung nur unzureichend sichtbar waren. Noch höhere Kippwinkel und eine Verkleinerung des „missing wedge“ wären durch eine Modifikation der „microprobe“ DF STEM Technik möglich. Durch Verwendung eines STEM Hellfelddetektors könnte auf den Einsatz der Objektivblende, welche die Bewegungsfreiheit des Probenhalters begrenzt, verzichtet werden, indem mittels des „diffraction-shift“ der **g**-Reflex auf den Hellfelddetektor geschoben wird. Allerdings ist bei Kippwinkeln größer bzw. kleiner $+50^\circ/-50^\circ$ bedingt durch den Aufbau des Schichtsystems mit einer weiteren Schwierigkeit zu rechnen. Projektionsbedingt nimmt bei zunehmenden Kippwinkeln die Nukleationsschicht einen immer größeren Anteil in der Aufnahme ein. Da diese sehr defektreich ist, könnte es aufgrund der von der Nukleationsschicht ausgehenden hellen Beugungskontraste bei großen Kippwinkeln problematisch werden, die Durchstoßversetzungen zu identifizieren. Die in der 50° -Projektion aus Abbildung 7.2 beobachtbaren hohen Intensitäten im Bereich der Nukleationsschicht deuten dieses Problem bereits an. Eine Reduzierung des von der Nukleationsschicht ausgehenden Beugungskontrasts würde eine direkte Einstellmöglichkeit des Anregungsfehlers bezüglich des verwendeten **g**-Reflexes erfordern, die allerdings bei einem standardmäßigen „single-tilt“ Tomo-Probenhalter nicht gegeben ist. Entsprechend wäre durch die Verwendung des von Hata et al. [152] vorgestellten „triple-axis“ Tomo-Probenhalters auch während der Aufnahme der Kippserie eine Korrektur des Anregungsfehlers möglich, um auch im „microprobe“ DF STEM Modus die Durchstoßversetzungen in hoher Qualität in einer Kippserie mit großem Kippbereich abzubilden und in einem weiteren Schritt eine Volumenrekonstruktion zu ermöglichen. Dadurch könnte ein Zugang zu umfangreichen Informationen über das Versetzungsnetzwerk und die defektreduzierenden Mechanismen an der SiN_x Zwischenschicht auf Basis von nur einer Probe gewonnen werden. So wäre es möglich, sämtliche basalen Versetzungssegmente und deren Orientierungen im Kristall zu detektieren, um bereits Hinweise auf die Art der Interaktionsprozesse bezüglich eines Gleitens oder Kletterns zu erhalten. Die Möglichkeit, bei einer reinen Querschnittsuntersuchung projektionsbedingt eine tatsächliche Dipolinteraktion von zwei Durchstoßversetzungen als Terminierung von nur einer Versetzung an der SiN_x Zwischenschicht fehlzuinterpretieren, wäre ausgeschlossen. Darüber hinaus wäre bei einer vollständigen Rekonstruktion des Versetzungsnetzwerks die Bestimmung lokaler Versetzungsdichten im Volumen ebenfalls zu realisieren.

8 Literaturverzeichnis

1. O. Ambacher, *Growth and applications of Group III-nitrides*. Journal of Physics D: Applied Physics, 1998. **31**(20): p. 2653.
2. S.C. Jain, M. Willander, J. Narayan and R.V. Overstraeten, *III--nitrides: Growth, characterization, and properties*. Journal of Applied Physics, 2000. **87**(3): p. 965-1006.
3. H. Amano, N. Sawaki, I. Akasaki and Y. Toyoda, *Metalorganic vapor phase epitaxial growth of a high quality GaN film using an AlN buffer layer*. Applied Physics Letters, 1986. **48**(5): p. 353-5.
4. S. Nakamura, *GaN Growth Using GaN Buffer Layer*. Japanese Journal of Applied Physics, 1991. **30**: p. L1705-L7.
5. H. Amano, M. Kito, K. Hiramatsu and I. Akasaki, *P-Type Conduction in Mg-Doped GaN Treated with Low-Energy Electron Beam Irradiation (LEEBI)*. Japanese Journal of Applied Physics, 1989. **28**(2): p. L2112 - L4.
6. S. Nakamura, T. Mukai, M. Senoh and N. Iwasa, *Thermal Annealing Effects on P-Type Mg-Doped GaN Films*. Japanese Journal of Applied Physics, 1992. **31**(2): p. L139.
7. H. Amano, T. Asahi and I. Akasaki, *Stimulated Emission Near Ultraviolet at Room Temperature from a GaN Film Grown on Sapphire by MOVPE Using an AlN Buffer Layer*. Japanese Journal of Applied Physics, 1990. **29**: p. L205.
8. S. Nakamura, *The Roles of Structural Imperfections in InGaN-Based Blue Light-Emitting Diodes and Laser Diodes*. Science, 1998. **281**(5379): p. 956-61.
9. S. Nakamura, S. Pearton and G. Fasol, *The blue laser diode: the complete story*. 2000, Berlin: Springer Verlag.
10. S.D. Lester, F.A. Ponce, M.G. Craford and D.A. Steigerwald, *High dislocation densities in high efficiency GaN-based light-emitting diodes*. Appl. Phys. Lett., 1995. **66**(10): p. 1249.
11. D. Cherns, S.J. Henley and F.A. Ponce, *Edge and screw dislocations as nonradiative centers in InGaN/GaN quantum well luminescence*. Applied Physics Letters, 2001. **78**(18): p. 2691-3.
12. 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*. Japanese Journal of Applied Physics, 1998. **37**: p. 398-400.
13. S.F. Chichibu, A. Uedono, T. Onuma, B.A. Haskell, A. Chakraborty, T. Koyama, P.T. Fini, S. Keller, S.P. DenBaars, J.S. Speck, U.K. Mishra, S. Nakamura, S. Yamaguchi, S. Kamiyama, H. Amano, I. Akasaki, J. Han and T. Sota, *Origin of defect-insensitive emission probability in In-containing (Al,In,Ga)N alloy semiconductors*. Nature Materials, 2006. **5**(10): p. 810-6.
14. D. Cherns and C.G. Jiao, *Electron Holography Studies of the Charge on Dislocations in GaN*. Physical Review Letters, 2001. **87**(20): p. 205504.
15. O.-H. Nam, D.M. Bremser, T.S. Zheleva and R.F. Davis, *Lateral epitaxy of low defect density GaN layers via organometallic vapor phase epitaxy*. Applied Physics Letters, 1997. **71**(18): p. 2638-40.
16. T.S. Zheleva, O.-H. Nam, D.M. Bremser and R.F. Davis, *Dislocation density reduction via lateral epitaxy in selectively grown GaN structures*. Applied Physics Letters, 1997. **71**(17): p. 2472-4.

17. B. Beaumont, P. Vennéguès and P. Gibart, *Epitaxial Lateral Overgrowth of GaN*. physica status solidi (b), 2001. **227**(1): p. 1.
18. F. Habel, P. Brückner and F. Scholz, *Marker layers for the development of a multistep GaN FACELO process*. Journal of Crystal Growth, 2004. **272**(1-4): p. 515.
19. K. Hiramatsu, K. Nishiyama, M. Onishi, H. Mizutani, M. Narukawa, A. Motogaito, H. Miyake, Y. Iyechika and T. Maeda, *Fabrication and characterization of low defect density GaN using facet-controlled epitaxial lateral overgrowth (FACELO)*. Journal of Crystal Growth, 2000. **221**(1-4): p. 316.
20. P. Ruterana, B. Beaumont, P. Gibart and Y. Melnik, *A TEM Evaluation of ELOG GaN Grown on AlN Buffer Layer by HVPE on (0001) 6H-SiC*. physica status solidi (b), 1999. **216**(1): p. 697-700.
21. S. Tanaka, M. Takeuchi and Y. Aoyagi, *Anti-Surfactant in III-Nitride Epitaxy-Quantum Dot Formation and Dislocation Termination*. Jpn. J. Appl. Phys., 2000. **39**.
22. O. Contreras, F.A. Ponce, J. Christen, A. Dadgar and A. Krost, *Dislocation annihilation by silicon delta-doping in GaN epitaxy on Si*. Applied Physics Letters, 2002. **81**(25): p. 4712-4.
23. A. Bchetnia, A. Touré, T.A. Lafford, Z. Benzarti, I. Halidou, M.M. Habchi and B. El Jani, *Effect of thickness on structural and electrical properties of GaN films grown on SiN-treated sapphire*. Journal of Crystal Growth, 2007. **308**(2): p. 283.
24. X.L. Fang, Y.Q. Wang, H. Meidia and S. Mahajan, *Reduction of threading dislocations in GaN layers using in situ deposited silicon nitride masks on AlN and GaN nucleation layers*. Applied Physics Letters, 2004. **84**(4): p. 484-6.
25. J. Hertkorn, F. Lipski, P. Brückner, T. Wunderer, S.B. Thapa, F. Scholz, A. Chuvilin, U. Kaiser, M. Beer and J. Zweck, *Process optimization for the effective reduction of threading dislocations in MOVPE grown GaN using in situ deposited SiN_x masks*. Journal of Crystal Growth, 2008. **310**(23): p. 4867.
26. M. Hijikuro, N. Kuwano, M. Takeuchi and Y. Aoyagi, *TEM analysis of annihilation process of threading dislocations in GaN thin films grown by MOVPE with anti-surfactant treatment*. physica status solidi (c), 2006. **3**(6): p. 1832-5.
27. M.J. Kappers, R. Datta, R.A. Oliver, F.D.G. Rayment, M.E. Vickers and C.J. Humphreys, *Threading dislocation reduction in (0001) GaN thin films using SiN_x interlayers*. Journal of Crystal Growth, 2007. **300**(1): p. 70.
28. K.J. Lee, E.H. Shin and K.Y. Lim, *Reduction of dislocations in GaN epilayers grown on Si(111) substrate using Si_xN_y inserting layer*. Applied Physics Letters, 2004. **85**(9): p. 1502-4.
29. K. Pakula, R. Bozek, J.M. Baranowski, J. Jasinski and Z. Liliental-Weber, *Reduction of dislocation density in heteroepitaxial GaN: role of SiH₄ treatment*. Journal of Crystal Growth, 2004. **267**(1-2): p. 1.
30. S. Nakamura, M. Senoh, S. Nagahama, N. Iwasa, T. Yamada, T. Matsushita, H. Kiyoku, Y. Sugimoto, T. Kozaki, H. Umemoto, M. Sano and K. Chocho, *InGaN/GaN/AlGaIn-based laser diodes with modulation-doped strained-layer superlattices grown on an epitaxially laterally overgrown GaN substrate*. Appl. Phys. Lett., 1998. **72**(2): p. 211.
31. A. Michiue, T. Miyoshi, T. Yanamoto, T. Kozaki, S. Nagahama, Y. Narukawa, M. Sano, T. Yamada and T. Mukai, *Recent development of nitride LEDs and LDs*. Proc. SPIE, 2009. **7216**(1): p. 72161Z.
32. <http://www.al-lighting.de>, *Homepage der Automotive Lighting Reutlingen GmbH*. 2011.
33. M.L. Nakarmi, K.H. Kim, M. Khizar, Z.Y. Fan, J.Y. Lin and H.X. Jiang, *Electrical and optical properties of Mg-doped Al_{0.7}Ga_{0.3}N alloys*. Applied Physics Letters, 2005. **86**(9): p. 092108.

34. K. Nam, M. Nakarmi, J. Li, J. Lin and H. Jiang, *Mg acceptor level in AlN probed by deep ultraviolet photoluminescence*. Appl. Phys. Lett., 2003. **83**(5): p. 878.
35. M. Kneissl, T. Kolbe, C. Chua, V. Kueller, N. Lobo, J. Stellmach, A. Knauer, H. Rodriguez, S. Einfeldt, Z. Yang, N.M. Johnson and M. Weyers, *Advances in group III-nitride-based deep UV light-emitting diode technology*. Semiconductor Science and Technology, 2011. **26**(1): p. 014036.
36. Y. Kato, S. Kitamura, K. Hiramatsu and N. Sawaki, *Selective growth of wurtzite GaN and $Al_xGa_{1-x}N$ on GaN/sapphire substrates by metalorganic vapor phase epitaxy*. Journal of Crystal Growth, 1994. **144**(3-4): p. 133.
37. S. Mochizuki, T. Detchprohm, S. Sano, T. Nakamura, H. Amano and I. Akasaki, *Reduction of threading dislocation density in $Al_xGa_{1-x}N$ grown on periodically grooved substrates*. Journal of Crystal Growth, 2002. **237-239**(Part 2): p. 1065.
38. K. Engl, M. Beer, N. Gmeinwieser, U.T. Schwarz, J. Zweck, W. Wegscheider, S. Miller, A. Miler, H.J. Lugauer, G. Brüderl, A. Lell and V. Härle, *Influence of an in situ-deposited SiN_x intermediate layer inside GaN and AlGaN layers on SiC substrates*. Journal of Crystal Growth, 2006. **289**(1): p. 6.
39. S. Krukowski, A. Witek, J. Adamczyk, J. Jun, M. Bockowski, I. Grzegory, B. Lucznik, G. Nowak, M. Wróblewski, A. Presz, S. Gierlotka, S. Stelmach, B. Palosz, S. Porowski and P. Zinn, *Thermal properties of indium nitride*. Journal of Physics and Chemistry of Solids, 1998. **59**(3): p. 289.
40. G.A. Slack, *Nonmetallic crystals with high thermal conductivity*. Journal of Physics and Chemistry of Solids, 1973. **34**(2): p. 321.
41. G.A. Slack, R.A. Tanzilli, R.O. Pohl and J.W. Vandersande, *The intrinsic thermal conductivity of AlN*. Journal of Physics and Chemistry of Solids, 1987. **48**(7): p. 641.
42. I. Vurgaftman and J.R. Meyer, *Band parameters for nitrogen-containing semiconductors*. Journal of Applied Physics, 2003. **94**(6): p. 3675-96.
43. A.F. Wright and J.S. Nelson, *Bowing parameters for zinc-blende $Al_{1-x}Ga_xN$ and $Ga_{1-x}In_xN$* . Applied Physics Letters, 1995. **66**(22): p. 3051-3.
44. V. Davydov, A. Klochikhin, V. Emtsev, D. Kurdyukov, S. Ivanov, V. Vekshin, F. Bechstedt, J. Furthmüller, J. Aderhold, J. Graul, A. Mudryi, H. Harima, A. Hashimoto, A. Yamamoto and E. Haller, *Band Gap of Hexagonal InN and InGaN Alloys*. physica status solidi (b), 2002. **234**(3): p. 787.
45. D. Xiao, K.W. Kim and J.M. Zavada, *Envelope-function analysis of wurtzite InGaN/GaN quantum well light emitting diodes*. Journal of Applied Physics, 2004. **96**(1): p. 723-8.
46. Y.P. Varshni, *Temperature dependence of the energy gap in semiconductors*. Physica, 1967. **34**(1): p. 149.
47. F. Bechstedt, J. Furthmüller and J.M. Wagner, *Electronic and vibrational properties of group-III nitrides: Ab initio studies*. physica status solidi (c), 2003. **0**(6): p. 1732.
48. Q. Guo and A. Yoshida, *Temperature Dependence of Band Gap Change in InN and AlN*. Japanese Journal of Applied Physics, 1994. **33**: p. 2453-6.
49. B. Monemar, *Fundamental energy gap of GaN from photoluminescence excitation spectra*. Physical Review B, 1974. **10**(2): p. 676.
50. Y. Nanishi, Y. Saito and T. Yamaguchi, *RF-Molecular Beam Epitaxy Growth and Properties of InN and Related Alloys*. Japanese Journal of Applied Physics, 2003. **42**: p. 2549-59.
51. J. Wu, W. Walukiewicz, K.M. Yu, I. J. W. Ager, E.E. Haller, L. Hai, J.S. William, S. Yoshiki and N. Yasushi, *Unusual properties of the fundamental band gap of InN*. Applied Physics Letters, 2002. **80**(21): p. 3967-9.
52. T. Mitate, Y. Sonoda and N. Kuwano, *Polarity Determination of Wurtzite and Zincblende Structures by TEM*. Physica Status Solidi (a), 2002. **192**(2): p. 383-8.

53. T. Zywiets, J. Neugebauer and M. Scheffler, *Adatom diffusion at GaN (0001) and (000-1) surfaces*. Applied Physics Letters, 1998. **73**(4): p. 487-9.
54. A. Kazimirov, G. Scherb, J. Zegenhagen, T.L. Lee, M.J. Bedzyk, M.K. Kelly, H. Angerer and O. Ambacher, *Polarity determination of a GaN thin film on sapphire (0001) with x-ray standing waves*. Journal of Applied Physics, 1998. **84**(3): p. 1703-5.
55. F.A. Ponce, D.P. Bour, W.T. Young, M. Saunders and J.W. Steeds, *Determination of lattice polarity for growth of GaN bulk single crystals and epitaxial layers*. Applied Physics Letters, 1996. **69**(3): p. 337-9.
56. A.R. Smith, R.M. Feenstra, D.W. Greve, J. Neugebauer and J.E. Northrup, *Reconstructions of the GaN (000-1) Surface*. Physical Review Letters, 1997. **79**: p. 3934-7.
57. F. Bernardini, V. Fiorentini and D. Vanderbilt, *Polarization-Based Calculation of the Dielectric Tensor of Polar Crystals*. Physical Review Letters, 1997. **79**(20): p. 3958.
58. A.L. Allred and E.G. Rochow, *A scale of electronegativity based on electrostatic force*. Journal of Inorganic and Nuclear Chemistry, 1958. **5**(4): p. 264.
59. S. Adachi, *Properties of Group-IV, III-V and II-VI Semiconductors*. 2005, West Sussex: John Wiley and Sons, Ltd.
60. T. Takeuchi, S. Sota, H. Sakai, H. Amano, I. Akasaki, Y. Kaneko, S. Nakagawa, Y. Yamaoka and N. Yamada, *Quantum-confined Stark effect in strained GaInN quantum wells on sapphire (0 0 0 1)*. Journal of Crystal Growth, 1998. **189-190**: p. 616.
61. A. Chakraborty, B.A. Haskell, S. Keller, J.S. Speck, S.P. DenBaars, S. Nakamura and U.K. Mishra, *Nonpolar InGaN/GaN emitters on reduced-defect lateral epitaxially overgrown a-plane GaN with drive-current-independent electroluminescence emission peak*. Applied Physics Letters, 2004. **85**(22): p. 5143-5.
62. K. Fujito, S. Kubo and I. Fujimura, *Development of Bulk GaN Crystals and Nonpolar/Semipolar Substrates by HVPE*. MRS Bulletin, 2009. **34**: p. 313-7.
63. J. Speck and S. Chichibu, *Nonpolar and Semipolar Group III Nitride-Based Materials*. MRS Bulletin, 2009. **34**: p. 304-52.
64. T. Wunderer, P. Bruckner, B. Neubert, F. Scholz, M. Feneberg, F. Lipski, M. Schirra and K. Thonke, *Bright semipolar GaInN/GaN blue light emitting diode on side facets of selectively grown GaN stripes*. Applied Physics Letters, 2006. **89**(4): p. 041121.
65. T. Wunderer, F. Lipski, J. Hertkorn, S. Schwaiger and F. Scholz, *Fabrication of 3D InGaN/GaN structures providing semipolar GaN planes for efficient green light emission*. physica status solidi (c), 2009. **6**(S2): p. S490.
66. J. Czochralski, *Ein neues Verfahren zur Messung der Kristallisationsgeschwindigkeit der Metalle*. Zeitschrift für physikalische Chemie, 1918. **92**: p. 219-21.
67. I. Grzegory, J. Jun, M. Bockowski, S.T. Krukowski, M. Wróblewski, B. Lucznik and S. Porowski, *III-V Nitrides - thermodynamics and crystal growth at high N₂ pressure*. Journal of Physics and Chemistry of Solids, 1995. **56**: p. 639.
68. I. Grzegory and S. Krukowski, *Synthesis and Crystal Growth of A^{III}B^V Semiconducting Compounds Under High Pressure of Nitrogen*. Physica Scripta, 1991. **39**: p. 242.
69. S. Porowski, *Bulk and homoepitaxial GaN-growth and characterisation*. Journal of Crystal Growth, 1998. **189-190**: p. 153.
70. R. Dwilinski, R. Doradzinski, J. Garczynski, L. Sierzputowski, R. Kucharski, M. Zajac, M. Rudzinski, R. Kudrawiec, J. Serafiniczuk and W. Strupinski, *Recent achievements in AMMONO-bulk method*. Journal of Crystal Growth, 2010. **312**(18): p. 2499-502.
71. R. Kudrawiec, M. Rudziński, R. Kucharski, M. Zając, R. Doradziński, L.P. Sierzputowski, J. Garczyński, J. Serafińczuk, W. Strupiński, J. Misiewicz and R. Dwiliński, *Optical and structural properties of m -plane GaN substrates grown by*

- ammonothermal method and GaN epilayers grown on these substrates. physica status solidi (c)*, 2010. **7**(10): p. 2359-64.
72. W.E. Lee and K.P.D. Lagerlof, *Structural and electron diffraction data for sapphire (α -Al₂O₃)*. Journal of Electron Microscopy Technique, 1985. **2**(3): p. 247.
 73. S. Nakamura, T. Mukai and M. Senoh, *High-Power GaN P-N Junction Blue-Light-Emitting Diodes*. Jpn. J. Appl. Phys, 1991. **30**.
 74. K. Masu, Y. Nakamura, T. Yamazaki, M. Takahashi and K. Tsubouchi, *Transmission Electron Microscopic Observation of AlN/ α -Al₂O₃ Heteroepitaxial Interface with Initial Nitriding AlN Layer*. Japanese Journal of Applied Physics, 1995. **34**: p. L760.
 75. K. Uehara, Y. Aota, S. Kameda, H. Nakase and K. Tsubouchi, *Low Propagation Loss of Atomically-Flat Surface AlN with Low Dislocation Density for 5-GHz Band SAW Devices*. Proc. IEEE Symposium on Ultrasonics, 2005: p. 455-8.
 76. J.P. Hirth and J. Lothe, *Theory of Dislocations*. 1982, New York: Wiley.
 77. S.M. Hu, *Misfit dislocations and critical thickness of heteroepitaxy*. Journal of Applied Physics, 1991. **69**(11): p. 7901-3.
 78. K. Hiramatsu, T. Detchprohm and I. Akasaki, *Relaxation Mechanism of Thermal Stresses in the Heterostructure of GaN Grown on Sapphire by Vapor Phase Epitaxy*. Japanese Journal of Applied Physics, 1993. **32**: p. 1528-33.
 79. T. Kehagias, P. Komninou, G. Nouet, P. Ruterana and T. Karakostas, *Misfit relaxation of the AlN/Al₂O₃ (0001) interface*. Physical Review B, 2001. **64**(19): p. 195329.
 80. Y. Koide, N. Itoh, K. Itoh, N. Sawaki and I. Akasak, *Effect of AlN Buffer Layer on AlGaIn/ α -Al₂O₃ Heteroepitaxial Growth by Metalorganic Vapor Phase Epitaxy*. Japanese Journal of Applied Physics, 1988. **27**: p. 1156-61.
 81. S.E. Bennett, *Dislocations and their reduction in GaN*. Materials Science and Technology, 2010. **26**(9): p. 1017-28.
 82. H. Amano, I. Akasaki, K. Hiramatsu, N. Koide and N. Sawaki, *Effects of the buffer layer in metalorganic vapour phase epitaxy of GaN on sapphire substrate*. Thin Solid Films, 1988. **163**: p. 415.
 83. F.C. Frank and J.H. van der Merwe, *One-Dimensional Dislocations. II. Misfitting Monolayers and Oriented Overgrowth*. Proc. Roy. Soc., 1949. **198**: p. 216-25.
 84. X.J. Ning, F.R. Chien, P. Pirouz, J.W. Yang and M. Asif Khan, *Growth defects in GaN films on sapphire: The probable origin of threading dislocations*. Journal of Materials Research, 1995. **11**: p. 580-92.
 85. 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*. Journal of Crystal Growth, 1998. **189-190**: p. 231.
 86. V. Narayanan, K. Lorenz, K. Wook and S. Mahajan, *Origins of threading dislocations in GaN epitaxial layers grown on sapphire by metalorganic chemical vapor deposition*. Applied Physics Letters, 2001. **78**(11): p. 1544-6.
 87. K. Forghani, M. Gharavipour, M. Klein, F. Scholz, O. Klein, U. Kaiser, M. Feneberg, B. Neuschl and K. Thonke, *In-situ deposited SiN_x nanomask for crystal quality improvement in AlGaIn*. physica status solidi (c), 2011. **8**(7-8): p. 2063-5.
 88. K. Forghani, M. Klein, F. Lipski, S. Schwaiger, J. Hertkorn, R.A.R. Leute, F. Scholz, M. Feneberg, B. Neuschl, K. Thonke, O. Klein, U. Kaiser, R. Gutt and T. Passow, *High quality AlGaIn epilayers grown on sapphire using SiN_x interlayers*. Journal of Crystal Growth, 2011. **315**: p. 216-9.
 89. J. Hertkorn, P. Bruckner, S.B. Thapa, T. Wunderer, F. Scholz, M. Feneberg, K. Thonke, R. Sauer, M. Beer and J. Zweck, *Optimization of nucleation and buffer layer growth for improved GaN quality*. Journal of Crystal Growth, 2007. **308**(1): p. 30.
 90. C.F. Shih, N.C. Chen, S.Y. Lin and K.S. Liu, *AlGaIn films grown on (0001) sapphire by a two-step method*. Applied Physics Letters, 2005. **86**(21): p. 211103.

91. S.B. Thapa, J. Hertkorn, F. Scholz, G.M. Prinz, M. Feneberg, M. Schirra, K. Thonke, R. Sauer, J. Biskupek and U. Kaiser, *MOVPE Growth of High Quality AlN Layers and Effects of Si doping*. Physica Status Solidi (c), 2008. **5**(6): p. 1774-6.
92. S.B. Thapa, J. Hertkorn, F. Scholz, G.M. Prinz, R.A.R. Leute, M. Feneberg, K. Thonke, R. Sauer, O. Klein, J. Biskupek and U. Kaiser, *Growth and studies of Si-doped AlN layers*. Journal of Crystal Growth, 2008. **310**: p. 4939-41.
93. S.B. Thapa, C. Kirchner, F. Scholz, G.M. Prinz, K. Thonke, R. Sauer, A. Chuvilin, J. Biskupek, U. Kaiser and D. Hofstetter, *Structural and spectroscopic properties of AlN layers grown by MOVPE*. Journal of Crystal Growth, 2007. **298**: p. 383.
94. R. Gutt, L. Kirste, T. Passow, M. Kunzer, K. Köhler and J. Wagner, *Reduction of the threading edge dislocation density in AlGaIn epilayers by GaN nucleation for efficient 350 nm light emitting diodes*. physica status solidi (b), 2010. **247**(7): p. 1710.
95. R. Gutt, T. Passow, W. Pletschen, M. Kunzer, L. Kirste, K. Forghani, F. Scholz, O. Klein, U. Kaiser, K. Kohler and J. Wagner, *Efficient 350 nm LEDs on low edge threading dislocation density AlGaIn buffer layers*. Proc. SPIE, 2011. **7954**: p. 79540Q.
96. O. Klein, J. Biskupek, K. Forghani, F. Scholz and U. Kaiser, *TEM investigations on growth interrupted samples for the correlation of the dislocation propagation and growth mode variations in AlGaIn deposited on SiN_x interlayers*. Journal of Crystal Growth, 2011. **324**: p. 63-72.
97. W. Shockley and W.T. Read, *Statistics of the Recombinations of Holes and Electrons*. Physical Review, 1952. **87**(5): p. 835.
98. J. Neugebauer and C.G. Van de Walle, *Gallium vacancies and the yellow luminescence in GaN*. Applied Physics Letters, 1996. **69**(4): p. 503-5.
99. F.A. Ponce, D.P. Bour, W. Gotz and P.J. Wright, *Spatial distribution of the luminescence in GaN thin films*. Applied Physics Letters, 1996. **68**(1): p. 57-9.
100. M.A. Reshchikov and H. Morkoc, *Luminescence properties of defects in GaN*. Journal of Applied Physics, 2005. **97**(6): p. 061301.
101. B. Kuhn and F. Scholz, *An Oxygen Doped Nucleation Layer for the Growth of High Optical Quality GaN on Sapphire*. physica status solidi (a), 2001. **188**(2): p. 629.
102. T. Riemann, J. Christen, A. Kaschner, A. Laades, A. Hoffmann, C. Thomsen, M. Iwaya, S. Kamiyama, H. Amano and I. Akasaki, *Direct observation of Ga-rich microdomains in crack-free AlGaIn grown on patterned GaN/sapphire substrates*. Applied Physics Letters, 2002. **80**(17): p. 3093-5.
103. M. Iwaya, S. Terao, T. Sano, T. Ukai, R. Nakamura, S. Kamiyama, H. Amano and I. Akasaki, *Suppression of phase separation of AlGaIn during lateral growth and fabrication of high-efficiency UV-LED on optimized AlGaIn*. Journal of Crystal Growth, 2002. **237-239**(Part 2): p. 951.
104. H.P.D. Schenk, P. Vennéguès, O. Tottereau, T. Riemann and J. Christen, *Three-dimensionally nucleated growth of gallium nitride by low-pressure metalorganic vapour phase epitaxy*. Journal of Crystal Growth, 2003. **258**(3-4): p. 232.
105. Y. Ujiie and T. Nishinaga, *Epitaxial Lateral Overgrowth of GaAs on a Si Substrate*. Japanese Journal of Applied Physics, 1989. **28**(3): p. L337-L9.
106. P. Gibart, *Metal organic vapour phase epitaxy of GaN and lateral overgrowth*. Reports on Progress in Physics, 2004. **67**(5): p. 667.
107. K. Hiruma, T. Haga and M. Miyazaki, *Surface migration and reaction mechanism during selective growth of GaAs and AlAs by metalorganic chemical vapor deposition*. Journal of Crystal Growth, 1990. **102**(4): p. 717.
108. P. Vennéguès, B. Beaumont, S. Haffouz, M. Vaille and P. Gibart, *Influence of in situ sapphire surface preparation and carrier gas on the growth mode of GaN in MOVPE*. Journal of Crystal Growth, 1998. **187**(2): p. 167.

109. S. Haffouz, H. Lahreche, P. Vennegues, P.d. Mierry, B. Beaumont, F. Omnes and P. Gibart, *The effect of the Si/N treatment of a nitridated sapphire surface on the growth mode of GaN in low-pressure metalorganic vapor phase epitaxy*. Applied Physics Letters, 1998. **73**(9): p. 1278-80.
110. H. Lahreche, P. Venneguès, B. Beaumont and P. Gibart, *Growth of high-quality GaN by low-pressure metal-organic vapour phase epitaxy (LP-MOVPE) from 3D islands and lateral overgrowth*. Journal of Crystal Growth, 1999. **205**(3): p. 245.
111. J. Hertkorn, *Verbesserung der lateralen Stromdurchführung in hocheffizienten Halbleiterlichtquellen*. Dissertation 2009, Universität Ulm.
112. J. Elsner, R. Jones, P.K. Sitch, V.D. Porezag, M. Elstner, T. Frauenheim, M.I. Heggie, S. Öberg and P.R. Briddon, *Theory of Threading Edge and Screw Dislocations in GaN*. Physical Review Letters, 1997. **79**(19): p. 3672.
113. O. Klein, J. Biskupek, U. Kaiser, K. Forghani, S.B. Thapa and F. Scholz, *Simulation supported analysis of the effect of SiN_x interlayers in AlGaN on the dislocation density reduction*. Journal of Physics: Conference Series, 2010. **209**(1): p. 012018.
114. V. Volterra, *Sur l'équilibre des corps élastiques multiplement connexes*. Annales scientifiques de l'É.N.S., Sér. 3, 1907. **24**: p. 401-517.
115. D.N. Zakharov, Z. Liliental-Weber, B. Wagner, Z.J. Reitmeier, E.A. Preble and R.F. Davis, *Structural TEM study of nonpolar a -plane gallium nitride grown on (11 -20) 4H -SiC by organometallic vapor phase epitaxy*. Physical Review B, 2005. **71**(23): p. 235334.
116. D.B. Williams and C.B. Carter, *Transmission Electron Microscopy*. 1996, New York: Plenum Press.
117. L. Reimer, *Transmission Electron Microscopy*. 1997, Berlin: Springer Verlag.
118. B. Fultz and J.M. Howe, *Transmission Electron Microscopy and Diffractometry of Materials*. 2008, Berlin: Springer Verlag.
119. S. Kikuchi and S. Nishikawa, *The Diffraction of Cathode Rays by Calcite*. Proc. Imp. Acad. Japan, 1928. **4**: p. 475-7.
120. P.B. Hirsch, A. Howie, R. Nicholson, D.W. Pashley and M.J. Whelan, *Electron Microscopy of Thin Crystals*. 1965, London: Butterworths.
121. D.J.H. Cockayne, I.L.F. Ray and M.J. Whelan, *Investigations of dislocation strain fields using weak beams*. Philosophical Magazine, 1969. **20**(168): p. 1265 - 70.
122. M.J. Hytch, P. Vermaut, J. Malarria and R. Portier, *Study of atomic displacement fields in shape memory alloys by high-resolution electron microscopy*. Materials Science and Engineering A, 1999. **273-275**: p. 266.
123. M.A. O'Keefe, *"Resolution" in high-resolution electron microscopy*. Ultramicroscopy, 1992. **47**(1-3): p. 282.
124. O. Scherzer, *Über einige Fehler von Elektronenlinsen*. Zeitschrift für Physik A Hadrons and Nuclei, 1936. **101**(9): p. 593.
125. M. Lentzen, B. Jahnen, C.L. Jia, A. Thust, K. Tillmann and K. Urban, *High-resolution imaging with an aberration-corrected transmission electron microscope*. Ultramicroscopy, 2002. **92**(3-4): p. 233.
126. M. Lentzen, *Contrast Transfer and Resolution Limits for Sub-Angstrom High-Resolution Transmission Electron Microscopy*. Microscopy and Microanalysis, 2008. **14**(01): p. 16-26.
127. R.R. Meyer, A.I. Kirkland and W.O. Saxton, *A new method for the determination of the wave aberration function for high resolution TEM: 1. Measurement of the symmetric aberrations*. Ultramicroscopy, 2002. **92**(2): p. 89-109.
128. H. Rose, *Correction of aberrations, a promising means for improving the spatial and energy resolution of energy-filtering electron microscopes*. Ultramicroscopy, 1994. **56**(1-3): p. 11.

129. M.J. Hÿtch, E. Snoeck and R. Kilaas, *Quantitative measurement of displacement and strain fields from HREM micrographs*. Ultramicroscopy, 1998. **74**(3): p. 131.
130. G. Radnoczi and A. Barna, *Transmission electron microscopy characterization of hard coatings and films: sample preparation aspects and results*. Surf. Coat. Technol., 1996. **80**: p. 89.
131. D.J.H. Cockayne, I.L.F. Ray and M.J. Whelan, *Investigations of dislocation strain fields using weak beams*. Philosophical Magazine, 1969. **20**(168): p. 1265-70.
132. A. Chuvilin and U. Kaiser, *On the peculiarities of CBED pattern formation revealed by multislice simulation*. Ultramicroscopy, 2005. **104**(1): p. 73.
133. J.M. Cowley and A.F. Moodie, *The scattering of electrons by atoms and crystals. I. A new theoretical approach*. Acta Crystallographica, 1957. **10**(10): p. 609-19.
134. E.J. Kirkland, *Advanced Computing in Electron Microscopy*. 1998, New York: Plenum Press.
135. P.A. Doyle and P.S. Turner, *Relativistic Hartree-Fock X-ray and electron scattering factors*. Acta Crystallographica Section A, 1968. **24**(3): p. 390-7.
136. F. Kroupa, *Annihilation of a dislocation dipole*. Czech. J. Phys. B, 1967. **17**: p. 220-6.
137. Hypercube, *HyperChemTM Release 7 for Windows*. 2002.
138. Hypercube, *HyperChemTM Release 7 for Windows; Getting Started*. Publication HC70-00-01-00, 2002.
139. A.T. Blumenau, C.J. Fall, J. Elsner, R. Jones, M.I. Heggie and T. Frauenheim, *A theoretical investigation of dislocations in cubic and hexagonal gallium nitride*. Physica Status Solidi (c), 2003. **0**(6): p. 1684-709.
140. A.F. Wright and G. Ulrike, *The effect of doping and growth stoichiometry on the core structure of a threading edge dislocation in GaN*. Applied Physics Letters, 1998. **73**(19): p. 2751-3.
141. Y. Xin, S.J. Pennycook, N.D. Browning, P.D. Nellist, S. Sivananthan, F. Omnes, B. Beaumont, J.P. Faurie and P. Gibart, *Direct observation of the core structures of threading dislocations in GaN*. Applied Physics Letters, 1998. **72**(21): p. 2680-2.
142. E. Van Cappellen and J.C. Doukhan, *Quantitative transmission X-ray microanalysis of ionic compounds*. Ultramicroscopy, 1994. **53**(4): p. 343.
143. B. Neuschl, K.J. Fujan, M. Feneberg, I. Tischer, K. Thonke, K. Forghani, M. Klein and F. Scholz, *CL and PL study on AlGa_N layers grown with SiN_x interlayers*. Applied Physics Letters, 2010. **97**(19): p. 192108.
144. C. Hyung Koun, L. Jeong Yong, K. Ki Soo, Y. Gye Mo, S. Jae Ho and Y. Phil Won, *Effect of buffer layers and stacking faults on the reduction of threading dislocation density in GaN overlayers grown by metalorganic chemical vapor deposition*. Journal of Applied Physics, 2001. **89**(5): p. 2617-21.
145. M. Hao, S. Mahanty, T. Sugahara, Y. Morishima, H. Takenaka, J. Wang, S. Tottori, K. Nishino, Y. Naoi and S. Sakai, *Configuration of dislocations in lateral overgrowth GaN films*. Journal of Applied Physics, 1999. **85**(9): p. 6497-501.
146. C. Stampfl and C.G. Van de Walle, *Energetics and electronic structure of stacking faults in AlN, GaN, and InN*. Physical Review B, 1998. **57**(24): p. R15052-R5.
147. J. Frank, *Electron Tomography: Methods for Three-Dimensional Visualization of Structures in the Cell*. 2nd ed. 2006, Berlin: Springer Verlag.
148. J. Banhart, *Advanced Tomographic Methods in Materials Research and Engineering*. 2008, Oxford: University Press.
149. C. Kübel, A. Voigt, R. Schoenmakers, M. Otten, D. Su, T.-C. Lee, A. Carlsson and J. Bradley, *Recent Advances in Electron Tomography: TEM and HAADF-STEM Tomography for Materials Science and Semiconductor Applications*. Microscopy and Microanalysis, 2005. **11**: p. 378-400.

150. J.S. Barnard, J. Sharp, J.R. Tong and P.A. Midgley, *Three-dimensional analysis of dislocation networks in GaN using weak-beam dark-field electron tomography*. Philosophical Magazine, 2006. **86**: p. 4901-22.
151. J. Biskupek, J. Leschner, P. Walther and U. Kaiser, *Optimization of STEM tomography acquisition - A comparison of convergent beam and parallel beam STEM tomography*. Ultramicroscopy, 2010. **110**(9): p. 1231-7.
152. S. Hata, H. Miyazaki, S. Miyazaki, M. Mitsuhashi, M. Tanaka, K. Kaneko, K. Higashida, K. Ikeda, H. Nakashima, S. Matsumura, J.S. Barnard, J.H. Sharp and P.A. Midgley, *High-angle triple-axis specimen holder for three-dimensional diffraction contrast imaging in transmission electron microscopy*. Ultramicroscopy, 2011. **111**(8): p. 1168-75.
153. J.S. Barnard, J. Sharp, J.R. Tong and P.A. Midgley, *Weak-beam dark-field electron tomography of dislocations in GaN*. Journal of Physics: Conference Series, 2006. **26**: p. 247-50.

Eigene wissenschaftliche Publikationen sowie Posterbeiträge und Vorträge

O. Klein, J. Biskupek, U. Kaiser, K. Forghani, S.B. Thapa and F. Scholz, *Simulation supported analysis of the effect of SiN_x interlayers in AlGaN on the dislocation density reduction*. J. Phys.: Conf. Ser. **209** (2010) 012018

O. Klein, J. Biskupek, K. Forghani, F. Scholz and U. Kaiser, *TEM investigations on growth interrupted samples for the correlation of the dislocation propagation and growth mode variations in AlGaN deposited on SiN_x interlayers*. J. Cryst. Growth **324** (2011) 63-72

S.B. Thapa, J. Hertkorn, F. Scholz, G.M. Prinz, R.A.R. Leute, M. Feneberg, K. Thonke, R. Sauer, O. Klein, J. Biskupek and U. Kaiser, *Growth and studies of Si-doped AlN layers*. J. Cryst. Growth **310** (2008) 4939-4941

K. Forghani, M. Klein, F. Lipski, S. Schwaiger, J. Hertkorn, R.A.R. Leute, F. Scholz, M. Feneberg, B. Neuschl, K. Thonke, O. Klein, U. Kaiser, R. Gutt and T. Passow, *High quality AlGaN epilayers grown on sapphire using SiN_x interlayers*. J. Cryst. Growth **315** (2011) 216-219

K. Forghani, M. Gharavipour, M. Klein, F. Scholz, O. Klein, U. Kaiser, M. Feneberg, B. Neuschl and K. Thonke, *In-situ deposited SiN_x nanomask for crystal quality improvement in AlGaN*. Physica Status Solidi (c) **8** (2011) 2063-2065

R. Gutt, T. Passow, W. Pletschen, M. Kunzer, L. Kirste, K. Forghani, F. Scholz, O. Klein, U. Kaiser, K. Kohler and J. Wagner, *Efficient 350 nm LEDs on low edge threading dislocation density AlGaN buffer layers*. Proc. SPIE **7954** (2011) 79540Q

O. Klein, A. Chuvilin, J. Biskupek and U. Kaiser, *The stability of high tension measured by convergent beam electron diffraction as base for high accuracy of lattice parameter determination*. Microscopy and Microanalysis **13** (2007) 132-133
(Poster und referiertes Abstract)

O. Klein, J. Biskupek, U. Kaiser, S.B. Thapa and F. Scholz, *Quantitative dislocation analysis of 2H AlN:Si grown on {0001} sapphire*. EMC 2008, Vol. 2: Materials Science, DOI: 10.1007/978-3-540-85226-1_328, Springer Berlin 2008
(Poster und referiertes Abstract)

O. Klein, J. Biskupek, U. Kaiser, K. Forghani and F. Scholz, *Simulation supported analysis of the effect of SiN_x interlayers in AlGaN on the dislocation density reduction*. MC2009, Vol. 3: Materials Science, DOI: 10.3217/978-3-85125-062-6-599, Verlag der TU Graz 2009
(Poster und referiertes Abstract)

O. Klein, J. Biskupek, U. Kaiser, K. Forghani and F. Scholz, *Annihilation process of a-type threading dislocations at SiN_x interlayers in 2H AlGaN*. 2009
(von Dr. Jean-Luc Rouviere eingeladenen Vortrag am CEA Minatec in Grenoble/Frankreich)

Ehrenwörtliche Erklärung

Die vorliegende Arbeit wurde in der Zeit von Juni 2007 bis Dezember 2011 in der Zentralen Einrichtung Elektronenmikroskopie der Universität Ulm angefertigt.

Ich erkläre hiermit ehrenwörtlich, dass ich die vorliegende Arbeit selbständig, ohne unzulässige Hilfe Dritter und ohne Benutzung anderer als den angegebenen Hilfsmitteln und der verzeichneten Literatur angefertigt habe. Die aus anderen Quellen direkt oder indirekt übernommenen Daten und Konzepte sind unter Angabe der Quellen gekennzeichnet. Bei der Auswahl und Auswertung folgenden Materials haben die nachstehend aufgeführten Personen in der jeweils beschriebenen Weise unentgeltlich geholfen:

Dr. J. Biskupek wies mich in die richtige Bedienung der Transmissionselektronenmikroskope Philips CM-20 und FEI TITAN 80-300 ein und unterstützte darüber hinaus die Durchführung von Experimenten am TITAN 80-300.

Die im Rahmen dieser Arbeit untersuchten AlN Heterostrukturen wurden am Institut für Optoelektronik der Universität Ulm von Dr. S.B. Thapa mittels MOVPE hergestellt und mir zur Untersuchung zur Verfügung gestellt.

Die in dieser Arbeit untersuchten AlGaIn Heterostrukturen wurden am Institut für Optoelektronik der Universität Ulm von K. Forghani gewachsen und mir zur Untersuchung bereitgestellt. Des Weiteren stellte er mir die rasterelektronenmikroskopischen Abbildungen 6.1a und b für diese Arbeit zur Verfügung.

Ein großer Teil der TEM-Probenpräparation wurde von S. Grözingen durchgeführt.

Dr. Jean-Luc Rouviere vom Minatec Forschungszentrum Grenoble/Frankreich stellte das dort vorhandene TITAN 80-300 mit STEM-Korrektor für Experimente zur Verfügung und ermöglichte dadurch die in Abbildung 5.10 dargestellten STEM Aufnahmen.

Weitere Personen waren an der inhaltlich-materiellen Erstellung der vorliegenden Arbeit nicht beteiligt. Insbesondere habe ich nicht die entgeltliche Hilfe von Vermittlungs- bzw. Beratungsdiensten (Promotionsberater und andere Personen) in Anspruch genommen. Niemand hat von mir unmittelbar oder mittelbar geldwerte Leistungen für Arbeiten erhalten, die im Zusammenhang mit dem Inhalt der vorgelegten Dissertation stehen. Die Arbeit wurde bisher weder im In- noch im Ausland in gleicher oder ähnlicher Form einer anderen Prüfungsbehörde vorgelegt.

Die geltende Promotionsordnung der Naturwissenschaftlichen Fakultät der Universität Ulm ist mir bekannt.

Ich versichere ehrenwörtlich, dass ich nach bestem Wissen und Gewissen die reine Wahrheit gesagt und nichts verschwiegen habe.

Ulm, den

Oliver Klein

Danksagung

Abschließend möchte ich mich an dieser Stelle bei allen bedanken, die mit ihrer Hilfe und Unterstützung zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben.

An erster Stelle danke ich **Frau Prof. Dr. Ute Kaiser**, die mich während meiner Arbeit als Doktorand in der Zentralen Einrichtung Elektronenmikroskopie betreute. Aufgrund ihres Einsatzes war es möglich, dass meine Beschäftigung und somit diese Arbeit im Rahmen eines Drittmittelprojekts überhaupt ermöglicht wurden.

Ich bedanke mich bei **Herrn Prof. Dr. Ferdinand Scholz**, der als Leiter des Instituts für Optoelektronik der Universität Ulm durch die interessanten Fragestellungen im Rahmen des „Deep UV-LED“ Projekts und die vielen fachlichen Diskussionen im Bereich der Gruppe III-Nitride einen sehr großen Anteil am Gelingen dieser Arbeit hatte.

Mein ganz besonderer Dank gilt **Herrn Dr. Johannes Biskupek**, der mich während meiner Promotionstätigkeit stets fachlich unterstützt hat. Die vielen wissenschaftlichen Diskussionen mit ihm führten immer wieder zu Ideen für neue Experimente und Untersuchungen. Auch wären ohne seine Begleitung bei externen Laborexperimenten viele Messungen nicht möglich gewesen. Darüber hinaus erlernte ich durch ihn die nötigen TEM-Techniken und bin heute in der Lage, ein Transmissionselektronenmikroskop selbstständig bedienen zu können.

Im besonderen Maße bedanke ich mich bei **Herrn M.Sc. Kamran Forghani** der als wissenschaftlicher Mitarbeiter der Optoelektronik eine exzellente und intensive Zusammenarbeit mit dem Institut ermöglichte. Nicht nur durch die Bereitstellung der in dieser Arbeit untersuchten AlGaIn Proben, sondern auch durch die unzähligen fachlichen Diskussionen konnten Ideen erarbeitet werden, die an vielen Stellen dieser Arbeit umgesetzt wurden.

Herrn Dr. Sarad Bahadur Thapa danke ich für die gute Zusammenarbeit zu Beginn meiner Arbeit, für die fachlichen Diskussionen im Bereich der AlN-Epitaxie und für die Bereitstellung der AlN Proben.

Für die teils schwierige Präparation der vielen TEM-Proben in der kürzest möglichen Zeit bedanke ich mich bei **Frau Sabine Grözinger**. Nur durch die Herstellung dünner TEM-Lamellen werden transmissionselektronenmikroskopische Untersuchungen an Schichtsystemen überhaupt erst möglich. Auch gilt ihr mein Dank für die moralische Unterstützung und die aufbauenden Gespräche während meiner Arbeit.

Ich bedanke mich bei **Herrn Dr. Jens Leschner** für die fachlichen Gespräche und die Unterstützung bei Problemen im Bereich der Elektronentomographie.

Mein Dank gilt **Herrn Richard Gutt** vom Fraunhofer-Institut für Angewandte Festkörperphysik Freiburg für die aufklärenden Gespräche über die Epitaxie von AlGaIn UV-LED Heterostrukturen.

Für die Möglichkeit, auch Experimente an einem TITAN 80-300 Mikroskop mit STEM-Korrektor durchführen zu können, bedanke ich mich bei **Herrn Dr. Jean-Luc Rouviere** vom Minattec Forschungsinstitut in Grenoble/Frankreich.

Für die anregenden und hilfreichen Gespräche über wachstumsinduzierte Versetzungsmechanismen bedanke ich mich bei **Herrn Dr. Igor Khodos**.

Herrn Prof. Dr. Harald Rose danke ich für die Unterstützung bei Problemen und Fragen zum Thema hochauflösende Transmissionselektronenmikroskopie.

Mein Dank gilt **allen Mitarbeitern der Zentralen Einrichtung Elektronenmikroskopie**, die im Büro für eine stets gute Atmosphäre gesorgt haben.

Zuletzt aber nicht weniger gedankt sei meiner **Familie** und meinen **Freunden** für die moralische Unterstützung während der gesamten Zeit dieser Arbeit. Nur durch ihr entgegengebrachtes Verständnis für meine Arbeit war sie in dieser Weise möglich.

Lebenslauf

Persönliche Daten

09.10.1979

geboren in Günzburg, Bayern

Schulischer Werdegang

1986 – 1990

Besuch der Grundschule in Offingen

1990 – 1999

Besuch des Albertus Gymnasiums in Lauingen
Allgemeine Hochschulreife: Juli 1999

Zivildienst

09/1999 – 07/2000

Therapiezentrum in Burgau

Akademischer Werdegang

10/2000 – 04/2007

Studium der Wirtschaftsphysik (Diplom) an der
Universität Ulm
Abschluss: Diplom-Wirtschaftsphysiker

Diplomarbeit: „Bestimmung der Hochspannung
von Transmissionselektronenmikroskopen mittels
konvergenter Elektronenbeugung“

06/2007 – 12/2011

Anfertigung der vorliegenden Dissertation in der
Zentralen Einrichtung Elektronenmikroskopie der
Universität Ulm

Thema: „Transmissionselektronenmikroskopische
Analysen zur Defektreduktion mittels SiN_x
Zwischenschichten in AlGa_N Heterostrukturen“

seit 01/2012

Wissenschaftlicher Mitarbeiter am Lehrstuhl
Experimentalphysik IV der Universität Augsburg

Oliver Klein