

Einleitung und Motivation

Der mit der Bandlücke von Aluminiumgalliumnitrid abgedeckte Wellenlängenbereich zwischen 200 nm und 360 nm wurde durch die erfolgreiche p-Dotierung von Galliumnitrid (GaN) durch Nakamura, Amano und Akasaki [1] [2] [3] Anfang der 1990er Jahre prinzipiell für Leuchtdioden (LED) und Laser zugänglich, was 2014 anhand des durchschlagenden Erfolgs der blauen Leuchtdiode mit dem Nobelpreis für Physik gewürdigt wurde [4]. Seitdem ist eine ganze Reihe von optoelektronischen Bauelementen wie LEDs und Laser im ultravioletten (UV) Wellenlängenbereich zur Marktreife gelangt, um in den Feldern der Medizin, Materialanalyse und -bearbeitung wie etwa Lackhärtung, aber auch Datenübertragung Anwendungen zu bedienen [5] [6] [7] [8]. Ein prominentes Anwendungsfeld ist dabei die Desinfektion von Luft, Wasser und Oberflächen. Zum Einen handelt es sich bei diesem Einsatzgebiet von Festkörper-Optoelektronik um eine universelle weltweite Nachfrage; außerdem können die Märkte zusätzlich mit Hightech-Systemen beispielsweise in Krankenhäusern auf der einen Seite bis zum Massenmarkt für Wasserleitungen und Belüftungssysteme auf der anderen Seite sukzessive durch Systeme mit immer höheren Effizienzen und niedrigeren Kosten durchdrungen werden (s. Demonstrator in Abb. 0.1). Allerdings sind die erreichten optischen Ausgangsleistungen im Wellenlängerenbereich um die Kompositionsmitte von AlGaN (z.B. UV-B: 280 nm bis 315 nm) limitiert durch die Materialqualität der Bauelemente. Durchstoßversetzungen in den aktiven Bereichen der Bauelemente wirken als nichtstrahlende Rekombinationszentren für Ladungsträger und verringern damit nicht nur die interne Quanteneffizienz, sondern senken durch inhomogene Erwärmung auch die Lebensdauer der Lichtemitter [9] [10]. Hohe Versetzungsdichten in Bauelementen sind überwiegend auf den Mangel geeigneter Substrate zurückzuführen, die bei optoelektronischen Bauelementen im UV-Bereich eine kritische Rolle spielen. Entweder verfügen diese über unpassende Gitterkonstanten für die konkreten Bauelemente,

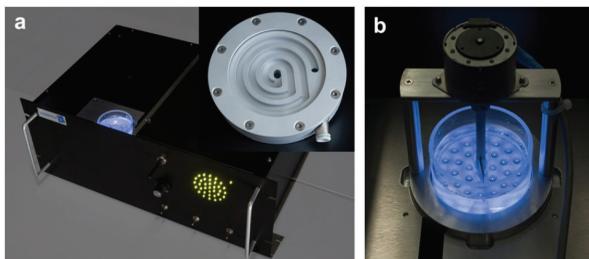


Abbildung 0.1.: Demonstratoren für Wasserdesinfektionsmodule aus dem Ferdinand-Braun-Institut: Durchflusszelle (a) und Rührreinheit (b) [11]. Mit freundlicher Genehmigung von Elsevier © 2011.

wie im Falle von Saphir oder Siliziumkarbid oder weisen eine hohe Versetzungsdichte auf, wie die verfügbaren Substrate für Homoepitaxie, Galliumnitrid und Aluminiumnitrid (AlN). Im UV-A-Bereich beispielsweise kann beim Wachstum von Bauelementen auf GaN-Substrate mit sehr geringen Versetzungsdichten zurückgegriffen werden, die ammonothermal gezüchtet wurden [12] oder mittels Hydridgasphasenepitaxie (HVPE) abgeschieden wurden [13]. Durch Verwendung dieser Substrate konnten bereits Laserdioden mit hohen Ausgangsleistungen bei Wellenlängen ab 338 nm realisiert werden [14]. Für Bauelemente im UV-C-Bereich sind Aluminiumnitrid-Substrate verfügbar, die mit der physikalischen Gasphasenabscheidung - der Sublimation und Rekrystallisation - hergestellt wurden [15] [16]. Auch auf diesen konnten bereits LEDs und Laser demonstriert werden [15] [17] [18]. Für $Al_xGa_{1-x}N$ -Bauelemente bei mittlerer Komposition $x = 0,5$ ist jedoch die Gitterfehlanpassung sowohl zu GaN als auch AlN mit 1,2% bereits so hoch, dass die kritische Schichtdicke bezüglich der Bildung von Kristalldefekten bereits weit unterhalb von einem μm Schichtdicke erreicht ist [19] [20] und Substrate binärer Komposition daher für Anwendungen im Wellenlängenbereich um die 300 nm nur mäßig geeignet sind.

Die Epitaxiemethode HVPE ist nicht nur seit einigen Jahren in kommerziell erfolgreichem Einsatz zur Substratherstellung binärer GaN-Wafer (Nanowin, Furukawa, Mitsubishi, Hitachi [21]), sie wurde auch bereits zur Herstellung freistehender AlN-Schichten genutzt [17] [22]. Aus diesem Grund erscheint HVPE vielversprechend, auch im ternären Mischsystem AlGaIn Schichten abzuschneiden, die als Substrate für optoelektronische Bauelemente dienen können, was auch vereinzelt von Unternehmen verfolgt wird (Kyma [23]). Diese Arbeit unternimmt daher den Versuch, aufbauend auf bisherige Erkenntnisse die Schichtqualität von mit HVPE hergestellten AlGaIn-Schichten weiter zu verbessern. Dazu wird zunächst in Kapitel 1 ein Überblick über die für diese Arbeit wichtigsten Eigenschaften des AlGaIn-Systems, wie etwa die Ursachen für Verspannung in HVPE-AlGaIn gegeben und die Analytikmethoden dieser Arbeit vorgestellt, bevor in Kapitel 2 die bereits vor Beginn der Arbeit gewonnenen Erkenntnisse vorgestellt werden, auf die diese Arbeit aufbaut, wie zum Beispiel die Substratstrukturierung zum Spannungsabbau, deren Weiterentwicklung Thema der zwei Kapitel 3 und 6 ist. Weiter wird in Kapitel 4 die Wirksamkeit eines Kompositionsgradienten von AlN zur Zielkomposition untersucht, um die vorhandene tensile Verspannung durch das Einbringen von kompressiver Spannung zu kompensieren. In Kapitel 5 werden die Eigenschaften der AlN-Pufferschicht sowie ihre Auswirkungen auf darauf abgeschiedene AlGaIn-Schichten analysiert und optimiert, bevor im letzten Kapitel 7 dieser Arbeit eine der Ursachen tensiler Spannung - der Einbau von Silizium in AlGaIn - identifiziert und durch den Austausch von Reaktormaterialien eliminiert wird. Die Ergebnisse werden zum Schluss noch einmal zusammengefasst und bewertet.



Kapitel 1.

Grundlagen

In diesem Kapitel werden die wichtigen Materialeigenschaften des $Al_xGa_{(1-x)}N$ -Systems sowie des in dieser Arbeit verwendeten Substratmaterials Saphir kurz erläutert. Weiter wird der in dieser Arbeit verwendete Epitaxiereaktor in zwei verschiedenen in dieser Arbeit verwendeten Geometrien vorgestellt. Dabei wird auf die Wachstumschemie in der Hydridgasphasenepitaxie (HVPE) eingegangen. Im zweiten Teil dieses Kapitels werden die in dieser Arbeit verwendeten Charakterisierungsmethoden soweit vorgestellt, wie es für das Verständnis der in dieser Arbeit diskutierten Ergebnisse notwendig ist.

1.1. Kristallstruktur von III-Nitriden

Kristallstruktur von AlGaN Innerhalb der III-V Halbleiter zeichnen sich die III-Nitride durch ihre vorwiegend in der Wurtzit-Struktur kristallisierende Geometrie aus¹. Von Indiumnitrid (InN) über Galliumnitrid (GaN) bis Aluminiumnitrid (AlN) sowie deren ternäre und quaternäre Mischhalbleiter umschließt das Kristallsystem a -Gitterkonstanten in der hexagonalen Grundflächenebene der Einheitszelle und Bandlücken von 3,545 Å und 0,7 eV [24] [25] (InN) über 3,189 Å und 3,4 eV [26] [27] (GaN) bis 3,112 Å und 6,1 eV [28] [29] (AlN). Dies macht das Materialsystem für eine Reihe von leistungselektronischen und optoelektronischen Anwendungen vor Allem im sichtbaren und ultravioletten Spektralbereich sehr interessant. In dieser Arbeit wird ausschließlich der ternäre Mischbereich $Al_xGa_{(1-x)}N$ behandelt, dessen Mischverhältnis von Al- zu Ga-Atomen x_{Al} im Laufe dieser Arbeit als Komposition bezeichnet wird. Es wird in dieser Arbeit davon ausgegangen, dass die Parameter von AlGaN linear interpoliert zwischen denen von GaN und AlN liegen und sich entsprechend der Vegardschen Regel berechnen lassen, wie zum Beispiel die Gitterkonstante²:

$$a_{AlGaN}(x) = x \cdot a_{AlN} + (1 - x) \cdot a_{GaN} \quad (1.1)$$

¹ GaN kann durch Wahl des Substrats und der Wachstumsbedingungen auch kubisch abgeschieden werden, was im Rahmen dieser Arbeit allerdings keine Rolle spielt [30] [31].

²Mit der linearen Interpolation macht man einen gewissen Fehler. Beispielsweise liegt etwa die Bandlücke von AlGaN z.T. deutlich unterhalb dieser linearen Extrapolation, beschrieben durch den Bowing-Parameter [32], der quadratisch mit der Komposition x ausfällt. Diese Abweichung kann i.A. mit der zufälligen Anordnung von Al- und Ga-Atomen im ternären Halbleiterkomposit erklärt werden.

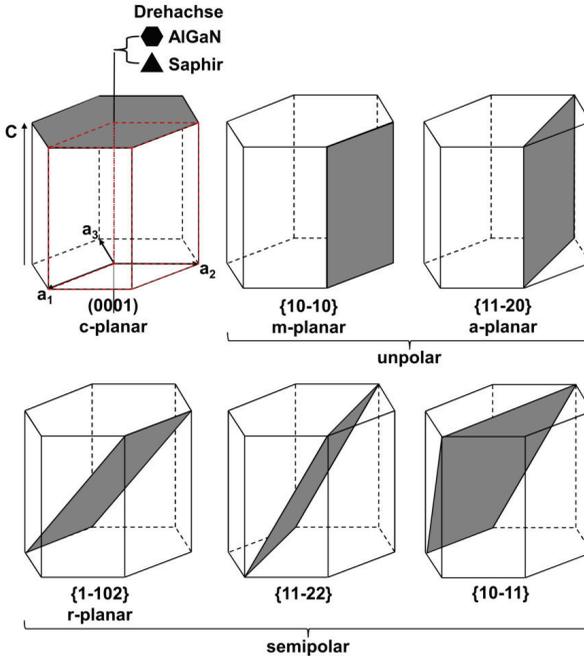


Abbildung 1.1.: Gittervektoren \vec{a}_1 , \vec{a}_2 , \vec{a}_3 und \vec{c} sowie die dadurch aufgespannte Einheitszelle (rot) der Wurzelstruktur und exemplarisch jeweils eine der polaren (0001)-Ebenen, der non-polaren $\{10\bar{1}0\}$ - und $\{11\bar{2}0\}$ -Ebenen auf. In dieser Arbeit wird die für hexagonale Gitter übliche Bravais-Indizierung mit vier Indizes nach der Konvention von Kleber et al. verwendet, nach der zu den Basisvektoren \vec{a}_1 und \vec{a}_2 ein linear abhängiger Parameter $\vec{a}_3 = -(\vec{a}_1 + \vec{a}_2)$ eingeführt wird, wobei \vec{a}_1 , \vec{a}_2 und \vec{a}_3 jeweils einen Winkel von 120° zueinander einnehmen und in der verbleibenden Dimension um den Parameter \vec{c} vervollständigt werden [36]. Dies bietet gegenüber der für kubische Kristallsysteme wie z.B. Galliumarsenid gebräuchlichen Dreiernotation nach Miller [37] den Vorteil, dass durch zyklisches Permutieren der drei Flächen-Indizes h, k, i bzw. \hat{u} , \hat{v} , \hat{t} kristallografisch äquivalente Flächen bzw. Richtungen direkt ersichtlich sind. In der Literatur sind einige niedrigindizierte Flächen wie die in Abb. 1.1 dargestellten unpolaren Flächen $\{11\bar{2}0\}$ und $\{10\bar{1}0\}$ mit a-planar bzw. m-planar bezeichnet und werden auch in dieser Arbeit so genannt. Am Beispiel der Darstellungen in Abb. 1.1 lassen sich

Zusammen mit den c-Gitterkonstanten (InN: 5,693 Å [34], GaN: 5,186 Å [35], AlN: 4,979 Å [34]) spannen die genannten a-Gitterparameter die Einheitszelle mit hexagonaler Grundfläche auf. In dieser Arbeit wird die für hexagonale Gitter übliche Bravais-Indizierung mit vier Indizes nach der Konvention von Kleber et al. verwendet, nach der zu den Basisvektoren \vec{a}_1 und \vec{a}_2 ein linear abhängiger Parameter $\vec{a}_3 = -(\vec{a}_1 + \vec{a}_2)$ eingeführt wird, wobei \vec{a}_1 , \vec{a}_2 und \vec{a}_3 jeweils einen Winkel von 120° zueinander einnehmen und in der verbleibenden Dimension um den Parameter \vec{c} vervollständigt werden [36]. Dies bietet gegenüber der für kubische Kristallsysteme wie z.B. Galliumarsenid gebräuchlichen Dreiernotation nach Miller [37] den Vorteil, dass durch zyklisches Permutieren der drei Flächen-Indizes h, k, i bzw. \hat{u} , \hat{v} , \hat{t} kristallografisch äquivalente Flächen bzw. Richtungen direkt ersichtlich sind. In der Literatur sind einige niedrigindizierte Flächen wie die in Abb. 1.1 dargestellten unpolaren Flächen $\{11\bar{2}0\}$ und $\{10\bar{1}0\}$ mit a-planar bzw. m-planar bezeichnet und werden auch in dieser Arbeit so genannt. Am Beispiel der Darstellungen in Abb. 1.1 lassen sich

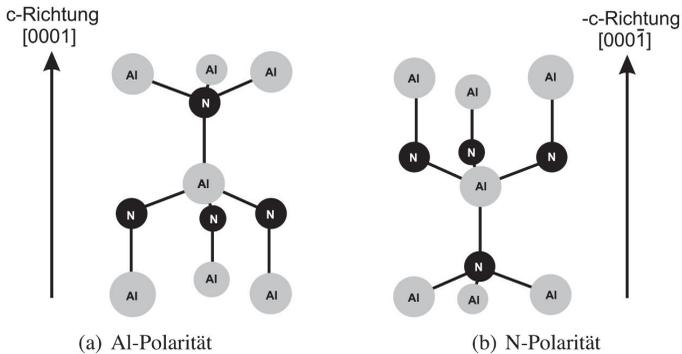


Abbildung 1.2.: Schematische Darstellung der Atomanordnung von III-Nitriden in Wurtzitstruktur am Beispiel von AlN. Die III-Nitridschicht heisst metallpolar, wenn innerhalb einer Ebene die Metallatome oberhalb sind (links) und stickstoffpolar, wenn das Stickstoffatom oberhalb der Metallatome liegt (rechts) [38]. Mit freundlicher Genehmigung von Cuvellier © 2014.

für jede der gezeigten grauen Flächen eine Rotation um 120° um die \bar{c} -Achse durch eine zyklische Permutation bzw. um 60° um die \bar{c} -Achse durch eine geeignete Vertauschung der ersten drei Indizes erreichen. Dies vereinfacht die Beschreibung von Problemen mit gitterbedingt hoher Symmetrie wie etwa die kristallografische Beziehung zwischen Halbleiterkristallen und Substratkristallen beim heteroepitaktischen Wachstum, wie in dieser Arbeit III-Nitride auf Saphir. Flächen, Richtungen und jeweils äquivalente Flächen und Richtungen werden daher in dieser Arbeit notiert, wie in Tab. 1.1 zusammengefasst.

Tabelle 1.1.: Kristallografische Richtungen und Flächen und deren Notation nach Bravais (Viererindizierung).

Bedeutung	Notation
Fläche	(hkl)
äquivalente Flächen	$\{hkl\}$
Richtung	$[\hat{u}\hat{v}\hat{w}]$
äquivalente Richtungen	$\langle\hat{u}\hat{v}\hat{w}\rangle$

Eine besondere Eigenschaft der III-Nitride innerhalb der doppelt tetraedisch koordinierten³ Wurtzitstruktur ist die im Vergleich mit einer perfekten tetraedischen Bindung längere Gruppe-III-Stickstoff-Bindung in \bar{c} -Richtung, die senkrecht zur hexagonalen Basalebene steht. Durch die Stapelfolge sind $[0001]$ (c) und $[000\bar{1}]$ (-c) kristallografisch

³Kristalle der Wurtzitstruktur können auch invers beschrieben werden, d. h., die Aluminium/Gallium-Atome bilden die hexagonal dichteste Kugelpackung mit den Stickstoff-Atomen in der Hälfte der Tetraederlücken,- Gruppe-III und Stickstoff bilden sogenannte kommutative Teilgitter. Beide Atomsorten haben jeweils eine Koordinationszahl von 4, als Koordinationspolyeder ergibt sich in beiden Fällen ein Tetraeder.

und physikalisch nicht äquivalent. Positive +c-Richtung wird anhand der Gruppe-III-Stickstoffbindung so definiert, dass das Stickstoffatom oben ist, was metallpolar bezeichnet wird. Umgekehrt wird die Schicht stickstoffpolar genannt, wenn das Gruppe-III-Atom oben angeordnet ist, wie in Abb.1.2 schematisch für AlN dargestellt. Korngrenzen zwischen metall- und stickstoffpolaren Gebieten führen nicht nur zu Kristalldefekten, sondern AlGa_N-Schichten unterschiedlicher Polarität weisen auch unterschiedliche Wachstumsraten und Inkorporationsraten von Fremdatomen auf, sodass AlGa_N-Schichten gemischter Polarität aus einer Vielzahl von Gründen zu vermeiden sind, wenn sie für elektronische Bauelemente verwendet werden sollen⁴.

III-Nitrid-Epitaxie auf Saphir Saphir hat sich gegen eine Reihe weiterer prinzipiell ebenfalls geeigneter Substratmaterialien für heteroepitaktisches Wachstum von III-Nitriden für optoelektronische Bauelemente wie zum Beispiel dem besser gitterangepassten ($a_{SiC} = 3,073 \text{ \AA}$, $\Delta a/a_{GaN} = 3,6\%$ [39], s. Gl. 1.2) und thermisch angepassten ($\alpha_{SiC} = \alpha_{AlN} = 4,2 \times 10^{-6} \text{ K}^{-1}$ [40]) und ebenfalls kommerziell verfügbaren Siliziumkarbid weitgehend durchgesetzt, da es neben einer ebenfalls sehr guten kommerziellen Verfügbarkeit außerdem eine im gesamten durch III-Nitride abgedeckten optischen Spektrum hohe Transparenz aufweist [41]⁵. Die sehr hohe Gitterfehlpassung (s. Gl. 1.2) zu AlN ($a_{Saphir} = 4,759 \text{ \AA}$ [42]) von 34,6% relativiert sich zwar etwas durch eine üblicherweise auftretende Verdrehung des III-Nitrid-Kristallgitters auf Saphir um 30° ⁶, bleibt jedoch mit 13,3% für AlN deutlich oberhalb der in der Halbleiterepitaxie üblichen Fehlanpassungen für heteroepitaktisches Wachstum (s. Gl. 1.2 rechter Teil). Die theoretisch ermittelten kritischen Schichtdicken für Rissbildung bei einer derart hohen Gitterfehlpassungen liegt in III-Nitrid-Halbleitern bei wenigen nm [43] [44] [45].

$$f = \frac{a_{Substrat} - a_{Epi}}{a_{Substrat}} \quad f_{Saphir,Al} = \frac{a_{Saphir}/\sqrt{3} - a_{AlN}}{a_{Saphir}/\sqrt{3}} = 13,3\% \quad (1.2)$$

Wachstum von III-Nitriden auf Saphir ist erst dadurch erfolgreich geworden, dass die hohe Gitterfehlpassung durch eine Mehr-Schritt-Epitaxie moderiert wurde und die III-Nitridschicht auf einer rauen Nukleationsschicht abgeschieden wird [46] [27]. Diese Nukleationsschicht wird bei niedrigerer Temperatur abgeschieden als die folgende III-Nitrid-Schicht. Als Nukleationsschicht wurde in der metallorganischen Gasphasenepitaxie (MOVPE) zunächst GaN und später Aluminiumnitrid verwendet [46] [47]. Auch in der HVPE von AlGa_N konnte die Kristallqualität von AlGa_N-Schichten durch eine AlN-Pufferschicht erhöht werden, jedoch fällt diese mit 200 nm und mehr deutlich dicker aus als die Nukleationsschichten in der MOVPE, die Dicken von 15 bis 50 nm aufweisen [48] [46]. Die Nukleationsschichten benetzen die Saphiroberfläche und bilden Nukleationszentren für das folgende III-Nitrid-Wachstum [49]. Die III-Nitridschicht muss also in einem

⁴Eine Ausnahme dazu bildet die Herstellung von Kristallen für nichtlineare optische Effekte, bei denen periodisch wechselnde Polarität beispielsweise zur Frequenzverdopplung eingesetzt werden kann.

⁵Thermischer Ausdehnungskoeffizient von Saphir $\alpha_{Al_2O_3} = 7,5 \times 10^{-6} \text{ K}^{-1}$ [40].

⁶Es wurden auch Arbeiten zu AlGa_N im Kompositionsbereich von 0, 18 $\leq x \leq$ 0, 25 auf Saphirsubstraten veröffentlicht, bei denen die Verdrehung nicht auftrat [50].

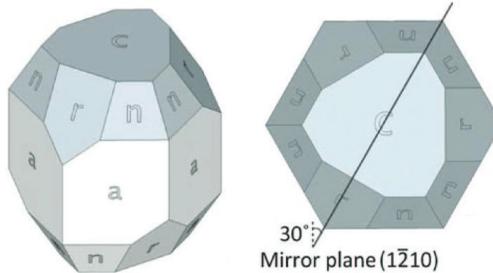


Abbildung 1.3.: Saphirfacetten, die sich bei nasschemischer Ätzung ausbilden und im Folgenden als stabile Saphirfacetten bezeichnet werden in isometrischer Ansicht links und in Draufsicht rechts mit illustrierter Spiegelebene ($1\bar{2}10$) [51]. Mit freundlicher Genehmigung von Electrochemical Society © 2013.

dreidimensionalen Modus anwachsen, in dem die Inseln quasi-versetzungsfrei wachsen und später zu einer Schicht koaleszieren. Die Funktion der Nukleationsschicht erfüllt im Falle der HVPE-Abscheidung von AlGaN eine AlN-Pufferschicht, deren positiver Einfluss auf die Kristallqualität darauf abgeschiedener AlGaN-Schichten detailliert in Kap. 2.2 erklärt und in Kap. 5 weiter untersucht wird.

c-planares Wachstum von III-Nitrid auf c-planarem Saphir ist jedoch nicht die einzige Beziehung, in der III-Nitride auf Saphir epitaktisch anwachsen. Gerade auf den nicht-polaren Facetten gibt es eine Vielzahl möglicher Geometrien, für die III-Nitrid-Wachstum auf Saphir berichtet wurde. Die in dieser Arbeit relevanten und bereits veröffentlichten Beziehungen sind in Tab. 1.2 aufgelistet. Eine schematische Darstellung der Saphirfacetten, die sich bei einer nasschemischen Ätzung herausbilden und im Folgenden als stabile Saphirfacetten bezeichnet werden, ist in Abb. 1.3 in isometrischer Ansicht und in Draufsicht dargestellt [51] [52]. In dieser Arbeit werden ausschliesslich c-planare Saphirsubstrate verwendet, allerdings wird die Oberfläche durch trockenchemische Ätzungen strukturiert. Dabei können sich eine Reihe weiterer Facetten ausbilden, beispielsweise an den Seitenwänden einer Vertiefung oder an den Ecken und Kanten dieser Oberflächenstrukturierung. Die in dieser Arbeit verwendeten Saphirsubstrate weisen allesamt einen absichtlichen Fehlschnitt von $0,25^\circ$ in $[1\bar{1}00]_{\text{Saphir}}$ -Richtung (m) auf. Dies ist maßgeblich darauf zurückzuführen, dass in weiten Teilen der Arbeit epitaktisch laterales Überwachsen (ELOG) von strukturierten Saphirsubstraten (PSS) verwendet wird und dieser Fehlschnitt sich als deutlich vorteilhaft gegenüber Substraten mit Fehlschnitt in $[1120]_{\text{Saphir}}$ -Richtung (a) oder perfekt c-orientierten Substraten oder solchen mit einem niedrigeren oder höheren Fehlschnitt erwiesen haben [53], da deutlich weniger Kompositionsinhomogenitäten sowie Wachstum von fehlorientierten Domänen auftreten, die sich gegenüber c-planarem Wachstum von AlGaN auf Saphir c-Facetten durchsetzen. Die Verwendung von strukturierten Substraten wird noch einmal ausführlicher in Kap. 2.3 motiviert.

Bei der Heteroepitaxie von AlGaN auf Saphir sind einige Quellen für Kristallfehler vorhanden, die in dieser Arbeit diskutiert werden. Zunächst folgt aus der Gitterfehlpassung

Tabelle 1.2.: Bereits veröffentlichte Orientierungen, in denen III-Nitride auf verschiedenen Saphirfacetten epitaktisch anwachsen.

Saphirfacette	Wachstumsbeziehung III-Nitrid
$(0001)_{\text{Saphir}}$	$[1\bar{1}\bar{2}0]_{\text{Saphir}} \parallel [1\bar{1}00]_{\text{III-N}}, [1\bar{1}00]_{\text{Saphir}} \parallel [\bar{1}\bar{1}20]_{\text{III-N}}$ [54]
$(10\bar{1}0)_{\text{Saphir}}$	$[0001]_{\text{Saphir}} \parallel [\bar{1}\bar{1}23]_{\text{III-N}}, [1\bar{2}10]_{\text{Saphir}} \parallel [1\bar{1}00]_{\text{III-N}}$ [55] [56] $[0001]_{\text{Saphir}} \parallel [1\bar{2}10]_{\text{III-N}}, [1\bar{2}10]_{\text{Saphir}} \parallel [30\bar{3}2]_{\text{III-N}}$ [55] [57] $[0001]_{\text{Saphir}} \parallel [10\bar{1}0]_{\text{III-N}}, [0001]_{\text{Saphir}} \perp [0001]_{\text{III-N}}$ [57] [58]
$(1\bar{1}\bar{2}0)_{\text{Saphir}}$	$[0001]_{\text{Saphir}} \parallel [\bar{1}100]_{\text{III-N}}, [1\bar{1}00]_{\text{Saphir}} \parallel [\bar{1}\bar{1}20]_{\text{III-N}}$ [54] [59] [60] [61] oder $[0001]_{\text{Saphir}} \parallel [11\bar{2}0]_{\text{III-N}}, [1\bar{1}00]_{\text{Saphir}} \parallel [1\bar{1}00]_{\text{III-N}}$ [59] [60] [61]
$(1\bar{1}02)_{\text{Saphir}}$	$[\bar{1}101]_{\text{Saphir}} \parallel [0001]_{\text{III-N}}, [11\bar{2}0]_{\text{Saphir}} \parallel [10\bar{1}0]_{\text{III-N}}$ [62] [63]
$(11\bar{2}3)_{\text{Saphir}}$	$[1\bar{1}00]_{\text{Saphir}} \parallel [0001]_{\text{III-N}}, [11\bar{2}0]_{\text{Saphir}} \parallel [10\bar{1}0]_{\text{III-N}}$ [62] [63]

zwischen Saphirsubstrat und III-Nitridschicht die Bildung von Gitterfehlpassungsver-
setzungen (misfit dislocations) [64] [65], die jedoch bei c-planaren III-Nitriden nicht in
Wachstumsrichtung propagieren und daher in dieser Arbeit nicht weiter von Interesse sind.
Weiter führt die Fehlanpassung zu einer Verspannung, die beim Wachstum dicker Schichten
unter Bildung von Durchstoßversetzungen - einer Form von Liniendefekten - relaxiert.
Dieser Prozess ist zwar durch die Verwendung einer Pufferschicht moderiert, da durch die
starke Aufrauung der AlN-Pufferschicht die Relaxation zum Teil bereits vor der Koaleszenz
geschieht; dennoch ist der Relaxationsprozess eine der Ursachen von Versetzungen,
die durch die gesamte AlGaIn-Schicht propagieren. Weiter ergeben sich aus der Koaleszenz
Versetzungen, wenn die Domänen nicht exakt identisch orientiert sind. Nach dem
Modell von Metzger et al. [66] und Heinke et al. [67] wird die Versetzungsbildung durch die
Verdrehung und Verkipfung der Domänen erklärt: Bei Koaleszenz der Kristallite, die jeweils
gegeneinander verkippt sind, entstehen an den Grenzflächen Durchstoßversetzungen
mit einem Schraubenanteil des Burgersvektors, während Koaleszenz von gegeneinander
verdrehen Kristalliten zu Entstehung von Versetzungen mit mit einem Stufenanteil des
Burgersvektors führt. Abb. 1.4 zeigt dieses Mosaikmodell anhand der Inselbildung von III-
Nitriden auf Nukleations- bzw- Pufferschichten und Kleinwinkelkorngrenzenbildung mit
Versetzungsbildung je nach Orientierung der Inseln sowie die Geometrie der genannten
Versetzungstypen. Der Burgers-Vektor für eine Schraubenversetzung ist im AlGaIn gerade
die Gitterkonstante $\vec{b}_{\text{screw}} = \vec{c}$ (Abb. 1.4 links), der Burgers-Vektor einer Stufenversetzung
 $\vec{b}_{\text{edge}} = \frac{1}{3} < 11\bar{2}0 >$ (Abb. 1.4 rechts). Liegen sowohl Verkipfung und Verdrehung der
benachbarten Kristallite vor, können sogenannte gemischte Versetzungen entstehen, um
diese Abweichungen der Kristallorientierung zu kompensieren, wie im folgenden Beispiel
beider Versetzungstypen zu je einem Anteil $\vec{b}_{\text{screw}} + \vec{b}_{\text{edge}} = \vec{b}_{\text{mixed}} = \frac{1}{3} < 11\bar{2}3 >$.

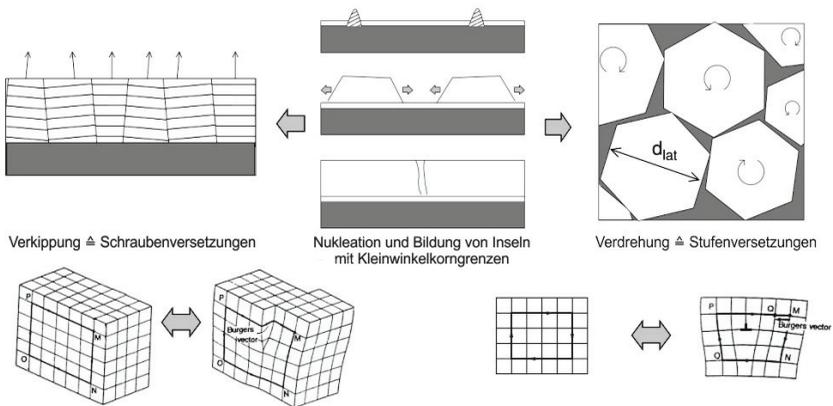


Abbildung 1.4.: Schematische Illustration des Mosaikmodells für Kristalle mit Kleinwinkelkorngrenzen: Nukleation von III-Nitridschichten auf Nukleations-/Pufferschichten und Bildung von Inseln. Bei der Koaleszenz dieser Inseln bilden sich Kleinwinkelkorngrenzen bestehend aus Schraubenversetzungen, um Verkipfung der Inseln zu kompensieren und Stufenversetzungen, um die Verdrehung der Inseln zu kompensieren. Für beide Versetzungstypen wird der charakteristische Burgers-Vektor anhand der Abweichung von einem ungestörten Gitter illustriert [68]. Mit freundlicher Genehmigung des Mensch und Buch Verlages © 2002.

Da Durchstoßversetzungen insbesondere in aktiven Bereichen von Bauelementen starke Auswirkungen auf die interne Quanteneffizienz haben - weil sie als nichtstrahlende Rekombinationszentren in LEDs oder Kurzschluss-Strompfade in vertikalen Bauelementen wie Transistoren oder Photodetektoren wirken - sind sie eine Kenngröße für die kristalline Qualität von Pseudosubstraten und Bauelementstrukturen. Daher wird Ihre Dichte als Qualitätsmerkmal genutzt. Auch diese Arbeit konzentriert sich aus diesem Grund darauf, die Bildung von Versetzungen in dicken AlGaN-Schichten zu reduzieren.

Eine weitere Form von Kristallfehlern sind Punktdefekte, dazu gehören intrinsische Defekte wie Gruppe-III- und Gruppe-V-Vakanzen und Substitutionsatoms (antisites) so wie extrinsische Defekte wie Dotieratome bzw. schlicht unerwünschte atomare Verunreinigungen. Zu beiden letztgenannten Gruppen gehört im Falle von III-Nitriden auch Silizium, dessen konkreter Ursprung in den hier untersuchten AlGaN-Schichten im nächsten Abschnitt besprochen wird und dessen Einfluss sowie Vermeidung Thema des Kapitels 7 ist.

Einen Einstieg in Kristalldefekte in III-Nitriden gibt die Arbeit von Kwong et al. [69], für Ab-initio-Berechnungen von Punktdefekten sind als Quelle die Arbeiten von Chris van de Walle et al. genannt [70].

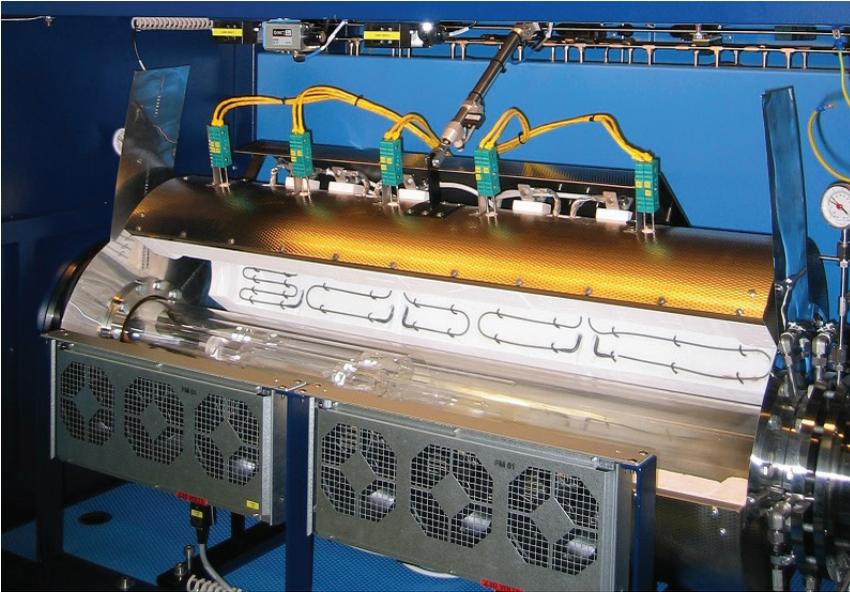


Abbildung 1.5.: Quarzglas-Reaktorrohr im Heizofen mit 5 Heizzonen. Gut zu sehen sind die Wicklungen der resistiven MoS_2 -Heizelemente innerhalb der Dämm-Verschaltung und jeweils zwei Fühler der Thermoelemente pro Heizzone. Das Substrat liegt etwa auf Höhe der Heizzone 4 von links gezählt.

1.2. HVPE: Reaktor und Chemie

Die Hydridgasphasenepitaxie (HVPE) zeichnet sich gegenüber der metallorganischen Gasphasenepitaxie (MOVPE) insbesondere durch das Erreichen sehr viel höherer Wachstumsraten aus, weshalb sie das Mittel der Wahl für die epitaktische Substratherstellung ist, wenn andere Volumenkristallzüchtungsmethoden wie etwa Ziehen aus der Schmelze oder Zonenschmelzverfahren technisch nicht erfolgreich umzusetzen sind, wie bei den III-Nitriden der Fall. Dies liegt maßgeblich an einer Verschiebung der wachstumsraten-limitierenden Regime. Bei niedrigeren Temperaturen limitieren in Epitaxieverfahren kinetische Effekte - typischerweise einer der Folgenden: Präkursor-Adhäsion, Oberflächendiffusion, Präkursor-Zerlegung und Einbau in das Kristallgitter. Bei höheren Temperaturen ist die Wachstumsrate durch Diffusionseffekte limitiert; dieser Temperaturbereich wird auch Massentransportregime genannt. Bei der MOVPE von AlGaIn limitieren Vorreaktionen in der Gasphase, in der eine hohe Dichte an Nanopartikeln auftreten - und welche "boundary layer"⁷ genannt wird - die Diffusion der Präkursoren aus der Gasphase an die

⁷Creighton et al. konnten mittels diffuser Laserstreuung in-situ bei der MOVPE-Abscheidung von III-Nitriden die Existenz einer Schicht von Naopartikeln nachweisen, die aus parasitären Vorreaktionen zwischen den Präkursoren NH_3 und Metallorganika entstehen [71].