

Diplomarbeit in Physik
angefertigt am

Helmholtz - Institut für Strahlen- und Kernphysik

Der Indium-Defektkomplex in AlN

vorgelegt der
Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät
der
Rheinischen Friedrich-Wilhelms-Universität Bonn

von Bettina Steitz

am 11.2.2008

Anfertigung mit der Genehmigung
der Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät
der Rheinischen Friedrich-Wilhelms-Universität Bonn

Referent: Priv. Doz. Dr. Reiner Vianden
Korreferent: Prof. Dr. Karl Maier

Ich versichere hiermit, dass ich diese Arbeit selbstständig verfasst
und keine anderen als die angegebenen Quellen und Hilfsmittel be-
nutzt sowie die Zitate kenntlich gemacht habe.

Bonn, den 11. Februar 2008

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	7
2	Grundlagen	11
2.1	Gruppe-III-Nitride	11
2.1.1	Aluminiumnitrid	11
2.1.2	Herstellung	13
2.1.3	Dotierung von III-V-Halbleitern	13
2.2	Die Messmethode: $\gamma\gamma$ -Winkelkorrelation	13
2.2.1	Ungestörte Winkelkorrelation	13
2.2.2	Gestörte Winkelkorrelation	16
2.3	$^{111}\text{Indium}$ als Sonde	19
2.4	Die Messapparatur	21
2.5	Analyse der Messdaten	23
2.6	Orientierung der Probe	25
2.7	RBS - Rutherford Backscattering Spectroscopy	26
3	Probenpräparationen	27
3.1	Implantation	27
3.2	Thermisches Ausheilen von Implantationsschäden	30
3.3	PAC-Ofen	30
3.4	Dotierung von AlN mit Magnesium	31
3.5	Dotierung von AlN mit stabilem Indium	31
3.6	Injektion von Stickstoffleerstellen	31
4	Messungen	33
4.1	Messungen an AlN	33
4.1.1	AlN mit einer Dicke von $3,5\ \mu\text{m}$	33
4.1.2	AlN mit einer Dicke von $0,5\ \mu\text{m}$	35
4.2	Messungen an AlN mit ^{24}Mg	39
4.2.1	Dosisabhängige Messungen bei Raumtemperatur	39
4.2.2	Dosisabhängige Messungen bei $473\ \text{K}$	42
4.2.3	Diskussion	46

4.3	Messungen an AlN mit ^{115}In	47
4.3.1	Messungen bei Raumtemperatur	48
4.3.2	RBS-Messung	51
4.3.3	Diskussion	52
4.4	Injektion von Stickstoffleerstellen	53
4.4.1	Messungen bei Raumtemperatur	54
4.4.2	Messungen bei 473 K	57
4.4.3	Diskussion	61
5	Zusammenfassung	63
A	Ausheilen von AlN verschiedener Mg-Dosen	65
A.1	AlN mit $5 \times 10^{13} \frac{\text{Atome}}{\text{cm}^2}$ Mg	65
A.2	AlN mit $10^{12} \frac{\text{Atome}}{\text{cm}^2}$ Mg	67
B	Temperaturabhängige Messungen an AlN mit Mg	69
C	Messungen bei 1073 K an AlN verschiedener In-Dosen	71
	Danksagung	76
	Danksagung, die Zweite	76

Kapitel 1

Einleitung

Seit einigen Jahrzehnten erlebt die Produktion und Anwendung der Gruppe-III-Nitride ein exponentielles Wachstum. Doch trotz des technologischen Durchbruchs in ihrer wirtschaftlichen Nutzung im optoelektronischen Bereich ist der Mechanismus des in ihnen stattfindenden Lumineszenzprozesses noch nicht vollständig verstanden. Insbesondere die Tatsache, dass dieser Mechanismus relativ unempfindlich ist gegenüber der hohen Defektdichte (größtenteils Versetzungen), wie sie z.B. in $\text{Ga}_x\text{In}_{1-x}\text{N}$ LEDs auftritt. Bei anderen Halbleitermaterialien würde diese Anzahl an Defekten zum kompletten Versagen der Diode führen.

Das große wirtschaftliche Interesse liegt in der großen Bandlücke begründet, durch die sich die Gruppe-III-Nitride auszeichnen. Sie reicht von 1,9 eV für InN über 3,4 eV für GaN bis zu 6,2 eV für AlN. Über die ternären Verbindungen $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$, $\text{In}_{1-x}\text{Al}_x\text{N}$ und $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ ist die Bandlücke zwischen 1,9 eV und 6,2 eV durchstimmbare, was in Abbildung 1.1 dargestellt ist. Es sei noch erwähnt, dass die Bandlücke von InN in [WAL06] zu 0,7 eV bestimmt worden ist.

Neben ihrer großen Bandlücke zeichnen sich die Gruppe-III-Nitride durch ihre große Härte sowie hohe chemische und thermische Stabilität aus. Dadurch eignen sie sich als Halbleiterbauteile oder Sensoren, die im Hochtemperaturbereich oder in aggressiven chemischen Umgebungen eingesetzt werden können.

Zur Strukturierung und Dotierung von Halbleiterbauteilen findet die Methode der Implantation Anwendung. Konzentration und Tiefe der eingebrachten Isotope sind dabei besser zu kontrollieren als z.B. bei der Eindiffusion. Als Nachteil der Methode ergeben sich jedoch Kristallschäden durch den Einschuss der Atome. Bei hohen Dosen kann dies zur völligen Amorphisierung des Kristallgitters führen. Ansonsten ist es möglich, die entstandenen Schäden durch eine Temperaturbehandlung auszuheilen. Das sogenannte Ausheilverhalten wie auch das Verhalten der Gruppe-III-Nitride in Abhängigkeit der Temperatur ist in [RUS01], [LOR02], [SCH07] und [PEN07] mit Hilfe der PAC-Methode (PAC - Perturbed Angular Correlation) unter anderem an GaN und AlN untersucht. Darin konnte das Auftreten einer Defektfrequenz festgestellt werden, die bei hohen Tempe-

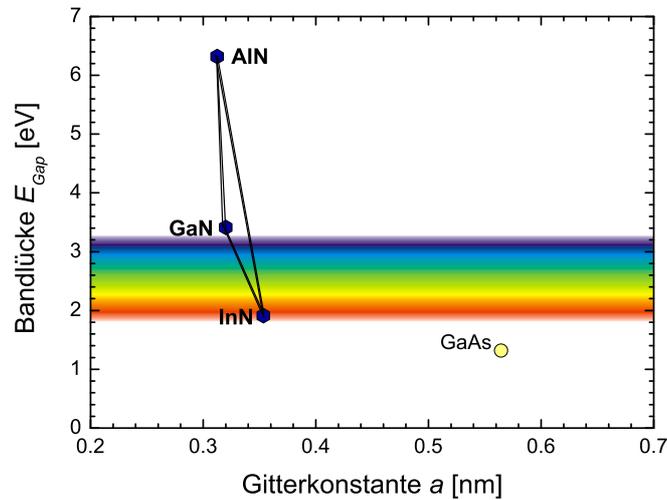


Abbildung 1.1: Bandlücken von InN, GaN und AlN in Abhängigkeit der Gitterkonstante a . Die ternären Verbindungen und die Durchstimmbarkeit der Bandlücke sind durch die Seiten des eingezeichneten Dreiecks dargestellt. Durch den Farbverlauf wird der sichtbare Energiebereich des Lichts verdeutlicht.

raturen verschwand und anschließend bei Raumtemperatur wieder auftauchte. Schließlich konnte sie einem Defekt auf dem zur Sonde nächstgelegenen Gitterplatz zugeordnet werden.

Bei der PAC-Methode handelt es sich um eine kernphysikalische Untersuchungsmethode, die auf der elektrischen Quadrupolwechselwirkung einer in den Kristall eingebrachten PAC-Sonde mit ihrer näheren Umgebung basiert. Aufgrund der Struktur der Gruppe-III-Nitride ergibt sich ein intrinsischer elektrischer Feldgradient. Er wird durch lokale Störungen im Kristallgitter verändert. Dies wird durch die Wechselwirkung mit der Sonde gemessen.

Wie erwähnt ist der Mechanismus des Lumineszenzprozesses noch nicht vollständig geklärt. So ist die große Lichtausbeute trotz der hohen Versetzungsdichte (etwa in der Größenordnung $10^{10} \frac{1}{\text{cm}^2}$) noch rätselhaft. Bei Bauelementen aus anderen Halbleitermaterialien würde eine derart hohe Defektdichte zu einer strahlungslosen Rekombination der Ladungsträger führen. Es wurden verschiedene Vorstellungen entwickelt, um das ungewöhnliche Verhalten der Gruppe-III-Nitride zu erklären. So entstand in den 90er Jahren die Überlegung, dass nach einer Indium-Implantation die Ladungsträger an Indium-reichen Clustern

rekombinieren und so von den vorhandenen Versetzungen ferngehalten werden. Jedoch wurde in neueren Untersuchungen eine statistische Verteilung der In-Atome über ein implantiertes Gebiet und kein Indiz für Indium-reiche Cluster gefunden [GAL07].

Ein anderer möglicher Mechanismus ist z.B. ein Defekt, der sich an die Dotieratome anlagert.

Es wurde festgestellt, dass ein Indium-Anteil zu einer höheren Lichtausbeute in den Bauelementen führt. Daher ist es wahrscheinlich, dass Indium an dem fraglichen Mechanismus beteiligt ist. Für die PAC-Untersuchungen dieser Arbeit war daher ^{111}In als PAC-Sonde besonders geeignet. Aufgrund vorangegangener Messungen (s. [RUS01], [LOR02], [SCH07] und [PEN07]) entstand die Hypothese, dass es sich bei dem in GaN und AlN auftauchenden Defekt um eine Stickstoffleerstelle handelt, die an Indium koppelt. Das Ziel der vorliegenden Arbeit ist es, diese Hypothese zu erhärten oder zu widerlegen. Da die Wechselwirkungsfrequenz des Defekts in AlN deutlicher ausgeprägt ist, wurden die nachfolgenden Untersuchungen an AlN-Proben durchgeführt. Es lassen sich daraus Rückschlüsse auf die Verhältnisse in anderen Gruppe-III-Nitriden ziehen.

Kapitel 2 liefert einen kurzen Überblick über die Struktur der Gruppe-III-Nitride, wie auch eine Einführung in die verwendete Messmethode PAC. Kapitel 3 befasst sich mit den verwendeten Proben und wie sie für die erfolgten Untersuchungen präpariert wurden. In Kapitel 4 sind die Messungen, ihre Ergebnisse und die daran anschließende Diskussion dargestellt. Kapitel 5 liefert schließlich eine Zusammenfassung der Arbeit.

Kapitel 2

Grundlagen

2.1 Gruppe-III-Nitride

Die Gruppe-III-Nitride gehören zu den III-V-Halbleitern und setzen sich zusammen aus einem Element der dritten Hauptgruppe des Periodensystems der Elemente und Stickstoff (fünfte Hauptgruppe). Aufgrund ihrer großen Bandlücke sind sie von besonderem Interesse in Hinblick auf Anwendungen im optoelektronischen Bereich. Zu ihnen gehört auch AlN, welches im Rahmen dieser Arbeit untersucht wurde.

Die Ausbildung der Bandstruktur resultiert bei III-V-Halbleitern (wie z.B. auch bei den typischen Elementhalbleitern Si und Ge) aus der Mischung von s- und p-Wellenfunktion der Elektronen. Dies führt zu einem tetraedrischen Bindungsorbital (sp^3), welches in ein bindendes und ein antibindendes Orbital aufspaltet. Das bindende Orbital entspricht dem Valenzband, das antibindende dem Leitungsband. Die Aufteilung der Elektronen auf die bindenden und antibindenden Orbitale führt zu einem vollen Valenzband und einem leeren Leitungsband.

2.1.1 Aluminiumnitrid

Im Gegensatz zu anderen III-V-Halbleitern wie z.B. GaAs (Zinkblendestruktur) kristallisiert AlN in Wurtzitstruktur [IOFFE]. Eine Darstellung findet sich in Abbildung 2.1.

Das Wurtzitgitter wird aus zwei hexagonal dichtest gepackten Untergittern gebildet, die sich durch die Gitterparameter a und c beschreiben lassen. Ein Untergitter besteht aus N-Atomen, das andere aus Al-Atomen. Diese Untergitter sind in $\langle 0001 \rangle$ -Richtung (entspricht der \hat{c} -Achse des Kristalls) gegeneinander verschoben, was sich durch den sogenannten u -Parameter beschreiben lässt. Dieser wird gebildet durch $u = \frac{b}{c}$, wobei b die Bindungslänge in Richtung der \hat{c} -Achse ist.

Die Stapelfolge in \hat{c} -Richtung ist ABAB. So hat jedes Atom tetraedrisch vier Nachbaratome des anderen Elements. Die Bindungen sind gemischt ionogen-

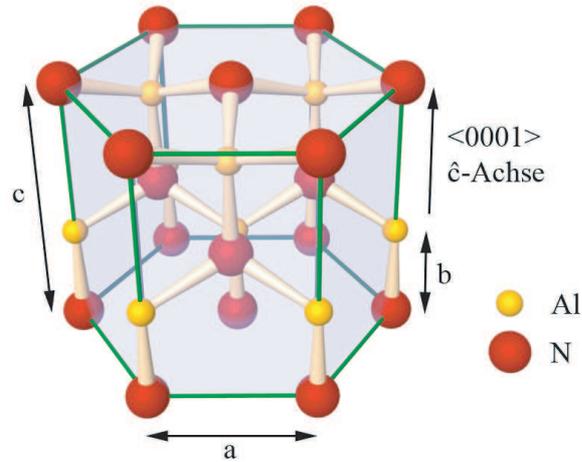


Abbildung 2.1: Wurtzitstruktur des Gruppe-III-Nitrids AlN. Ersetzt man die Al-Atome durch ein anderes Gruppe-III-Element, erhält man die Kristallstruktur eines anderen Gruppe-III-Nitridhalbleiters.

kovalent. Für die Gruppe-III-Nitridhalbleiter sind starke Bindungen wegen des großen Unterschieds in der Elektronegativität der Bindungspartner kennzeichnend. Aufgrund der Wichtigkeit im Hinblick auf die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Messungen sei insbesondere darauf hingewiesen, dass sich durch die unterschiedlichen Bindungslängen eine nicht kubische Ladungsverteilung im Kristall ergibt. Aus dieser resultiert ein intrinsischer, elektrischer Feldgradient (s. dazu Abschnitt 2.2.2). In Tabelle 2.1 sind einige Kristallparameter und Eigenschaften von AlN aufgeführt.

Gitterkonstante a in nm	0,3112
Gitterkonstante c in nm	0,4982
u -Parameter	0,382
Bandlücke in eV	6,2
Schmelzpunkt in K	3273
Dichte in $\frac{g}{cm^3}$	3,23
Thermische Ausdehnung $\Delta a/a$ in K^{-1}	$4,2 \cdot 10^{-6}$
Thermische Ausdehnung $\Delta c/c$ in K^{-1}	$5,3 \cdot 10^{-6}$
Anzahl der Atome pro cm^3 AlN	$9,58 \cdot 10^{22}$

Tabelle 2.1: Kristallparameter und Eigenschaften von AlN bei 300K (s. [IOFFE])

2.1.2 Herstellung

Die Herstellung der hier verwendeten Kristalle erfolgte über epitaktisches Aufwachsen (MOCVD - Metal Organic Chemical Vapor Deposition) auf Saphir-Substrat. Letzteres zeichnet sich durch Ähnlichkeiten zu den Gruppe-III-Nitriden im Gitter und im thermischen Verhalten aus. Dies ist insofern von Bedeutung, da das Herstellungsverfahren möglichst geringe Gitterfehlpassung, geringe Verspannung und niedrige Defektdichte verursachen sollte. Die Gitterfehlpassung von AlN auf der c-Ebene von Saphir liegt bei 13%.

2.1.3 Dotierung von III-V-Halbleitern

Die Dotierung von III-V-Halbleitern ähnelt im Prinzip der von Elementhalbleitern. Es ist z.B. möglich, durch den Einbau eines 2-wertigen Fremdatoms (z.B. Mg) auf dem Al-Gitterplatz einen Akzeptor zu erzeugen. Das für die tetraedrische Bindung verantwortliche sp^3 -Hybrid-Orbital kann verhältnismäßig leicht ein Elektron aus dem Valenzband aufnehmen. Es hinterlässt ein Defektelektron. Analog kann die Erzeugung eines Donators durch Einbau eines 6-wertigen Fremdatoms erfolgen. Ein 4-wertiges Atom kann generell auch zur Dotierung herangezogen werden (z.B. Si). Dadurch kann zwar eine Erhöhung der Leitfähigkeit erzielt werden, jedoch ist der Einbau des Si sowohl auf einem Al- wie auch auf einem N-Gitterplatz möglich. Für die durchgeführten Untersuchungen ist es jedoch wichtig zu wissen, auf welchem Gitterplatz sich das Dotierungsatom ansiedelt.

Bei 2-wertigem Mg ist nur der Einbau auf einem Al-Platz möglich.

2.2 Die Messmethode: $\gamma\gamma$ -Winkelkorrelation

Die Proben wurden mittels der zeitabhängigen gestörten $\gamma\gamma$ -Winkelkorrelation (PAC - Perturbed Angular Correlation) untersucht. Dazu wird in das zu untersuchende Kristallgitter eine radioaktive Sonde eingebracht, die über eine $\gamma\gamma$ -Kaskade zerfällt. Aus der detektierten Strahlung lassen sich Informationen über die Gitterumgebung ziehen, in der sich die Sonde befindet.

Zur Vereinfachung soll zuerst auf die ungestörte Winkelkorrelation eingegangen werden, bevor die Theorie der gestörten Winkelkorrelation betrachtet wird.

2.2.1 Ungestörte Winkelkorrelation

Bei der ungestörten Winkelkorrelation geht man von der Annahme aus, dass die betrachteten Atomkerne nicht durch extranukleare Felder gestört werden. Diese Annahme ist gerechtfertigt, wenn die Lebensdauer des Zwischenzustandes viel kleiner ist als die Wechselwirkungszeit zwischen dem Kern und dem extranuklearen Feld. Dies kann man für sehr kurzlebige Zustände als erfüllt ansehen

($\tau < 10^{-12} \text{s}$). Andernfalls müssen die extranuklearen Felder möglichst klein sein oder verschwinden, wie z.B. im kubischen Kristallgitter, um eine ungestörte Winkelkorrelation beobachten zu können.

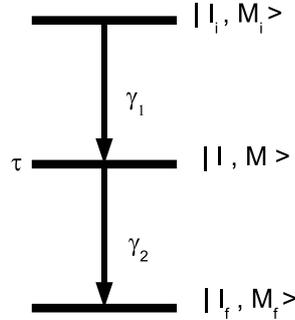


Abbildung 2.2: Schematische Darstellung der $\gamma\gamma$ -Kaskade einer PAC-Sonde (s.Kapitel 2.3). Durch Emission eines γ -Quants γ_1 gelangt der angeregte Kern vom Anfangszustand $|I_i, M_i\rangle$ in den Zwischenzustand $|I, M\rangle$. Dieser hat eine Lebensdauer τ . Der Zwischenzustand zerfällt unter Emission eines zweiten γ -Quants γ_2 in den Endzustand $|I_f, M_f\rangle$.

Geht man von einer Gleichverteilung der Unterzustände des Anfangskernzustandes $|I_i, M_i\rangle$ aus (s. Abbildung 2.2), so erhält man für die Wahrscheinlichkeit der Bevölkerung eines M -Unterzustandes im Zwischenniveau:

$$P(M) = \sum_{M_i} G(M_i \rightarrow M) F_{l_1, m_1}(\theta_1) \quad . \quad (2.1)$$

Dabei beschreibt $G(M_i \rightarrow M)$ die Wahrscheinlichkeit eines Überganges von $|I_i, M_i\rangle$ nach $|I, M\rangle$. $F_{l_1, m_1}(\theta_1)$ ist die Ausstrahlcharakteristik für γ -Quanten der Multipolarität l_1 mit $m_1 = M_i - M$. Es liefert also die Wahrscheinlichkeit, mit der γ -Quanten unter dem Winkel θ_1 in Bezug auf die z -Achse ausgesendet werden. Wählt man nun die z -Achse in Richtung von γ_1 , so wird F_{l_1, m_1} zu $F_{l_1, \pm 1}$, denn es finden nur für $m_1 = \pm 1$ Übergänge statt, bei denen γ_1 in z -Richtung emittiert wird (wie man an der Ausstrahlcharakteristik für reine Dipol- und Quadrupolstrahler sehen kann).

Durch diese Selektion von Unterzuständen werden die magnetischen Unterzustände des Zwischenniveaus nicht gleichmäßig besetzt, was dazu führt, dass die Emission von γ_2 anisotrop in Bezug auf die z -Achse erfolgt.

In der Praxis ist die Wahl der z -Achse in γ_1 -Emissionsrichtung (\vec{k}_1) durch den Nachweis von γ_1 mit einem ortsfesten Detektor realisiert. Somit lässt sich also sagen, dass der Nachweis von γ_1 die Anisotropie in der Emission von γ_2 bewirkt. Um sicherzustellen, dass γ_1 und γ_2 aus einer $\gamma\gamma$ -Kaskade desselben Kerns stammen, muss eine Koinzidenzmessung durchgeführt werden. Die vorangehenden

Vereinfachungen führen zu folgenden Nachteilen:

1. Die Betrachtung der Übergangswahrscheinlichkeiten anstatt der Amplituden bedeutet, dass bei Übergängen mit mehreren l-Werten auftauchende Interferenzen beim Übergang unberücksichtigt bleiben.
2. Das Zusammenlegen der z-Achse mit der Emissionsrichtung von γ_1 ist ungünstig für den Fall extranuklearer Störungen.

Wählt man daher bei einer allgemeineren Betrachtung die z-Achse nicht in Richtung von γ_1 , so führt dies dazu, dass γ_1 und γ_2 gleichbedeutend werden. Dieser Fall kann in einem allgemeinen Koordinatensystem dargestellt werden, wie es in Abbildung 2.3 zu sehen ist.

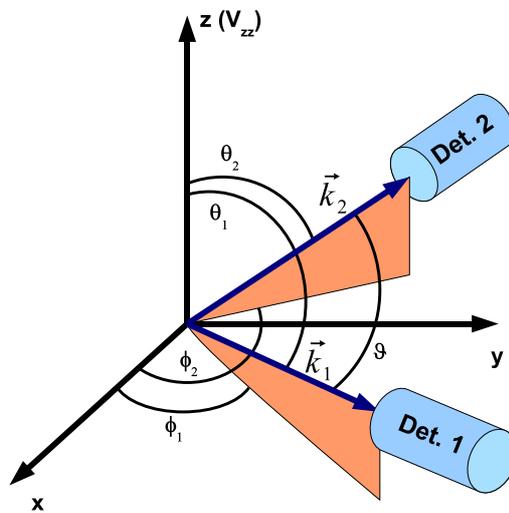


Abbildung 2.3: Allgemeines Koordinatensystem zur Beschreibung der $\gamma\gamma$ -Winkelkorrelation. Die Emissionsrichtungen von γ_1 bzw. γ_2 sind durch \vec{k}_1 bzw. \vec{k}_2 dargestellt.

Wenn man nun noch die Übergangsamplituden statt der Übergangswahrscheinlichkeiten betrachtet, so erhält man für die Winkelkorrelation eines spezifischen Überganges vom Anfangs- in den Endzustand ($M_i \rightarrow M_f$):

$$W(M_i \rightarrow M_f) = \left| \sum_M \langle M_f | H_2 | M \rangle \langle M | H_1 | M_i \rangle \right|^2 \quad . \quad (2.2)$$

Dabei ist H_1 bzw. H_2 der Wechselwirkungsoperator für die Emission von γ_1 bzw. von γ_2 .

Nach der Berechnung der Matrixelemente und Ausführen der Summation erhält man für die Winkelkorrelation zwischen der Emissionsrichtung \vec{k}_1 von γ_1 und \vec{k}_2 von γ_2 :

$$W(\vec{k}_1, \vec{k}_2) = W(\theta) = \sum_{k_{gerade}}^{k_{max}} A_k(1)A_k(2)P_k(\cos(\theta)) \quad . \quad (2.3)$$

Hierbei sind $A_k(1)$ und $A_k(2)$ nur vom ersten bzw. vom zweiten Übergang abhängige Koeffizienten, $P_k(\cos(\theta))$ sind die Legendrepolynome und k ist ein Laufindex. Für diesen gilt $0 \leq k \leq \text{Min}[2I, \text{Max}(2l_1, 2l'_1), \text{Max}(2l_2, 2l'_2)]$, wobei $l_{1,2}$ bzw. $l'_{1,2}$ die Multipolaritäten für den Fall gemischter Übergänge beschreiben.

2.2.2 Gestörte Winkelkorrelation

Das Zwischenniveau des Kerns soll nun eine endliche Lebensdauer τ_N haben, während derer der Kernzustand einer Hyperfeinwechselwirkung ausgesetzt sei. Dann erfolgt eine Umbesetzung der magnetischen Unterzustände, welche sich durch einen Zeitentwicklungsoperator $\Lambda(t)$ wie folgt beschreiben lässt:

$$|M_a \rangle \longrightarrow \Lambda(t)|M_a \rangle = \sum_{M_b} |M_b \rangle \langle M_b | \Lambda(t) | M_a \rangle \quad . \quad (2.4)$$

Es findet also in dem ursprünglich durch Emission von γ_1 bevölkerten Niveau des Zwischenzustandes eine Umpopulation während dessen Lebensdauer τ_N durch Hyperfeinwechselwirkung statt. Der Zustand M_a geht über in M_b , aus welchem anschließend γ_2 emittiert wird. Für die allgemein gültige Form der zeitabhängigen $\gamma\gamma$ -Winkelkorrelation gilt dann:

$$W(\vec{k}_1, \vec{k}_2, t) = \sum_{k_1, k_2, N_1, N_2} A_{k_1}(1)A_{k_2}(2)G_{k_1 k_2}^{N_1 N_2}(t) \frac{Y_{k_1}^{N_1*}(\theta_1, \phi_1)Y_{k_2}^{N_2}(\theta_2, \phi_2)}{\sqrt{(2k_1+1)(2k_2+1)}} \quad (2.5)$$

mit dem Störfaktor

$$G_{k_1 k_2}^{NN}(t) = \sum_{M_a} \sqrt{(2k_1+1)(2k_2+1)} \begin{pmatrix} I & I & k_1 \\ M'_a & -M_a & N_1 \end{pmatrix} \\ \times \begin{pmatrix} I & I & k_2 \\ M'_b & -M_b & N_2 \end{pmatrix} \langle M_b | \lambda(t) | M_a \rangle \langle M'_b | \lambda(t) | M'_a \rangle^* \quad (2.6)$$

und der Nebenbedingung $k_i = 0, 2, \dots, \text{Min}(2I, l_i + l'_i)$ mit $i = 1, 2, \dots$ und $|N_i| \leq k_i$. A_{k_1} und A_{k_2} sind Anisotropiekoeffizienten.

Betrachtet man nun die statische, axialsymmetrische Wechselwirkung, ergibt sich für den so vereinfachten Störfaktor

$$G_{k_1 k_2}^{NN}(t) = \sum_{M_a} \sqrt{(2k_1+1)(2k_2+1)} \begin{pmatrix} I & I & k_1 \\ M'_a & -M_a & N_1 \end{pmatrix} \\ \times \begin{pmatrix} I & I & k_2 \\ M'_b & -M_b & N_2 \end{pmatrix} \times \exp \left\{ -\frac{i}{\hbar} [E(M) - E(M')]t \right\} \quad (2.7)$$

Über den Term $\exp\left\{-\frac{i}{\hbar}[E(M) - E(M')]t\right\}$ enthält er nur die Übergangsfrequenzen zwischen den M-Niveaus im Zwischenzustand, wobei $E(M)$ bzw. $E(M')$ die Energie des Zustands im Niveau M bzw. M' ist.

Eine Möglichkeit einer Störung ist ein elektrisches Feld. Die elektrischen Ladungen um den Kern erzeugen ein Potenzial $\phi(\vec{r})$ am Kernort. Die Energie der Kernladungsverteilung $\rho(\vec{r})$ in diesem externen Potenzial ist

$$E_{\text{elektrisch}} = \int \rho(\vec{r})\phi(\vec{r})d^3r \quad (2.8)$$

mit $\int \rho(\vec{r})d^3r = Ze$, was wiederum die Kernladung ist. Zur Berechnung von $E_{\text{elektrisch}}$ wird eine Taylor-Reihe entwickelt

$$E_{\text{elektrisch}} = E^{(0)} + E^{(1)} + E^{(2)} + \dots \quad (2.9)$$

Der Term $E^{(0)}$ stellt die Coulomb-Energie für eine punktförmige Ladungsverteilung dar. Er trägt zur potenziellen Energie des Kristallgitters bei, ist aber für die hier weiter folgende Betrachtung unbedeutend.

$E^{(1)}$ beschreibt die elektrische Dipolwechselwirkung des elektrischen Feldes am Ursprung mit dem elektrischen Dipolmoment der Kernladungsverteilung. Da die Kernzustände definierte Parität haben, verschwindet er. Der nächste Term $E^{(2)}$ lässt sich aufteilen in einen Monopolterm E_C und den Anteil E_Q , die elektrische Quadrupolwechselwirkung, $E^{(2)} = E_C + E_Q$. Der Monopolterm E_C beschreibt die elektrostatische Wechselwirkung am Kernort zwischen dem ausgedehnten Kern und den Elektronen. Aus ihm ergibt sich eine Verschiebung des Niveaus aber keine Aufspaltung nach M-Unterszuständen. Nach dieser Betrachtung sieht man, dass der erste in diesem Zusammenhang relevante Term der Quadrupolterm E_Q ist. Nach weiterer Rechnung wird deutlich, dass in ihm die zweite Ableitung des Potentials $\phi(\vec{r})$ am Kernort steckt, welches die Definition des elektrischen Feldgradienten (EFG) ist

$$V_{ij} := \frac{\partial^2 \phi}{\partial x_i \partial x_j} \quad (2.10)$$

V_{ij} wird auch Tensor des elektrischen Feldgradienten genannt. Zu ihm tragen nur Ladungen bei, die sich nicht am Kernort befinden. Existieren am Sondenkernort keine felderzeugenden Ladungen, so gilt nach Laplace: $\Delta\phi = 0$ und somit $\sum V_{ij} = \Delta\phi = 0$. Das heißt, dass der Feldgradient-Tensor spurfrei ist und somit diagonalisiert werden kann. Er ist vollständig durch zwei Parameter beschreibbar. Hierzu zieht man im Normalfall die Größen V_{zz} und den Asymmetrieparameter η heran. Dabei wählt man die Achsen so, dass gilt

$$|V_{zz}| \geq |V_{yy}| \geq |V_{xx}| \quad (2.11)$$

Der Asymmetrieparameter ist wie folgt definiert:

$$\eta = \frac{V_{xx} - V_{yy}}{V_{zz}} \quad . \quad (2.12)$$

Betrachtet man weiterhin den statischen, axialsymmetrischen Fall ($\rightarrow \eta = 0$), so ist der Energieabstand zweier M-Niveaus bei elektrischer Quadrupolwechselwirkung:

$$E_Q(M) - E_Q(M') = 3|M^2 - M'^2|\hbar\omega_Q \quad . \quad (2.13)$$

ω_Q ist die Quadrupolfrequenz. Für sie gilt:

$$\omega_Q = \frac{eQV_{zz}}{4I(2I-1)\hbar} \quad . \quad (2.14)$$

Die Übergangsfrequenzen ω_n zwischen den Unterebenen lassen sich somit schreiben als

$$\omega_n = \frac{E_Q(M) - E_Q(M')}{\hbar} = 3|M^2 - M'^2|\omega_Q \quad . \quad (2.15)$$

Für den Störfaktor ergibt sich in obigem Fall:

$$G_{k_1 k_2}^{NN}(t) = \sum_n s_{nN}^{k_1 k_2} \cos(n\omega_Q^0 t) \quad . \quad (2.16)$$

Dabei ist $\hbar\omega_Q^0$ die kleinste nicht verschwindende Energiedifferenz zwischen zwei M-Niveaus. Es gilt:

$$\begin{aligned} \omega_Q^0 &= 3\omega_Q && \text{für ganzzahligen Kernspin I} \\ \omega_Q^0 &= 6\omega_Q && \text{für halbzahligen Kernspin I} \end{aligned}$$

und

$$s_{nN}^{k_1 k_2} = \sqrt{(2k_1 + 1)(2k_2 + 1)} \sum_{M, M'} \begin{pmatrix} I & I & k_1 \\ M' & -M & N \end{pmatrix} \begin{pmatrix} I & I & k_2 \\ M' & -M & N \end{pmatrix} \quad (2.17)$$

Die Formelbeziehung (2.16) für den Störfaktor bedeutet, dass sich die Winkelkorrelation mit den Frequenzen $\omega_Q^0, 2\omega_Q^0, \dots, n_{max}\omega_Q^0$ dreht, wobei jede Frequenz mit der Gewichtung $s_{nN}^{k_1 k_2}$ vorkommt.

Für den Spezialfall des in dieser Arbeit verwendeten Sondenkerns ^{111}In , auf den im nächsten Kapitel noch genauer eingegangen werden soll, ist $I = \frac{5}{2}$. Somit gilt für die Übergangsfrequenzen:

$$\begin{aligned} \omega_1 &= \omega_Q^0 = 6\omega_Q \\ \omega_2 &= 2\omega_Q^0 = 12\omega_Q \end{aligned}$$

$$\omega_3 = 3\omega_Q^0 = 18\omega_Q$$

Die genannten Zusammenhänge lassen sich statt mit der Quadrupolfrequenz ω_Q auch durch die Quadrupolkopplungskonstante ν_Q ausdrücken. Für sie gilt:

$$\nu_Q = \frac{4I(2I-1)}{2\pi}\omega_Q = \frac{eQV_{zz}}{h} \quad . \quad (2.18)$$

Für $I = \frac{5}{2}$ gilt dann

$$\nu_Q = \frac{20}{\pi}\omega_Q = \frac{10}{3\pi}\omega_0 \quad . \quad (2.19)$$

Damit lässt sich die in Formel (2.5) ausgedrückte Winkelkorrelation für den Spezialfall, dass ¹¹¹In als Sonde in poly- oder einkristallinen Proben verwendet wird, zur folgenden Form vereinfachen:

$$W(\theta_1, \phi_1, \theta_2, \phi_2, t) = 1 + A_{22}G_{k_1, k_2}^{N_1 N_2}(t) \quad , \quad (2.20)$$

wobei A_{22} der Anisotropiekoeffizient des betrachteten Falles ist. Die Störfunktion wird dann zu

$$G_{k_1, k_2}^{N_1 N_2}(t) = \sum_{n=0}^3 s_{kn}(\theta_1, \phi_1, \theta_2, \phi_2, \eta) \cos(\omega(\eta, V_{zz})t) \quad . \quad (2.21)$$

Wie aus Formel (2.21) deutlich wird, ist die Störfunktion eine mit s_{kn} gewichtete Überlagerung von cosinus-Funktionen der Übergangsfrequenzen. Diese hängen von V_{zz} und dem Asymmetrieparameter η ab. Die Gewichtung durch den Parameter s_{kn} erfolgt in Abhängigkeit der Geometrie der Anordnung, also der Winkel $\theta_1, \phi_1, \theta_2$ und ϕ_2 und dem Asymmetrieparameter η .

2.3 ¹¹¹Indium als Sonde

Damit ein radioaktives Isotop sich als Sonde für eine PAC-Messung eignet, muss es einige Anforderungen erfüllen. Zunächst muss es über eine $\gamma\gamma$ -Kaskade mit isomeren Zwischenniveau zerfallen, welches eine Lebensdauer zwischen etwa 10ns und einigen μ s haben sollte. Ist die Lebensdauer kürzer, kann es zu Problemen mit der Zeitauflösung der Messapparatur kommen. Ist die Lebensdauer jedoch länger, erhöht sich die Anzahl zufälliger Koinzidenzen und somit der Untergrund. Das Quadrupolmoment des Zwischenniveaus sollte möglichst groß sein, da somit die Quadrupolfrequenz ω_Q groß und innerhalb der Wechselwirkungsdauer messbar wird. Der Einfluss der Wechselwirkung der Sonde mit dem elektrischen Feldgradienten (EFG) wird in der Winkelkorrelation umso deutlicher, je größer die Anisotropiekoeffizienten des Sondenkerns sind. Außerdem sollte die Energie der γ -Quanten der $\gamma\gamma$ -Kaskade im Ansprechbereich der Szintillationsdetektoren liegen. Je nach Szintillationskristall kann dies ein Bereich zwischen einigen keV und

MeV sein. Mit steigender Energie der γ -Quanten sinkt die Wahrscheinlichkeit einer Selbstabsorption in der Probe, die Wahrscheinlichkeit detektiert zu werden sinkt allerdings ebenfalls. Ein praktischer Aspekt ist, dass das Sondenmutterisotop eine Lebensdauer von einigen Tagen bis Wochen haben sollte, damit z.B. ein Transport oder Mess- bzw. Probenvorbereitungen vorgenommen werden können und eine ausreichende Messdauer gewährleistet ist.

Die im Rahmen dieser Arbeit verwendete Quelle ist das in der Praxis gängige ^{111}In , dessen Tochterisotop ^{111}Cd ist. Die Herstellung ist über die Kernreaktionen $^{110}\text{Cd}(d,n)^{111}\text{In}$ oder $^{109}\text{Ag}(\alpha,2n)^{111}\text{In}$ möglich. ^{111}In wird ebenfalls im medizinischen Bereich eingesetzt. Das Einbringen der Sonde in die Probe kann durch Ionenimplantation oder Eindiffusion erfolgen.

Der Zerfall in das Tochterisotop erfolgt nach dem in Abbildung 2.4 dargestellten Schema:

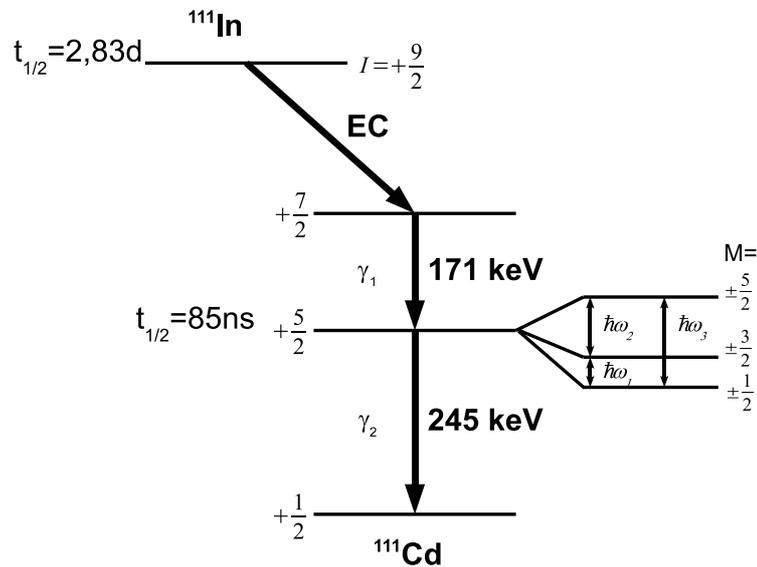


Abbildung 2.4: Zerfallsschema von ^{111}In . Rechts ist die Aufspaltung des $I = \frac{5}{2}$ Kernniveaus unter dem Einfluss einer axialsymmetrischen Quadrupolwechselwirkung dargestellt.

Über Elektroneneinfang zerfällt das Mutterisotop ^{111}In mit einer Halbwertszeit von $t_{1/2} = 2,83\text{d}$ in den $\frac{7}{2}^+$ -Kernzustand des Tochterkerns ^{111}Cd . Dieser zerfällt unter Aussendung eines γ -Quants mit einer Energie von 171 keV in den isomeren Zwischenzustand mit $I = \frac{5}{2}^+$. Dieses γ -Quant löst im Detektor als γ_1 den Start einer Koinzidenzmessung aus. Das Quadrupolmoment des Zwischenzustandes beträgt 0,83(13) barn. Mit einer Halbwertszeit von $t_{1/2} = 85\text{ns}$ zerfällt der Zwischenzustand über die Emission eines zweiten γ -Quants mit einer Energie von 245 keV in den Grundzustand mit $I = \frac{1}{2}^+$. Das zweite γ -Quant liefert bei Detektion das

Stopp-Signal der Koinzidenzmessung. Indium als Sonde für Gruppe-III-Nitride zeichnet sich insbesondere dadurch aus, dass es ebenfalls ein Element der dritten Hauptgruppe und damit isoelektronisch zu dem hier verwendeten Aluminium in AlN ist. Störungen in der Kristallstruktur können dennoch durch die unterschiedlichen kovalenten Radien der verschiedenen Atome verursacht werden. Indium hat einen kovalenten Radius von 144 pm, das Tochterisotop Cd 148 pm, während Al einen kovalenten Radius von 118 pm und N von 73 pm hat (s. [AYL81]).

2.4 Die Messapparatur

Wie aus den vorigen Abschnitten hervorgeht, ist die Winkelkorrelation zwischen den zwei γ -Quanten einer $\gamma\gamma$ -Kaskade im Allgemeinen nicht konstant. Ihre zeitliche Entwicklung wird durch die Störfunktion $G(t)$ (s. Formel (2.21)) beschrieben. Sie enthält alle Informationen über die Frequenzen, die durch die Wechselwirkung im Zwischenzustand bestimmt sind. Anschaulich kann man sich diese als Drehfrequenzen einer präzidierenden Ausstrahlcharakteristik der γ -Quanten vorstellen. Erhält man also durch eine Messung die Störfunktion $G(t)$, so lassen sich daraus Rückschlüsse auf diese Wechselwirkung ziehen.

Bei der verwendeten Apparatur handelt es sich um vier ortsfeste BaF₂- bzw. LSO-Szintillationsdetektoren, die in einem Winkel von jeweils 90° zueinander in einer Ebene mit der Probe angeordnet sind. Diese Anordnung liefert eine zeitlich oszillierende Koinzidenzzählrate, die die Frequenzen der Übergänge im Zwischenzustand widerspiegelt. Bei Raumtemperaturmessungen konnte die Probe in einem an die Apparatur angepassten Halter in einem Winkel von 45° mit einer Genauigkeit von etwa $\pm 1^\circ$ zu den Detektoren justiert werden (s. Abschnitt 2.6). Für temperaturabhängige Messungen stand ein computergesteuerter Ofen zur Verfügung. Die Probenausrichtung erfolgte hier mit einer Genauigkeit von etwa $\pm 5^\circ$. Die Verarbeitung der von den Szintillationsdetektoren aufgenommenen Signale erfolgt über ein modifiziertes Fast-Slow-Koinzidenzprinzip.

Ein schematischer Aufbau der Elektronik der verwendeten Anlage ist in Abbildung 2.5 dargestellt. Es werden Zeit- und Energiesignale an den Photomultipliern der Detektoren abgegriffen. Im Slow-Kreis wird das Energiesignal, welches an der Anode des Photomultipliers abgegriffen wird, verstärkt auf zwei Einkanalanalytoren (SCA - Single Channel Analyzer) gegeben. Über die an ihnen eingestellten Fenster wird eine Energieselektion nach Start- und Stopp-Quanten realisiert. Nur wenn ein als „Start“ identifiziertes Signal eines Detektors koinzident mit einem als „Stopp“ identifizierten Signal eines anderen Detektors in der Routingeinheit eintrifft, wird die Verarbeitung der Zeit-Signale aus dem Fast-Kreis am Analog-Digital-Wandler (ADC - Analog-Digital Converter) freigeschaltet. Der Abgriff des Zeitsignals erfolgt an einer der vorderen Dynoden des jeweiligen Photomultipliers. Nach einer Verzögerung wird es in einem Constant Fraction Dis-

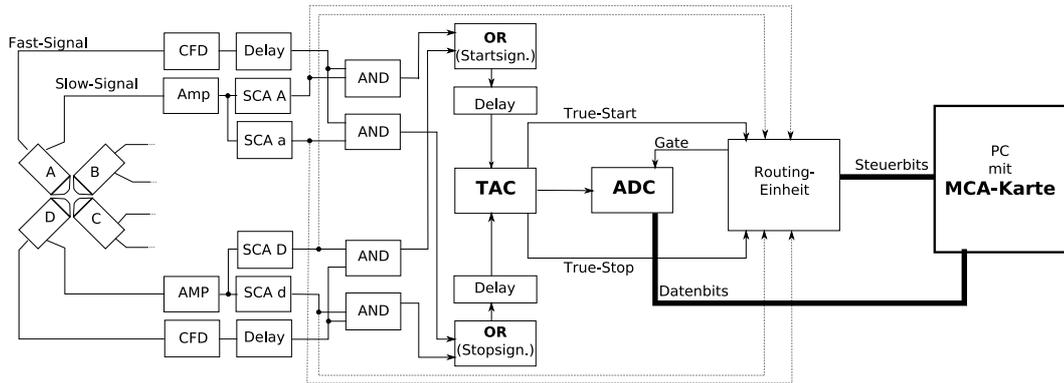


Abbildung 2.5: Schematischer Aufbau der Elektronik der 4-Detektor-Anlage. Zur besseren Übersicht sind nur die Schaltkreise von Detektor A und D dargestellt.

krinator (CFD) in einen Einheitspuls umgewandelt. Es folgt der Koinzidenzabgleich mit dem Start- oder Stopp-Signal des Slow-Kreises und die Weiterleitung auf den Start- oder Stopp-Eingang eines TAC (Time to Amplitude Converter) über ein OR-Gatter, um die Signale aller Detektoren zu berücksichtigen. Der TAC wird also nur durch γ -Quanten der richtigen Start- bzw. Stoppenergie gestartet/gestoppt. Dies führt zu einer Verminderung der Totzeit und der zufälligen Koinzidenzen. Die Amplitude des Ausgangssignals des TAC ist der Zeitspanne zwischen den beiden Eingangssignalen proportional. Im ADC werden die Signale digitalisiert. Danach werden die Ereignisse im Vielkanalanalysator (MCA - Multi Channel Analyzer) als Funktion der Zeit einsortiert und als die jeweilige Kombination von Start- und Stoppdetektor gespeichert. Auf diese Weise erhält man 12 Lebensdauerspektren. 8 stammen aus den 90° -Detektoranordnungen, bei 4 liegen Start- und Stoppdetektor einander gegenüber, also in einem Winkel von 180° zueinander.

Mit der Apparatur wird also die Koinzidenzzählrate nicht als Funktion des Winkels, sondern als Funktion der Zeit, die zwischen γ_1 und γ_2 verstreicht, gemessen. Es handelt sich um die zeitlich differentielle Beobachtung der gestörten $\gamma\gamma$ -Winkelkorrelation (TDPAC - Time Differential Perturbed Angular Correlation).

2.5 Analyse der Messdaten

Man betrachte zunächst die Zählrate N_i jedes Detektors i für den Fall, dass ein γ -Quant registriert wird. Dann gilt:

$$N_i = \varepsilon_i \Omega_i N \quad . \quad (2.22)$$

Dabei ist ε_i die Ansprechwahrscheinlichkeit des Detektors i für γ_i , Ω_i sein auf 4π normierter Raumwinkel und N die Aktivität der Quelle.

Geht man nun davon aus, dass der Detektor i ein γ_1 -Quant detektiert hat und ein anderer Detektor j ein γ_2 -Quant, so gilt für die Koinzidenzzählrate des Startdetektors i und des Stopdetektors j

$$N_{ij} = N_i \varepsilon_j \Omega_j \quad . \quad (2.23)$$

Durch Einsetzen der Gleichung (2.22) erhält man schließlich

$$N_{ij} = \varepsilon_i \varepsilon_j \Omega_i \Omega_j N \quad . \quad (2.24)$$

Für ein Zeitintervall t zwischen dem Eintreffen des ersten und des zweiten γ -Quants ist die Koinzidenzzählrate

$$N_{ij}(\theta, t) = N_0 \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right) W(\theta, t) + B \quad . \quad (2.25)$$

Sie setzt sich zusammen aus dem Produkt der Zählrate N_0 zum Zeitpunkt $t = 0$ mit der den exponentiellen Zerfall des Zwischenzustandes mit der Lebensdauer τ beschreibenden Exponentialfunktion, gewichtet mit der Winkelkorrelation $W(\theta, t)$ aufgrund der Präzession durch die Hyperfeinwechselwirkung. Schließlich muss noch ein konstanter Untergrund B hinzuaddiert werden, der durch zufällige Koinzidenzen auftritt.

Nach Abschluss der Messung können die Daten auf diesen Untergrund korrigiert werden. Die anschließende Berechnung des R-Werts erfolgt mit

$$R(t) = 2 \cdot \frac{N(180^\circ, t) - N(90^\circ, t)}{N(180^\circ, t) + 2N(90^\circ, t)} \quad . \quad (2.26)$$

Aus ihm lassen sich Rückschlüsse auf elektromagnetische Felder am Sondenkernort ziehen. Eine ausführliche Diskussion zur R-Wert-Bildung findet sich in [ARE80].

Für einen axialsymmetrischen, statistisch orientierten Feldgradienten gilt

$$R(t) \approx A_{22} G_{22}(t) \quad . \quad (2.27)$$

Somit enthält die Funktion $R(t)$ nur noch die gewünschte Störfunktion und A_{22} , den sondenspezifischen Anisotropiekoeffizienten.

Aufgrund des Aufbaus eines realen Kristalls, der z.B. Defekte aufweist, befinden

sich nicht alle Sonden in der gleichen Gitterumgebung. Die Teilmengen der Sondenatome, die somit unterschiedlichen Wechselwirkungen unterliegen, entsprechen den unterschiedlichen Anteilen f_i , aus welchen sich die Gesamtstörfunktion zusammensetzt. Der Gesamtstörfaktor $G(t)$ besteht also aus der Summe der sich am jeweiligen Sondenkern ergebenden Störfaktoren $G_i(t)$. Diese müssen durch den Anteil f_i der Sonden, die sich in betreffender Umgebung befinden, gewichtet werden. Also gilt:

$$G(t) = \sum_i f_i G_i(t) \quad , \quad (2.28)$$

wobei die Summe aller Anteile f_i 100% ergibt. Eine genaue Beschreibung der Störfunktionen und der verschiedenen Anteile findet sich in [LOR02]. Kleinere Abweichungen der elektrischen Feldgradienten in den Sondenumgebungen wirken sich als Dämpfung im Wechselwirkungsmuster aus. Mit Hilfe des Programmes Nightmare [NED07] lassen sich verschiedene Störfunktionen mit unterschiedlichen Anteilen f_i , Dämpfungen δ_i , den Übergängen im Zwischenzustand entsprechenden Frequenzen ω_i^0 , Asymmetrieparametern η_i und Winkeln anpassen, die in der Superposition die Gesamtstörfunktion ergeben. Die Anpassung der theoretischen Störfunktion an die Messwerte geschieht über die Methode der kleinsten Fehlerquadrate.

Zusammenfassend lässt sich sagen: Nach der Datenaufnahme wird nach Abzug der Untergrundzählrate der R-Wert mit dem Programm ShowFit [RUS01] berechnet. Diese Daten werden in das Programm Nightmare geladen. Durch Variation der oben angegebenen Parameter können dort die einzelnen Störfunktionen so angepasst werden, dass die aus ihrer Superposition resultierende Kurve dem Verlauf der Messwerte möglichst gut entspricht.

Wie aus Kapitel 2.2.2 folgt, handelt es sich um die Überlagerung verschiedener Cosinusfunktionen. Ein typisches R-Wert-Spektrum, wie es das Programm ShowFit für eine 3,5 μm dicke AlN-Schicht auf Saphir-Substrat nach einem Ausheilen von 2 Minuten bei 1173 K liefert, sieht man in Abbildung 2.6. In rot eingezeichnet ist der Fit, den man durch die Weiterbearbeitung der Daten mit dem Programm Nightmare erhalten kann. Die Parameter der einzelnen Störfunktionen erlauben einen Vergleich der unterschiedlich behandelten Proben und somit Rückschlüsse darauf, wie sich diese Behandlung auf das Kristallgitter und den Einbau der Sonde darin auswirkt.

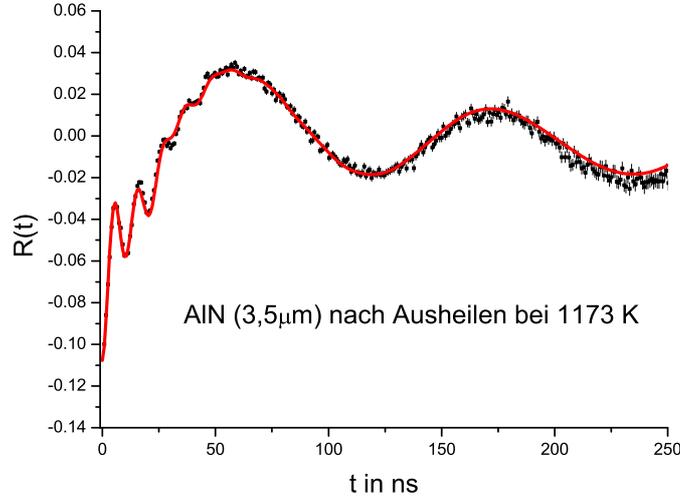


Abbildung 2.6: Typisches R-Wert-Spektrum mit Fit, aufgenommen an einer $3,5 \mu\text{m}$ dicken AlN-Schicht auf Saphir nach zweiminütigem Ausheilen bei 1173 K .

2.6 Orientierung der Probe

Wie in Abschnitt 2.2.2 erläutert, setzt sich die Gesamtstörfunktion (s. Formel (2.21)) aus einer Überlagerung verschiedener Störfunktionen zusammen, die mit dem Faktor s_{kn} gewichtet werden. Letzterer ist abhängig von der Geometrie der Messanordnung. Über diesen Zusammenhang hat auch die Orientierung des elektrischen Feldgradienten V_{zz} bei der Gewichtung einen wesentlichen Einfluss. In Abhängigkeit von der Messanordnung werden bestimmte Cosinus-Funktionen stärker gewichtet als andere. Dies äußert sich dadurch, dass die entsprechenden Übergangsfrequenzen in den R-Wert-Spektren deutlicher hervortreten. Aus vorangegangenen PAC-Messungen mit verschiedenen Orientierungen der Probe und somit des Feldgradienten konnte festgestellt werden, dass der elektrische Feldgradient, der sich ohne Störung wie auch der Feldgradient, der sich mit Störung ergibt, entlang der \hat{c} -Achse orientiert ist [SCH07].

Um die einzelnen Frequenzen gut erkennen und die verschiedenen Probenbehandlungen untereinander vergleichen zu können, wurden alle an dieser Arbeit durchgeführten Messungen in Raghavan-Geometrie vorgenommen. Dabei liegt die \hat{c} -Achse der Probe in der Detektorebene in einem Winkel von 45° zwischen den Detektorachsen (s. Abbildung 2.7).

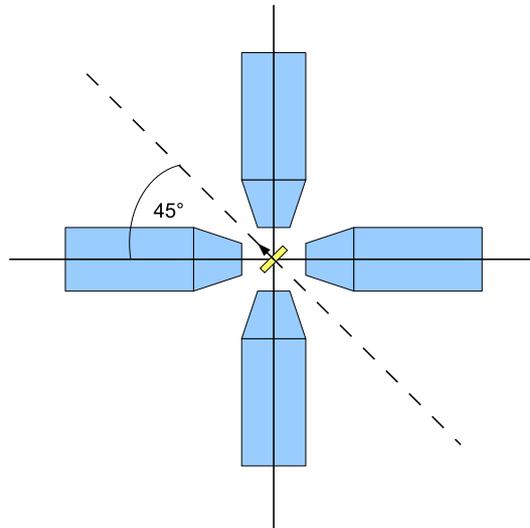


Abbildung 2.7: Anordnung von Probe und Detektoren in Raghavan-Geometrie. Die Probe ist derart in der Detektorebene eingebaut, dass die durch einen Pfeil dargestellte \hat{c} -Achse in einem 45° -Winkel zu den Detektorachsen liegt.

2.7 RBS - Rutherford Backscattering Spectroscopy

Bei der Methode der RBS handelt es sich um eine Analyse durch die Rückstreuung von Ionen. Dazu schießt man mit einem monoenergetischen Ionenstrahl auf eine Probe. Ein Detektor misst die Energie der unter einem bestimmten Winkel rückgestreuten Ionen. Sie ist abhängig von der ursprünglichen Energie der eingestrahlteten Ionen, von der Masse des Atomkerns, an dem gestreut wurde, wie auch von der Tiefe, in der dieser sich in der Probe befindet. So lässt sich ein Tiefenprofil der Elementverteilung einer Probe im oberflächennahen Bereich zwischen 10nm und einigen μm erstellen.

Eine weitere Methode, die auf dem gleichen Prinzip beruht, ist das sogenannte Channelling. Hierbei wird eine einkristalline Probe so ausgerichtet, dass der Ionenstrahl mit einer der Kristallachsen der Probe übereinstimmt. Durch Gitterführungseffekte dringen die Ionen tief in den Kristall ein. Man kann grundlegend zwischen zwei Arten von Spektren unterscheiden: Random-Spektren und Channelling-Spektren. Ein Random-Spektrum erhält man, wenn die Probe während der Messung um eine Achse gedreht wird, die keiner Gitterachse entspricht. So wird Gitterführung der Ionen gezielt vermieden. Entspricht die Drehachse jedoch einer Kristallachse, so erhält man ein Channelling-Spektrum.

Diese Methode eignet sich für Aussagen über die Qualität eines Kristalls wie auch insbesondere zur Gitterplatzbestimmung von Fremdatomen [LOR02].

Kapitel 3

Probenpräparationen

Die hier verwendeten Proben wurden von TDI¹ durch epitaktisches Aufwachsen hergestellt. Es lagen Proben vor, deren AlN-Schichtdicke auf dem Saphir-Substrat $0,5 \mu\text{m}$ bzw. $3,5 \mu\text{m}$ betrug. Für die Messungen wurden sie mit Hilfe einer Diamantdraht- und einer Kreissäge mit Diamantscheibe in Rechtecke der Größen von $4 - 6 \times 4 - 6 \text{ mm}^2$ gesägt. Um Verschmutzungen der Oberfläche zu beseitigen, wurden die Proben anschließend mit Ethanol gereinigt.

3.1 Implantation

Die Ionenimplantation ermöglicht es, ein breites Spektrum an Elementen mit hohen Konzentrationen in ein Wirtsgitter einzubringen. Dabei lässt sich die Eindringtiefe und die Breite der Verteilung über die Implantationsenergie kontrollieren. Mit wachsender Energie steigen Tiefe und Breite der Verteilung. Durchgeführt wurden die Implantationen der im Rahmen dieser Arbeit verwendeten Proben am Bonner Isotopenseparator. Implantiert wurden das radioaktive Isotop ^{111}In , welches bei Messungen als PAC-Sonde dient, wie auch stabiles ^{115}In und ^{24}Mg in das Wirtsgitter AlN. Typische Implantationsdosen sind im Folgenden tabellarisch aufgeführt (s. Tabelle 3.1).

Implantiertes Isotop	Implantationsdosis	$\frac{\text{Atome}}{\text{cm}^2}$
^{111}In	$1 - 5 \cdot 10^{12}$	
^{115}In	$2 - 3 \cdot 10^{13}$ und $2 - 3 \cdot 10^{14}$	
^{24}Mg	verschiedene Dosen zwischen $2 - 3 \cdot 10^{12}$ und 10^{15}	

Tabelle 3.1: Typische Implantationsdosen der verschiedenen implantierten Stoffe

¹Technologies & Devices International, Inc., 12214 Plum Orchard Drive, Silver Spring, MD 20904, USA

Die zu implantierenden Atome werden durch Verdampfen und anschließenden Elektronenbeschuss oder Oberflächenionisation ionisiert. Das in jede Probe implantierte ^{111}In stammt aus dem Verdampfen einer Indiumchloridlösung, die von der Firma Covidien² bezogen wurde. Durch Zerfall des ^{111}In in ^{111}Cd , der auch schon vor der Implantation stattfindet, wird ^{111}Cd mitimplantiert. Daraus resultiert, dass die Dosis der radioaktiven In-Atome bei einer implantierten Teilchendosis von $2 - 3 \cdot 10^{12} \frac{\text{Atome}}{\text{cm}^2}$ nur im Bereich von etwa $10^{11} \frac{\text{Atome}}{\text{cm}^2}$ liegt. Die durch das Verdampfen gewonnenen und anschließend ionisierten Atome werden durch ein positives Potential auf maximal 80 keV beschleunigt. Durch ein angelegtes Magnetfeld erfolgt eine Trennung nach dem Verhältnis Ladung zu Masse und Lenkung der Atome. Eine Nachbeschleunigung bewirkt Implantationsenergien von bis zu 160 keV für einfach geladene Ionen. Eine Ablenkung des Strahls in x- und y-Richtung soll eine möglichst homogene Implantation über die gesamte Probenoberfläche bewirken. Bei der Ionenimplantation muss beachtet werden, dass die implantierten Ionen durch Gitterführungseffekte tiefer in das Wirtsgitter eindringen können als beabsichtigt. Da das hier verwendete AlN auf einem Saphir-Substrat aufgewachsen wurde, können die Ionen gegebenenfalls so nah an das Substrat gelangen oder dort eindringen, dass sich dies auf die Messergebnisse auswirkt. Dies lässt sich durch eine Verkippung des Implantationswinkels gegen die Probennormale vermeiden. Aufgrund früherer Messungen (s. [SCH07] und [PEN07]) wurde für diese Arbeit ein Winkel von 12° gewählt. Aus diesen wurde auch deutlich, dass der Implantationswinkel aufgrund einer Verdrehung des Nullwinkels nicht als absoluter Wert anzusehen ist.

Die entstehenden Implantationsprofile sind typischerweise gaußförmig, wenn man Gitterführungseffekte vernachlässigt. Durch die Auffächerung der Energie der Ionen erhält man eine Verbreiterung des Implantationspeaks. Mit dem Monte-Carlo-Simulationsprogramm SRIM (Stopping and Range of Ions in Matter) kann ein Implantationsprofil simuliert werden. Es liefert Informationen über Implantationstiefe und die Konzentration des implantierten Stoffes in Abhängigkeit der Schichttiefe. Berechnet wird die mittlere Eindringtiefe (Range) sowie die halbe Halbwertsbreite des Implantationspeaks (Straggle) der Ionen. Gitterführungseffekte werden nicht von dem Programm berücksichtigt.

Da die untersuchten Proben größtenteils mit zwei verschiedenen Isotop- bzw. Atomarten implantiert wurden, war es nötig, die Implantationsenergien derart anzupassen, dass die einzelnen Profile übereinanderlagen. So wurden ^{111}In und ^{115}In mit einer Energie von 160 keV, ^{24}Mg mit 40 keV implantiert. Die sich ergebende Überlagerung der Profile ist im Folgenden als Diagramm (s. Abbildung 3.1) angegeben.

Eine Aufstellung der Eindringtiefe und der halben Halbwertsbreite des jeweiligen Implantationspeaks sowie die Implantationsenergie findet sich in Tabelle 3.2.

²Covidien, Gewerbepark 1, 93333 Neustadt/Donau

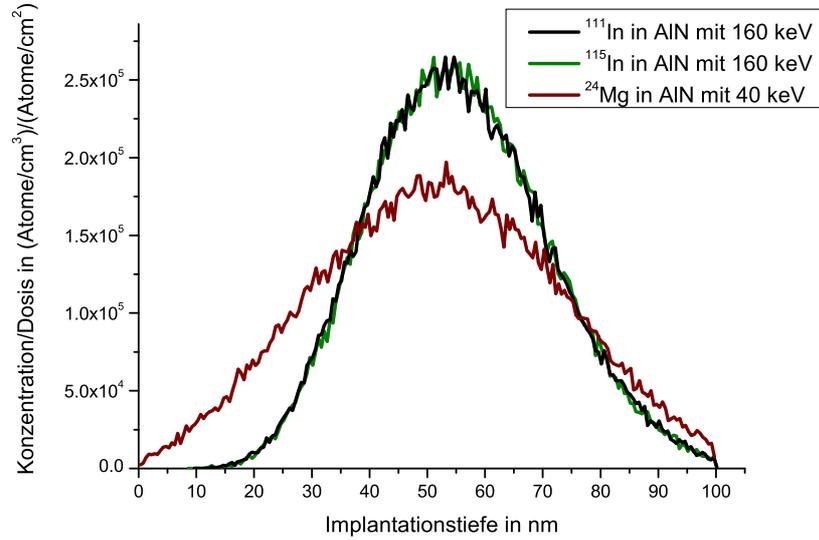


Abbildung 3.1: Mit SRIM simulierte Überlagerung der Implantationsprofile von ^{111}In und ^{115}In bei 160 keV Implantationsenergie und ^{24}Mg mit einer Implantationsenergie von 40 keV. Simuliert wurde für einen Implantationswinkel von 12° .

Implantiertes Isotop	Range [nm]	Straggle [nm]	Implantationsenergie [keV]
^{111}In	54,5	16,0	160
^{115}In	54,6	15,8	160
^{24}Mg	51,6	24,0	40

Tabelle 3.2: Typische Implantationsdosen der in dieser Arbeit implantierten Isotope

Aus den Daten der SRIM-Simulation lässt sich für die in die jeweilige Probe implantierte Dosis die Konzentration eines implantierten Stoffes in Abhängigkeit der Eindringtiefe berechnen.

Die Methode der Ionenimplantation birgt jedoch den Nachteil, dass sie Gitterdefekte im Kristall verursacht. Bei hohen Implantationsdosen kann dies zu einer Amorphisierung des Wirtsgitters führen. Bei den hier verwendeten Dosen ist es jedoch möglich die entstandenen Schäden thermisch auszuheilen. Genaue Untersuchungen zum thermischen Ausheilen von AlN finden sich in [SCH07] und [PEN07].

3.2 Thermisches Ausheilen von Implantationsschäden

Nach der Ionenimplantation erfolgt ein Ausheilen der entstandenen Kristalldefekte durch Temperaturbehandlung (sogenanntes „Tempern“). Um möglichst alle Implantationsschäden zu beheben, wurde die AlN-Probe in einer Kurzzeit-Temper-Anlage (RTA) (s. [MAR90]) für 120 s auf eine Temperatur von 1273 K erhitzt. Für Untersuchungen des Ausheilprozesses kann dieser jedoch auch schrittweise erfolgen, so dass Messungen zwischen diesen Schritten möglich sind ([KEI01], [LOR02]).

Für das Ausheilen in der RTA wird die Probe in einer kleinen Ausbuchtung zwischen zwei Graphitstreifen geklemmt. Diese werden zwischen zwei wassergekühlte Kupferelektroden gespannt, die sich in einem Rezipienten befinden. Nach Evakuierung, Spülen mit Stickstoff und erneuter Evakuierung des Rezipienten kann unter einem Stickstofffluss von 75 l/h oder Vakuum getempert werden. Dazu wird eine Spannung an die Elektroden gelegt, die die Graphitstreifen und die Probe zwischen ihnen in wenigen Sekunden auf die gewünschte Temperatur hochheizt und dort konstant hält. Über ein Thermoelement ist eine Kontrolle der Temperatur möglich. Es wird nach Einbau der Graphitstreifen in dem Rezipienten in einer Bohrung inmitte der Streifen angebracht, um der Probenposition möglichst nah zu sein. Um eine Ausdiffusion von Stickstoff aus der Probe zu minimieren, hat sich das Tempern unter Stickstofffluss und die Verwendung eines Proximity Caps bewährt. Letzteres ist ein Stück des gleichen Materials wie die Probe, welches auf die Probenoberfläche gelegt wird.

3.3 PAC-Ofen

Für Messungen oberhalb der Raumtemperatur stand ein PAC-Ofen zur Verfügung. Auf dessen ausführliche Beschreibung in [SCH93] sei an dieser Stelle hingewiesen. Die Abmessungen des PAC-Ofens ermöglichen einen Einbau zwischen den Detektoren der PAC-Anlage. Die zu messende Probe wird in der Ausfräsung eines Quarzglasröhrchens senkrecht mit einem Draht befestigt. Der Graphitheizer des Ofens entspricht in seiner Form einem geschlitzten Rohr. In dieses wird das Quarzglasröhrchen geschoben. Dabei ist auf die Orientierung der Probe zu den Detektoren zu achten. Über ein Thermoelement kann die Temperatur im Ofen kontrolliert werden. Der Graphitheizer befindet sich innerhalb einer doppelwandigen Ofenkammer, die evakuiert und mit Stickstoff befüllt werden kann. So sind Messungen sowohl im Vakuum wie auch unter Stickstoffatmosphäre möglich. Eine äußere Wasserkühlung verhindert die Überhitzung der Szintillationskristalle. Die Regelung der Temperatur im Ofen erfolgt über ein angeschlossenes Steuerprogramm [STE07].

3.4 Dotierung von AlN mit Magnesium

Zur näheren Untersuchung des in AlN enthaltenen Defektes erfolgte die Dotierung von 2-wertigem Mg, welches wie das 2-wertige Cd auf einem Al-Platz eingebaut wird. Um festzustellen, ob der zu untersuchende Defekt an Cd koppelt und ob der Kopplung die Coulombwechselwirkung aufgrund der 2-Wertigkeit des Cadmiums zugrunde liegt, wurde im Rahmen dieser Arbeit ein für AlN typischer Akzeptor (Mg) implantiert. Dieser sollte für die nach der Sondenimplantation in der Probe befindlichen Cd-Atome als Konkurrent um die in der Probe enthaltenen Defekte dienen. Um sicherzustellen, dass die Anzahl der Mg-Atome in der Probe ausreichte, um eine Konkurrenzsituation zu schaffen, wurden verschiedene Dosen von $10^{12} \frac{\text{Atome}}{\text{cm}^2}$ (also im Bereich der typischen Implantationsdosis der Sondenatome) bis zu $10^{15} \frac{\text{Atome}}{\text{cm}^2}$ implantiert.

3.5 Dotierung von AlN mit stabilem Indium

Eine weitere Möglichkeit ist, dass der Defekt an das Sondenmutterisotop ^{111}In koppelt. Zur Schaffung einer Konkurrenzsituation wurde hier die Implantation von stabilem ^{115}In gewählt. Dieses wird wie ^{111}In isoelektronisch in die Probe eingebaut. Bei einer Kopplung des Defektes an In würde es sich also um einen elastischen Effekt aufgrund der Größe der In-Atome handeln.

3.6 Injektion von Stickstoffleerstellen

Aufgrund der Hypothese, dass es sich bei dem Defekt um eine Stickstoffleerstelle handelt [SPV], wurde durch Ausdiffundieren von Stickstoff die Anzahl der Stickstoffleerstellen in der jeweiligen Probe erhöht. Dies geschah durch Erhitzen auf Temperaturen zwischen 1073 K und 1473 K im Vakuum.

Kapitel 4

Messungen

4.1 Messungen an AlN

Für die Untersuchungen lagen Proben von $0,5 \mu\text{m}$ und $3,5 \mu\text{m}$ AlN-Schichtdicke auf Saphir vor. Diese wurden unter einem Winkel von 12° mit ^{111}In implantiert. Die Implantationsdosen lagen bei $10^{12} \frac{\text{Atome}}{\text{cm}^2}$, die Implantationsenergie betrug 160 keV . Diese „reinen“ AlN-Proben dienen nur dem Vergleich mit den Proben, die zusätzlich mit ^{24}Mg bzw. mit stabilem ^{115}In implantiert wurden. Daher wurde kein ausführliches Ausheil- oder Ofenprogramm an ihnen durchgeführt. Ausführliche PAC-Untersuchungen an AlN mit der Sonde ^{111}In finden sich in [SCH07], [PEN07] und [LOR02]. Nach der in Abschnitt 3.1 dargestellten SRIM-Simulation liegt unter der Voraussetzung, dass durch den Implantationswinkel von 12° Gitterführungseffekte vermieden werden konnten, die maximale Reichweite aller implantierten Isotope bei etwa 100 nm bis 120 nm und damit deutlich unterhalb der AlN-Schichtdicken.

Alle Messungen wurden in der Detektorebene unter einem Winkel von 45° zwischen der Probennormalen und der Detektorachse durchgeführt, was der Raghavan-Geometrie entspricht (s. Abschnitt 2.6).

4.1.1 AlN mit einer Dicke von $3,5 \mu\text{m}$

Eine Probe mit einer AlN-Schichtdicke von $3,5 \mu\text{m}$ wurde wie beschrieben implantiert und anschließend einem Ausheilverfahren unterzogen. Die Probe wurde unter Stickstofffluss mit einem Proximity Cap (s. Abschnitt 3.2) für die Dauer von 2 min auf eine Temperatur von 1173 K gebracht. Anschließend wurde das R-Wert-Spektrum gemessen. Der Fit zeigt, dass es sich wie erwartet um eine Überlagerung dreier einkristalliner Anteile handelt (s. Abbildung 4.1).

Der erste Anteil entspricht dem Anteil an Sonden, die sich in ungestörter Gitterumgebung befinden. Er liegt bei $18,4(2)\%$. Seine Frequenz ist nahezu ungedämpft mit einer sich daraus ergebenden Quadrupolkopplungskonstante

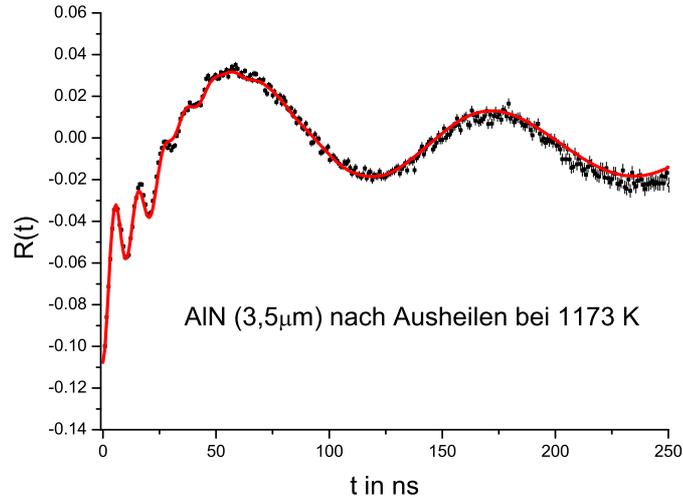


Abbildung 4.1: R-Wert-Spektrum einer $3,5 \mu\text{m}$ dicken AlN-Schicht auf Saphir nach zweiminütigem Ausheilen bei 1173 K .

von $\nu_1 = 27,8(3) \text{ MHz}$ (s. 2.19). Ein größerer Anteil von $37,5(5)\%$ der Sonden befindet sich in einer Gitterumgebung mit einer Störung in der weiteren Umgebung. Die Frequenz ist im Vergleich zu der des ersten Anteils größer, so dass sich $\nu_2 = 32,7(3) \text{ MHz}$ ergibt. Die Dämpfung liegt bei $13,3(3)\%$. Um die zu diesem Anteil gehörenden Parameter anfitten zu können, wird hier wie auch bei allen weiteren R-Wert-Spektren ein Asymmetrieparameter zwischen $0,4$ und $0,6$ angenommen. Da dieser in Übereinstimmung mit den vorangegangenen Untersuchungen [SCH07] liegt und keine relevanten Veränderungen in den Messungen zeigt, wird er in den folgenden Kapiteln nicht weiter betrachtet. Ein Anteil von $44,1(5)\%$ der Sonden sieht einen Defekt auf dem nächstliegenden Gitterplatz in Richtung der \hat{c} -Achse, was aus Orientierungsmessungen von J. Schmitz [SCH07] bekannt ist. Diese Tatsache äußert sich in einer verhältnismäßig hohen Frequenz, so dass $\nu_3 = 312(3) \text{ MHz}$ ist mit einer Dämpfung von $12,1(2)\%$. Zur Veranschaulichung sind der Einbau der Sonde auf einem Al-Platz und ihre verschiedenen Gitterumgebungen in Abbildung 4.2 dargestellt.

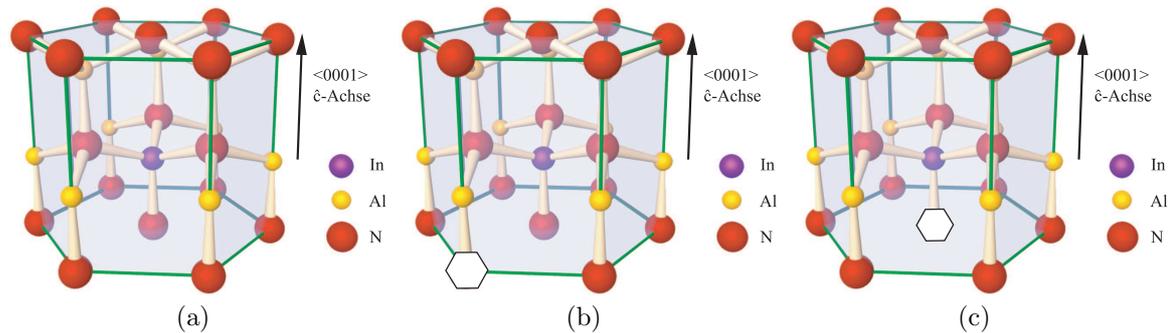


Abbildung 4.2: Indium eingebaut auf einem Al-Platz im AlN-Kristallgitter. Bild 4.2a zeigt Indium in ungestörter Gitterumgebung. Dies entspricht den Sonden im ersten Anteil. In Bild 4.2b befindet sich ein Defekt auf einem beispielhaft gewählten Gitterplatz in der weiteren Umgebung der Sonde, was Anteil 2 entspricht. In Bild 4.2c befindet sich ein Defekt auf dem nächsten Gitterplatz in Richtung der \hat{c} -Achse. Sonden, die sich in einer solchen Umgebung befinden, liegen in Anteil 3.

4.1.2 AlN mit einer Dicke von $0,5 \mu\text{m}$

An Proben, deren AlN-Schichtdicke bei $0,5 \mu\text{m}$ lag, erfolgte eine Messung des R-Wert-Spektrums bei Raumtemperatur direkt nach der Implantation. Anschließend wurde die Probe für 2 min bei 1273 K unter Stickstofffluss mit Proximity Cap ausgeheilt, worauf eine Messung des R-Wert-Spektrums bei Raumtemperatur und danach eine Messung bei 473 K unter Stickstoffatmosphäre im PAC-Ofen erfolgte.

Im R-Wert-Spektrum, welches ohne Ausheilverfahren, also wie implantiert, aufgenommen wurde (s. Abbildung 4.3), sieht man an der hohen Dämpfung, dass die EFGs der verschiedenen Sondenumgebungen in einer breiten Verteilung um einen Mittelwert vorliegen. Dies entspricht dem erwarteten Verhalten eines R-Wertes direkt nach der Implantation.

Nach dem Ausheilen kann man schon bei Vergleich der R-Wert-Spektren in Abbildung 4.1 und 4.4 sehen, dass sich die $0,5 \mu\text{m}$ dicke Probe von der mit einer Dicke von $3,5 \mu\text{m}$ unterscheidet. Die entsprechenden Fitparameter der R-Wert-Spektren der $0,5 \mu\text{m}$ dicken Probe sind in Tabelle 4.1 zusammengestellt. Etwa 4% mehr Sonden befinden sich in der dünnen Probe in ungestörter Gitterumgebung. Die Frequenz dieses Anteils ist um 17% relativ größer als die Frequenz der dicken Probe, während die Frequenz des zweiten Anteils um 20% größer ist und die des dritten um 14%. In der dünnen Probe befinden sich etwa 4% weniger Sonden im zweiten Anteil als in der dicken Probe. Der dritte Anteil ist bei beiden Proben nahezu gleich, jedoch ist die Frequenz dieses Defektanteils bei der $0,5 \mu\text{m}$ dicken Probe um etwa 10% absolut und um 45% relativ zur $3,5 \mu\text{m}$ dicken Probe stärker

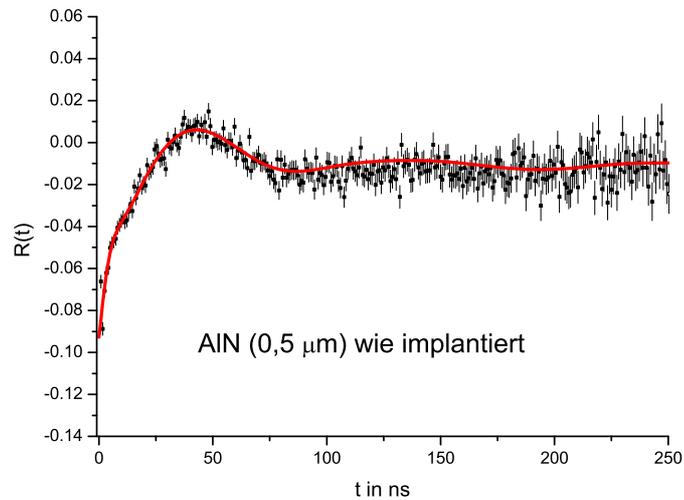


Abbildung 4.3: R-Wert-Spektrum einer 0,5 μm dicken AlN-Schicht direkt nach der Implantation, gemessen bei Raumtemperatur.

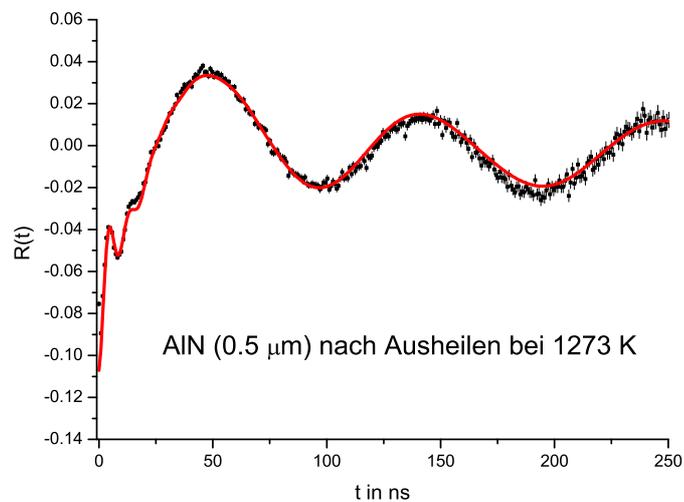


Abbildung 4.4: R-Wert-Spektrum einer 0,5 μm dicken AlN-Schicht auf Saphir nach zweiminütigem Ausheilen bei 1273 K, gemessen bei Raumtemperatur.

gedämpft.

Das R-Wert-Spektrum, das nach dem Ausheilen der 0,5 μm dicken Probe durch Messung bei 473 K unter Stickstoffatmosphäre im PAC-Ofen entstand (s. Abbil-

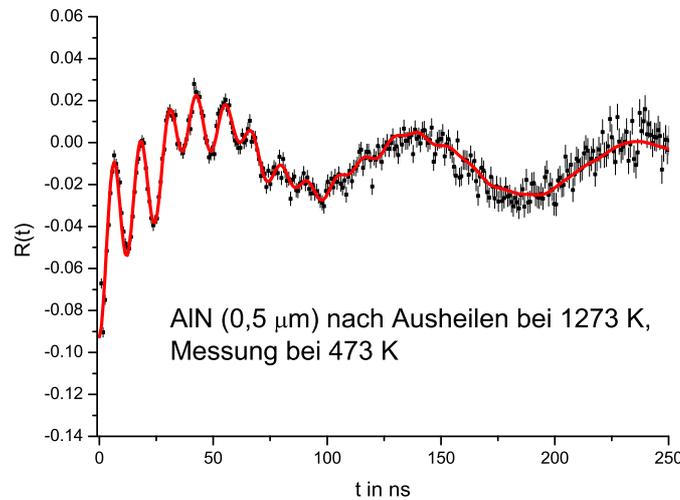


Abbildung 4.5: R-Wert-Spektrum einer $0,5 \mu\text{m}$ dicken AlN-Schicht auf Saphir nach zweiminütigem Ausheilen bei 1273 K , gemessen bei 473 K .

Abbildung 4.5), zeichnet sich in Übereinstimmung mit [SCH07] durch eine besonders geringe Dämpfung der Frequenz des Defektanteils aus. Sie liegt in diesem Fall nur bei 5%. Dadurch ist die Defektfrequenz besonders deutlich zu erkennen. Zur Untersuchung des dritten Sondenanteils und seiner Frequenz eignen sich Messungen bei 473 K daher besonders gut.

Parameter	wie implantiert	Messung bei 293 K	Messung bei 473 K
f_1 [%]	38,4(9)	22,1(3)	29(1)
ν_1 [MHz]	35,4(4)	33,6(3)	35,4(4)
δ_1 [%]	23,1(8)	0,0(9)	4,2(3)
f_2 [%]	14,3(9)	33,8(5)	15(1)
ν_2 [MHz]	49,6(5)	40,9(1)	39(2)
δ_2 [%]	15(1)	10,6(3)	31(4)
f_3 [%]	47,3(9)	44,1(5)	56(1)
ν_3 [MHz]	16,6(2)	360(4)	272(3)
δ_3 [%]	90(2)	22,1(7)	5,0(2)

Tabelle 4.1: Parameter der R-Wert-Spektren für AlN von $0,5 \mu\text{m}$ Dicke. Die Probe wurde zunächst nach der Implantation gemessen (wie implantiert), danach ausgeheilt und anschließend bei Raumtemperatur sowie bei 473 K gemessen.

Ein direkter Vergleich zwischen den einzelnen Parametern der Probe aus Ab-

schnitt 4.1.1 und der Probe dieses Abschnitts ist mit Vorsicht zu betrachten, da die dicke Probe bei 1173 K, die dünne aber bei 1273 K ausgeheilt wurde. Dieser Unterschied sollte nicht zu großen Abweichungen der Werte voneinander führen (s. [SCH07]). Dennoch kann er einen Einfluss haben, der z.B. erklären könnte, dass sich in der dünnen Probe 4% mehr Sonden in ungestörter Gitterumgebung befinden. Die wesentlichen Unterschiede zwischen den Proben liegen bei den Frequenzen. Sie begründen sich in der größeren Verspannung der 0,5 μm dicken Probe im Vergleich zur 3,5 μm dicken, denn der Einfluss des Saphir-Substrats in einer dünnen aufgewachsenen Schicht ist größer als der in einer dickeren Schicht. Die höhere Verspannung einer dünnen Probe äußert sich in einem Anstieg der Gitterfrequenz (s. [SCH07]). Dies ist im Vergleich der dünnen zur dicken Probe für die Frequenzen des Anteils 1 und des Anteils 2 auch hier zu beobachten. Somit lässt sich schließen, dass auch die folgenden Untersuchungen, insbesondere in den Frequenzen, nur direkt untereinander zu vergleichen sind, wenn sie an Proben der gleichen Dicke durchgeführt wurden.

4.2 Messungen an AlN mit ^{24}Mg

Zur Untersuchung des Einflusses eines Akzeptors auf den Defekt in AlN wurde ^{24}Mg in verschiedenen Dosen mit einer Implantationsenergie von 40 keV unter einem Winkel von 12° zusätzlich zu ^{111}In in verschiedene AlN-Proben einer Dicke von $0,5\ \mu\text{m}$ implantiert. Neben Messungen einer dosisabhängigen Reihe bei Raumtemperatur und im Ofen bei 473 K wurden an einzelnen Proben Ausheilprogramme und Reihen temperaturabhängiger Messungen durchgeführt. Diese sind im Anhang angefügt (s. A und B). Das darin beobachtete Verhalten entspricht im Wesentlichen dem von AlN ohne Magnesium.

4.2.1 Dosisabhängige Messungen bei Raumtemperatur

Implantiert wurden Mg-Dosen von $10^{12}\ \frac{\text{Atome}}{\text{cm}^2}$, was auch der implantierten ^{111}In -Dosis entspricht, $5 \times 10^{12}\ \frac{\text{Atome}}{\text{cm}^2}$, $10^{13}\ \frac{\text{Atome}}{\text{cm}^2}$, $5 \times 10^{13}\ \frac{\text{Atome}}{\text{cm}^2}$, $10^{14}\ \frac{\text{Atome}}{\text{cm}^2}$ und $10^{15}\ \frac{\text{Atome}}{\text{cm}^2}$. Anschließend wurden die Proben 2 min bei 1273 K unter Stickstofffluss mit einem Proximity Cap ausgeheilt. Durch Messung bei Raumtemperatur erhält man die R-Wert-Spektren in Abbildung 4.6. Eine Aufstellung der Fit-Parameter findet sich in Tabelle 4.2. Sie bilden die Grundlage für Abbildung 4.7, die eine Darstellung des Mg-dosisabhängigen Verlaufs der einzelnen Parameter bietet. Zum besseren Vergleich sind in der Tabelle 4.2 und in Abbildung 4.7 die Parameter einer Probe beigefügt, die nicht mit Mg implantiert wurde. Diese dienen im Folgenden als Referenzwerte zu denen die relative Abweichung betrachtet wird. Es handelt sich dabei um die Parameter des R-Wert-Spektrums, welches in Abbildung 4.4 dargestellt ist.

Wie bei AlN ohne Mg wurden auch bei den R-Wert-Spektren der Mg-implantierten Proben drei einkristalline Anteile angefitet, die einer ungestörten Gitterumgebung (Anteil 1), einer Gitterumgebung mit Störung in weiterer Umgebung (Anteil 2) und einer Umgebung mit einem Defekt auf dem nächsten Gitterplatz in Richtung der \hat{c} -Achse zur Sonde (Anteil 3) entsprechen. Bis zu einer Dosis von $5 \times 10^{13}\ \frac{\text{Atome}}{\text{cm}^2}$ ändern sich die Parameter der R-Wert-Spektren kaum. Bei einem Vergleich mit den Werten der Probe ohne Magnesium sieht man, dass die maximale relative Abweichung zu dem Referenzwert für Anteil 1 bei etwa 9%, für Anteil 2 bei 23% und für Anteil 3 bei 11% liegt. Bei den Frequenzen erhält man eine maximale Abweichung zum Referenzwert von knapp 2% für die Frequenz des ersten Anteils, etwa 4% für die des zweiten und knapp 11% für die Frequenz des Defektanteils. Bei Letzterer kann man eine leicht sinkende Tendenz beobachten. Während die erste Frequenz bei allen Proben bis einschließlich einer Dosis von $10^{14}\ \frac{\text{Atome}}{\text{cm}^2}$ nahezu ungedämpft bleibt, weicht die Dämpfung der Frequenz des zweiten Anteils bis $5 \times 10^{13}\ \frac{\text{Atome}}{\text{cm}^2}$ Mg um maximal 8% relativ zum Referenzwert ab, die des dritten um maximal 16%.

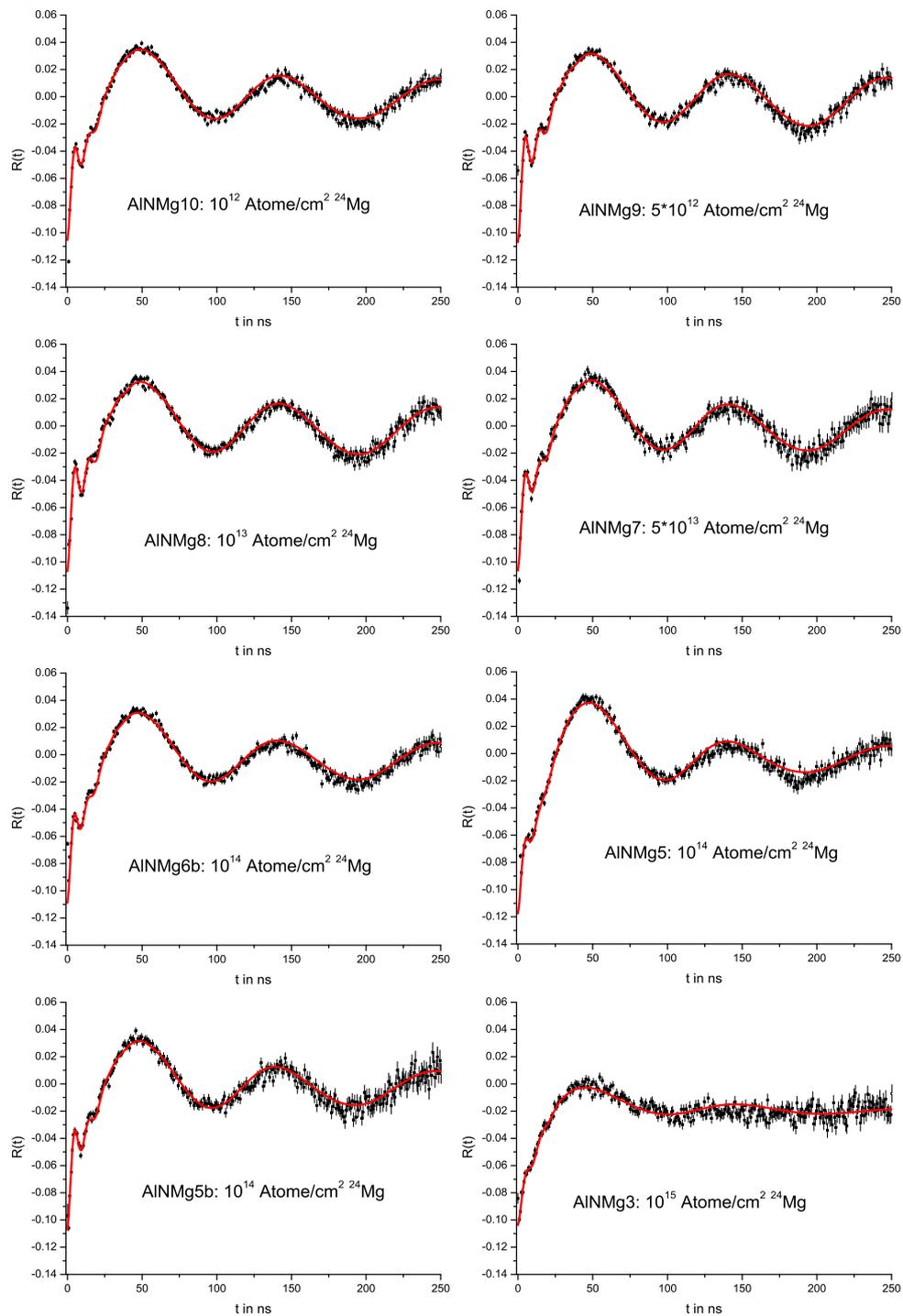


Abbildung 4.6: R-Wert-Spektren 0,5 μm dicker AlN-Proben mit Mg-Dosen zwischen $10^{12} \frac{\text{Atome}}{\text{cm}^2}$ und $10^{15} \frac{\text{Atome}}{\text{cm}^2}$ nach zweiminütigem Ausheilen bei 1273 K, gemessen bei Raumtemperatur.

Dosis [$\frac{\text{Atome}}{\text{cm}^2}$]	ohne Mg	10^{12}	5×10^{12}	10^{13}	5×10^{13}
f_1 [%]	22,0(2)	20,8(3)	24,4(3)	23,7(3)	24,2(5)
ν_1 [MHz]	33,6(3)	33,0(4)	33,75(4)	33,57(4)	33,38(6)
δ_1 [%]	0,0(9)	0,6(1)	0,7(1)	0,2(1)	1,4(2)
f_2 [%]	33,8(5)	35,8(6)	26,2(6)	27,9(7)	29,4(9)
ν_2 [MHz]	40,9(4)	39,4(4)	40,4(4)	40,5(4)	40,0(4)
δ_2 [%]	10,6(3)	11,2(3)	10,8(4)	9,9(4)	9,7(5)
f_3 [%]	44,2(5)	43,4(5)	49,4(6)	48,4(6)	46,4(8)
ν_3 [MHz]	360(4)	333(4)	338(4)	332(3)	325(4)
δ_3 [%]	22,1(7)	21,6(7)	19,4(7)	19,1(7)	22(1)
Dosis [$\frac{\text{Atome}}{\text{cm}^2}$]	10^{14}	10^{14}	10^{14}	10^{15}	
f_1 [%]	18,9(3)	19,2(4)	16,6(4)	45(2)	
ν_1 [MHz]	33,7(4)	33,3(4)	32,8(4)	32,0(3)	
δ_1 [%]	0(1)	0,0(1)	1,3(2)	24,4(8)	
f_2 [%]	39,9(4)	33,6(9)	52(1)	34(2)	
ν_2 [MHz]	41,1(5)	40,4(4)	39,4(4)	59(1)	
δ_2 [%]	13,3(2)	9,4(4)	13,2(3)	36(2)	
f_3 [%]	41,2(5)	47,2(8)	31,4(5)	21(1)	
ν_3 [MHz]	350(4)	338(4)	321(6)	305(7)	
δ_3 [%]	21,9(9)	22(1)	28(2)	23(4)	

Tabelle 4.2: Parameter der R-Wert-Spektren für ALN von $0,5 \mu\text{m}$ Dicke, die mit unterschiedlichen Mg-Dosen implantiert wurden. Zum Vergleich sind die Daten einer nicht mit Mg implantierten Probe gleicher ALN-Dicke beigegefügt. Die Messungen wurden nach zweiminütigem Ausheilen bei 1273 K bei Raumtemperatur durchgeführt.

Die erste Auffälligkeit im Verlauf der Parameter zeigt sich bei einer Mg-Dosis von $10^{14} \frac{\text{Atome}}{\text{cm}^2}$. Es wurden drei Proben mit dieser Dosis implantiert und gemessen. Trotz gleicher Behandlung unterscheiden sich ihre Anteile. So beträgt die maximale relative Abweichung zwischen ihnen im ersten Anteil 14%, im zweiten Anteil 36% und im dritten 34%. Die Abweichungen in Frequenzen und Dämpfungen der verschiedenen Anteile sind jedoch nur gering.

Besonders auffällig ist der Anstieg des Anteils der Sonden in ungestörter Gitterumgebung bei der mit $10^{15} \frac{\text{Atome}}{\text{cm}^2}$ Mg implantierten Probe. Hier findet ein Sprung von etwa 18%, was der Mittelwert des ersten Anteils der drei Proben mit der Dosis $10^{14} \frac{\text{Atome}}{\text{cm}^2}$ ist, auf etwa 46% statt. Dementsprechend sinkt der zweite Anteil auf etwa 33% und der Defektanteil auf etwa 21%. Dieses Verhalten geht einher mit einem Anstieg der zuvor ungedämpften ersten Frequenz auf eine Dämpfung von etwa 24%. Auch die Dämpfung der zweiten Frequenz steigt an wie auch die zweite Frequenz selbst.

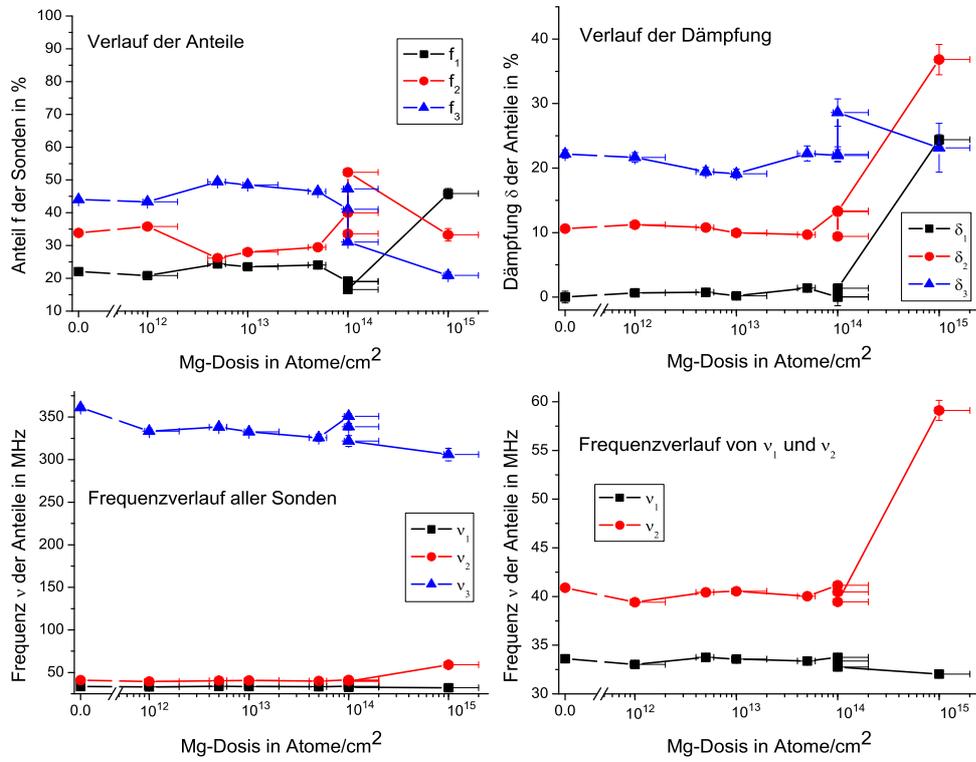


Abbildung 4.7: Mg-dosisabhängiger Verlauf der Parameter der R-Wert-Spektren. Alle Proben wurden zum Ausheilen der Gitterschäden für 2 min auf 1273K erhitzt. Die dargestellten Messungen erfolgten anschließend bei Raumtemperatur. Die zur ungestörten Sondenumgebung gehörenden Parameter sind durch schwarze Quadrate gekennzeichnet. Die roten Kreise gehören zu den Sonden mit einer Störung in weiterer Umgebung. Mit blauen Dreiecken sind die Parameter dargestellt, bei denen sich ein Defekt auf dem nächsten Gitterplatz in Richtung der \hat{c} -Achse zur Sonde befindet.

4.2.2 Dosisabhängige Messungen bei 473 K

Da der Defektanteil bei einer Messtemperatur von 473 K eine besonders niedrige Dämpfung hat und somit gut zu erkennen ist (s. 4.1.2), wurden mit drei Proben verschiedener Mg-Dosis im Anschluss an die Messungen bei Raumtemperatur Messungen bei einer Temperatur von 473 K durchgeführt. Sie erfolgten unter Stickstoffatmosphäre im PAC-Ofen (s. Abschnitt 3.3). Die daraus entstandenen R-Wert-Spektren finden sich in Abbildung 4.8. Die Daten der Fitparameter sind in Tabelle 4.3 aufgelistet. Ihr dosisabhängiger Verlauf ist in Abbildung 4.9 dar-

gestellt. Zum besseren Vergleich sind auch hier die Werte einer $0,5 \mu\text{m}$ dicken ALN-Probe, die nicht mit Mg implantiert wurde, beigefügt.

Dosis [$\frac{\text{Atome}}{\text{cm}^2}$]	ohne Mg	10^{12}	10^{14}
f_1 [%]	29,0(7)	17,1(6)	19,5(4)
ν_1 [MHz]	35,4(4)	34,0(4)	34,12(6)
δ_1 [%]	4,2(3)	2,49(8)	0(2)
f_2 [%]	15(1)	41,0(6)	40,4(5)
ν_2 [MHz]	39(2)	38,9(4)	41,1(4)
δ_2 [%]	31(4)	14,4(3)	9,8(3)
f_3 [%]	56(1)	41,9(8)	40,1(6)
ν_3 [MHz]	272(3)	274(3)	276,4(4)
δ_3 [%]	5,0(2)	11,6(6)	11,9(5)

Tabelle 4.3: Parameter der R-Wert-Spektren für ALN von $0,5 \mu\text{m}$ Dicke, die mit unterschiedlichen Mg-Dosen implantiert wurden. Zum Vergleich sind die Daten einer nicht mit Mg implantierten Probe gleicher ALN-Dicke beigefügt. Die Messungen wurden nach zweiminütigem Ausheilen bei 1273 K im Anschluss an die vorangegangenen Raumtemperaturmessungen bei 473 K unter Stickstofffluss im Ofen durchgeführt.

Betrachtet man den Verlauf der Anteile, so sieht man deutlich, dass sich schon ab einer Mg-Dosis von $10^{12} \frac{\text{Atome}}{\text{cm}^2}$ der Anteil an Sonden mit einer Störung in weiterer Umgebung und der Anteil mit der Störung in unmittelbarer Umgebung bei einem Wert von 40% aneinander angleichen. Dieses Verhalten zeigt auch die Probe mit $10^{14} \frac{\text{Atome}}{\text{cm}^2}$ Mg. Der Anteil der Sonden in ungestörter Umgebung verringert sich von etwa 30% absolut bei der Probe ohne Mg auf etwa 17% absolut bei $10^{14} \frac{\text{Atome}}{\text{cm}^2}$.

Die Frequenzen ändern sich dagegen kaum.

Während die Dämpfung der ersten Frequenz bei den hier betrachteten Messungen unter 5% bleibt, sinkt die Dämpfung der zweiten Frequenz von etwa 31% bis auf 10%. Die Dämpfung der Defektfrequenz steigt dagegen leicht von 5% bei der nicht mit Mg implantierten Probe auf etwa 12% bei beiden Proben mit Mg.

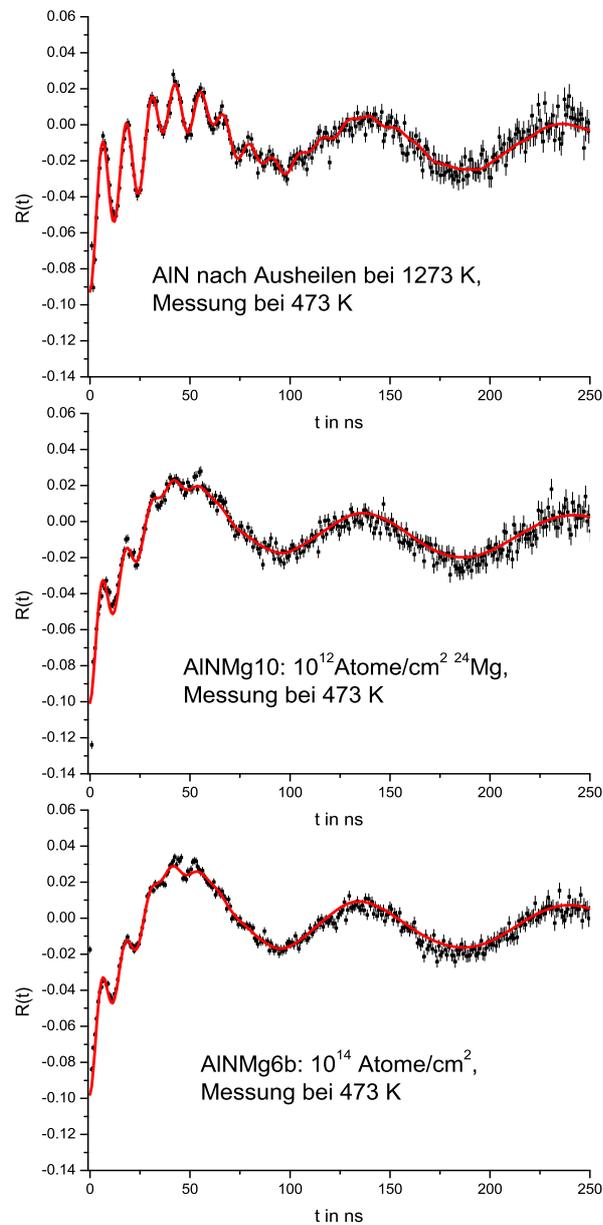


Abbildung 4.8: R-Wert-Spektren $0,5 \mu\text{m}$ dicker AlN-Proben mit verschiedenen Mg-Dosen nach zweiminütigem Ausheilen bei 1273 K, gemessen bei 473 K unter Stickstoffatmosphäre im PAC-Ofen. Das erste Spektrum wurde an einer Probe aufgenommen, die nicht mit Mg implantiert wurde (s. Abschnitt 4.1.2). Zum Vergleich ist es hier mit abgebildet.

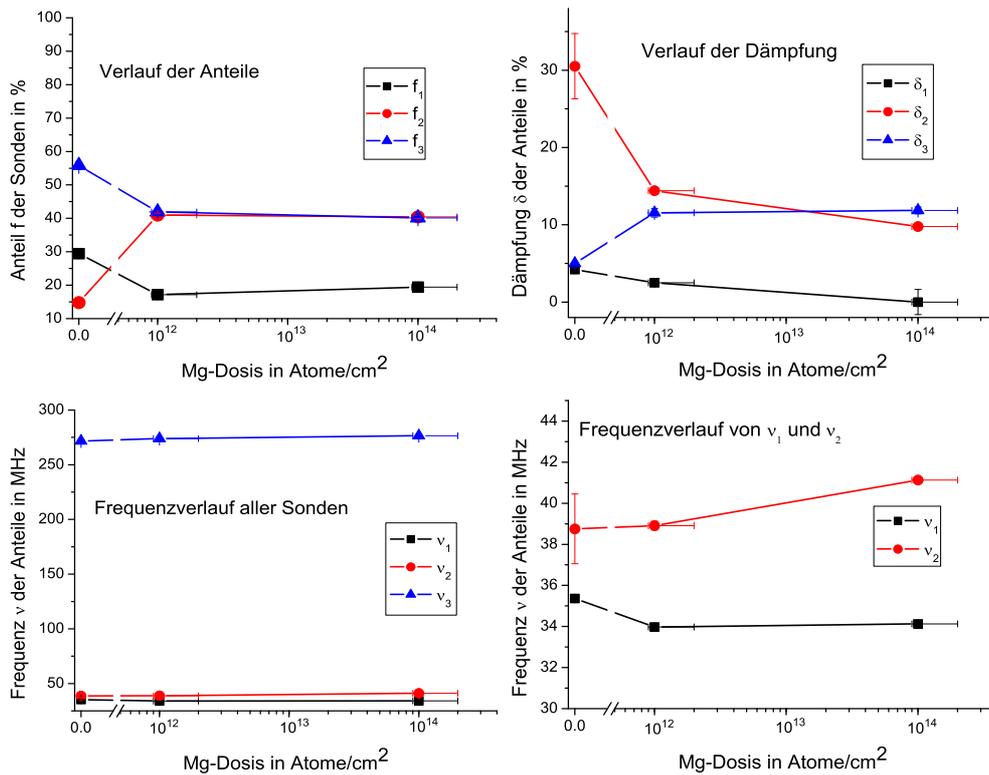


Abbildung 4.9: Mg-dosisabhängiger Verlauf der Parameter der R-Wert-Spektren. Alle Proben wurden zum Ausheilen der Gitterschäden für 2 min auf 1273 K erhitzt. Die Messungen erfolgten bei 473 K unter Stickstoffatmosphäre im PAC-Ofen in direktem Anschluss an die in Abschnitt 4.2.1 dargestellten Raumtemperaturmessungen. Die zur ungestörten Sondenumgebung gehörenden Parameter sind durch schwarze Quadrate gekennzeichnet. Die roten Kreise gehören zu den Sonden mit einer Störung in weiterer Umgebung. Mit blauen Dreiecken sind die Parameter dargestellt, bei denen sich ein Defekt auf dem nächsten Gitterplatz in Richtung der \hat{c} -Achse zur Sonde befindet.

4.2.3 Diskussion

Wie man in Abschnitt 4.2.1 sieht, wurde in drei Proben eine Mg-Dosis von $10^{14} \frac{\text{Atome}}{\text{cm}^2}$ implantiert. An ihnen kann man deutlich sehen, dass die Parameter trotz gleicher Probenbehandlung variieren können. Ein Grund dafür liegt in der Implantation. Eine Dosis ist nur mit einem Fehler von etwa $\pm 10\%$ reproduzierbar. Desweiteren können Schwankungen in der Probendicke für diesen Effekt verantwortlich sein. Laut Herstellerangaben kann eine mit $0,5 \mu\text{m}$ Dicke ausgezeichnete Probe eine tatsächliche Dicke zwischen $0,2 \mu\text{m}$ und $1 \mu\text{m}$ aufweisen. Daher sind auch die Abweichungen der Parameter im Verlauf der dosisabhängigen Messreihe bei Raumtemperatur bis zu dieser Dosis mit Vorsicht zu betrachten. Die Problematik der Ungenauigkeit in der Schichtdicke kann selbstverständlich auch auf die Referenzwerte zutreffen, die von einer $0,5 \mu\text{m}$ dicken AlN-Probe ohne Mg stammen.

Der für AlN typische Akzeptor Mg wurde als 2-wertiges Atom in Konkurrenz zu dem ebenfalls 2-wertigen Isotop ^{111}Cd eingesetzt. So sollte überprüft werden, ob der Defekt durch Coulombwechselwirkung an ^{111}Cd koppelt und somit negativ ist. In dem Fall wären deutliche Änderungen der einzelnen Anteile zu erwarten gewesen. Die Parameter weisen jedoch nur geringe relative Abweichungen bis einschließlich der Proben mit einer Mg-Dosis von $10^{14} \frac{\text{Atome}}{\text{cm}^2}$ auf. Daraus lässt sich schließen, dass Mg bei Raumtemperatur in $0,5 \mu\text{m}$ dickem AlN auf Saphir keinen oder nur einen geringfügigen Einfluss auf den untersuchten Defekt des Anteils 3 hat. Folglich koppelt der Defekt bei Raumtemperatur nicht an Magnesium und somit auch nicht an ^{111}Cd .

Die Fit-Parameter des R-Wert-Spektrums der Probe mit einer Mg-Dosis von $10^{15} \frac{\text{Atome}}{\text{cm}^2}$ (s. Tabelle 4.2) weisen hingegen einen deutlichen Anstieg des Anteils der Sonden auf, die sich in ungestörter Gitterumgebung befinden. Dies ließe zunächst vermuten, dass der Kristall bei dieser Probe weniger Schäden und Defekte hat. Betrachtet man jedoch die Dämpfung, sieht man, dass sie für die Frequenz des ungestörten Anteils deutlich steigt. Dies bedeutet, dass der Kristall bei einer Dosis von $10^{15} \frac{\text{Atome}}{\text{cm}^2}$ soviel Mg enthält, dass das Gitter amorphisiert wurde. Dies wird auch deutlich am zugehörigen R-Wert-Spektrum der Probe (s. Abbildung 4.6), welches Ähnlichkeiten zu einem typischen Spektrum direkt nach der Implantation aufweist, wenn noch alle durch die Implantation entstandenen Gitterschäden vorhanden sind. Dieses Verhalten verwundert nicht, wenn man sich vor Augen führt, dass diese Mg-Dosis etwa dem Tausendfachen einer typischen ^{111}In -Implantationsdosis entspricht und im Implantationspeak (s. Abschnitt 3.1) eine Mg-Konzentration von etwa $2^0/_{00}$ verursacht. Dennoch wurde bewusst eine Messreihe bis zu einer Dosis aufgenommen, die den Kristall amorphisiert. Denn so konnte gewährleistet werden, dass der Mg-Anteil in der Probe nicht zu gering war, um eine Konkurrenzsituation zu ^{111}Cd zu schaffen.

Interessant ist der Vergleich zu den Messungen bei 473 K (s. Abbildung 4.9).

Hier zeigt sich deutlich eine Annäherung von Anteil 2 und Anteil 3. Auch die Dämpfungen der zugehörigen Frequenzen nähern sich aneinander an. Die Frequenzen selbst bleiben jedoch nahezu unverändert. Das Frequenzverhalten spricht dafür, dass die gleichen Störungen auf den gleichen Plätzen wie bei AlN ohne Mg vorhanden sind. Jedoch befinden sich ab einer Mg-Dosis von $10^{12} \frac{\text{Atome}}{\text{cm}^2}$ eine gleiche Anzahl der Sonden in unmittelbarer wie in weiterer Umgebung eines Defektes. Das Sinken der Dämpfung des zweiten Anteils zeigt eine geringere Verteilung der EFGs an. Der Anstieg der dritten Dämpfung spricht dagegen für eine breitere Verteilung der EFGs der Sonden des Defektanteils. Der ungestörte Anteil ist gleichbleibend als ungedämpft anzusehen.

Die Veränderung der Anteile und Dämpfungen entsprechen nicht dem bei Raumtemperatur beobachteten Verhalten von AlN mit Magnesium. Die thermische Energie bei 473 K reicht anscheinend aus, um die Mobilität der Defekte im Kristall zu erhöhen. Diesbezüglich sei auch auf das nicht reversible Verhalten von AlNMg bei Ofenmessung verwiesen (s. B), welches an einer Probe mit Mg-Dosis von $10^{14} \frac{\text{Atome}}{\text{cm}^2}$ aufgenommen wurde. Es handelt sich dabei um dieselbe Probe, die auch für die Darstellung der Mg-dosisabhängigen Raumtemperaturmessung wie auch der 473 K-Ofenmessung herangezogen wurde.

Allerdings ist zu bemerken, dass zum direkten detaillierten Vergleich mit vorherigen temperaturabhängigen Messungen nur Werte vorliegen, die an $3,5 \mu\text{m}$ dickem AlN aufgenommen wurden. Daher ist es durchaus möglich, dass der hier benannte Effekt dem Einfluss der geringeren Schichtdicke und deren Schwankungen und weniger dem Mg-Anteil zuzuschreiben ist.

4.3 Messungen an AlN mit ^{115}In

Als weitere Methode den Defektanteil in AlN zu beeinflussen wurde stabiles ^{115}In mit einer Dosis von etwa $2 \times 10^{13} \frac{\text{Atome}}{\text{cm}^2}$ und $2 \times 10^{14} \frac{\text{Atome}}{\text{cm}^2}$ in Proben implantiert, die mit einer AlN-Schichtdicke von $3,5 \mu\text{m}$ auf Saphir-Substrat aufgewachsen waren. Die Implantation wurde unter einem Winkel von 12° mit einer Energie von 160 keV durchgeführt. Ein simuliertes Implantationsprofil findet sich in Abschnitt 3.1. Um die Proben mit der Methode der gestörten Winkelkorrelation untersuchen zu können, wurde wie bei allen Proben zusätzlich radioaktives ^{111}In implantiert. In den folgenden Tabellen und Diagrammen dieses Kapitels wird jeweils die angenommene Gesamt-In-Dosis angegeben. Dadurch sind auch die Proben, die nicht mit ^{115}In implantiert wurden mit einer In-Dosis dargestellt.

Nach der Implantation wurde die Probe, die nicht mit ^{115}In implantiert wurde, bei 1173 K für 2 min unter Stickstofffluss und Verwendung eines Proximity Caps (s. Abschnitt 3.2) ausgeheilt. Es handelt sich um die bereits in 4.1.1 dargestellte Probe, die hier als Referenz dienen soll. Die beiden mit ^{115}In implantierten Proben wurden unter Stickstofffluss mit Proximity Cap für 2 min bei 1273 K ausgeheilt. Es erfolgten anschließend Messungen der R-Wert-Spektren bei Raumtemperatur,

danach bei 1073 K unter Vakuum im PAC-Ofen (s. Abschnitt 3.3). Da Messungen, die bei 1073 K an AlN gemacht wurden, weder in den hier vorgenommenen Spektren noch in denen aus vorigen Messungen an 3,5 μm dickem AlN, einen deutlich ausgeprägten Defektanteil aufweisen, werden diese Spektren hier nicht ausführlich behandelt. Sie sind aber für eine vollständige Betrachtung im Anhang C angefügt. Im Anschluss an die PAC-Untersuchungen wurden an der Probe mit der ^{115}In -Dosis von $2 \times 10^{14} \frac{\text{Atome}}{\text{cm}^2}$ von Katharina Lorenz RBS-Messungen durchgeführt. Die Ergebnisse sind in Abschnitt 4.3.2 dargestellt.

4.3.1 Messungen bei Raumtemperatur

Die nach dem Ausheilen der Gitterschäden bei Raumtemperatur aufgenommenen R-Wert-Spektren finden sich in Abbildung 4.10. Bereits hier ist deutlich zu erkennen, dass die schnelle Defektfrequenz mit steigender In-Dosis weniger stark ausgeprägt ist.

Noch klarer wird das Verhalten, wenn man die Fitparameter der R-Wert-Spektren, die in Tabelle 4.4 zusammengetragen sind, im Verlaufsdiagramm (s. Abbildung 4.11) betrachtet. Dort ist der Verlauf der einzelnen Parameter in Abhängigkeit der In-Gesamtdosis dargestellt.

Der ungestörte Sondenanteil bleibt zunächst konstant, sinkt aber bei einer In-Dosis von $2,5 \times 10^{14} \frac{\text{Atome}}{\text{cm}^2}$ von 20% auf unter 10%, also relativ zum Anfangswert um mehr als 50%. Der Defektanteil sinkt im gesamten Verlauf auf 36% seines Startwertes. Die Sonden, die in diesen beiden Anteilen verlorengehen, finden sich im Anstieg des Anteils, der eine Störung in weiterer Sondenumgebung hat, wieder. Dieser steigt bis auf 76% bei der höchsten hier untersuchten In-Dosis.

Die Frequenzen der Anteile 1 und 2 bleiben nahezu konstant. Sie weisen mit einer relativen Abweichung von unter 8% allenfalls eine leicht sinkende Tendenz auf. Die Defektfrequenz startet bei einem Wert von etwa 312 MHz und erreicht bei der höchsten In-Dosis 266 MHz. Dies entspricht einem Absinken von 15% relativ zum Referenzwert.

Betrachtet man die Dämpfung, so stellt man fest, dass diese für den ungestörten Anteil so gering ist, dass dessen Frequenz als ungedämpft angesehen werden kann. Die Dämpfung der zweiten Frequenz steigt leicht von etwa 13% auf knapp 18%. Die Dämpfung der schnellen Defektfrequenz sinkt zunächst, steigt danach aber auf etwa 27% an, also auf mehr als das Doppelte des Startwertes.

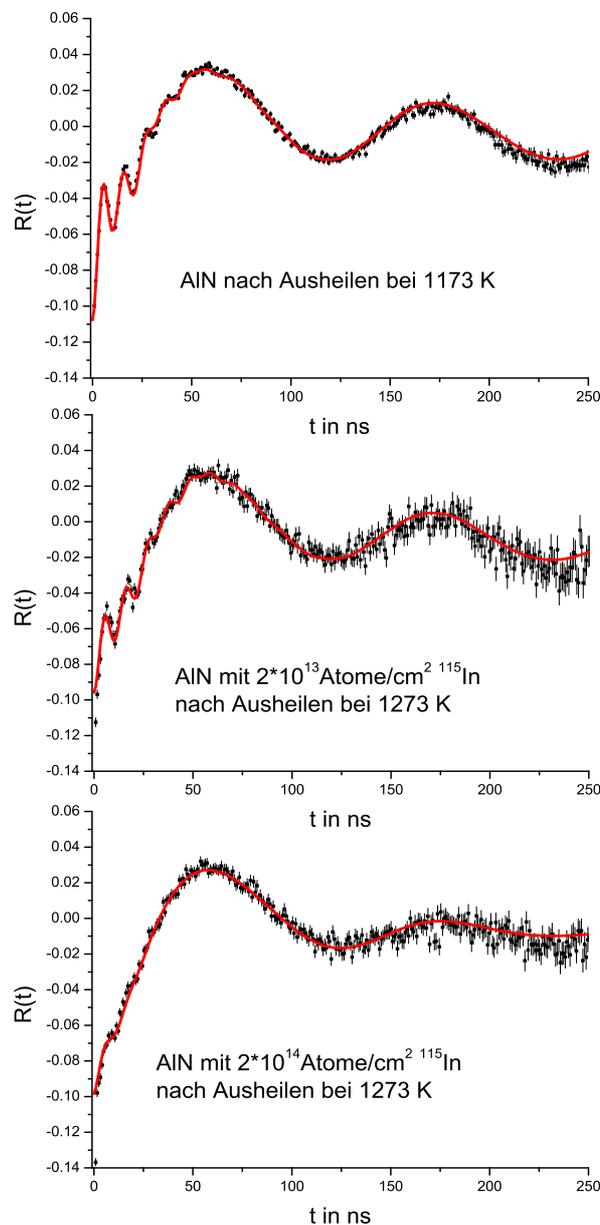


Abbildung 4.10: R-Wert-Spektren von $3,5 \mu\text{m}$ dicken AlN-Proben, gemessen bei Raumtemperatur. Im ersten Spektrum ist eine Probe ohne ^{115}In dargestellt. Sie wurde für 2 min bei 1173 K ausgeheilt. Darauf folgen Spektren der Proben mit einer ^{115}In -Dosis von $2 \times 10^{13} \frac{\text{Atome}}{\text{cm}^2}$ und von $2 \times 10^{14} \frac{\text{Atome}}{\text{cm}^2}$. Sie wurden für 2 min bei 1273 K ausgeheilt. Bemerkenswert ist, dass die schnelle Defektfrequenz im Spektrum mit der höchsten In-Dosis kaum ausgeprägt ist.

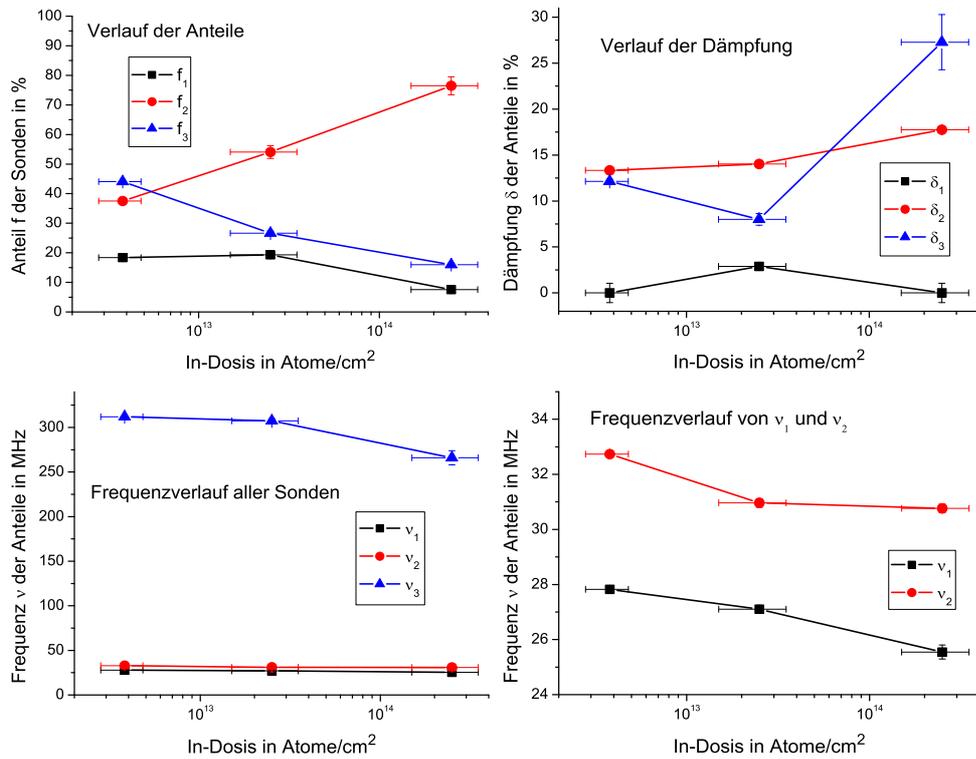


Abbildung 4.11: In-dosisabhängiger Verlauf der Parameter der R-Wert-Spektren. Die erste Probe wurde zum Ausheilen der Gitterschäden für 2 min auf 1173 K erhitzt. Die beiden anderen Proben wurden für 2 min bei 1273 K ausgeheilt. Die Messungen erfolgten bei Raumtemperatur. Deutlich ist das Absinken des Defektanteils zu erkennen. Die zur ungestörten Sondenumgebung gehörenden Parameter sind durch schwarze Quadrate gekennzeichnet. Die roten Kreise gehören zu den Sonden mit einer Störung in weiterer Umgebung. Mit blauen Dreiecken sind die Parameter dargestellt, bei denen sich ein Defekt auf dem nächsten Gitterplatz in Richtung der \hat{c} -Achse zur Sonde befindet.

Dosis [$\frac{\text{Atome}}{\text{cm}^2}$]	$3,8 \times 10^{12}$	$2,5 \times 10^{13}$	$2,5 \times 10^{14}$
f_1 [%]	18,4(2)	19,4(9)	7,8(5)
ν_1 [MHz]	27,8(3)	27,1(3)	25,5(3)
δ_1 [%]	0(1)	2,9(3)	0(1)
f_2 [%]	37,5(5)	54(2)	76(3)
ν_2 [MHz]	32,7(3)	31,0(3)	30,8(3)
δ_2 [%]	13,3(3)	14,0(3)	17,8(2)
f_3 [%]	44,1(5)	26,6(8)	16,2(5)
ν_3 [MHz]	312(3)	307(3)	266(7)
δ_3 [%]	12,1(2)	8,0(6)	27(3)

Tabelle 4.4: Parameter der R-Wert-Spektren von AlN-Proben mit $3,5 \mu\text{m}$ Dicke, die mit unterschiedlichen In-Dosen implantiert wurden. Angegeben ist die In-Gesamtimplantationsdosis. Daher hat auch die Vergleichsprobe, die nicht mit ^{115}In implantiert wurde, eine In-Dosis von $3,8 \times 10^{12} \frac{\text{Atome}}{\text{cm}^2}$. Die Messungen wurden nach zweiminütigem Ausheilen bei 1173 K (Probe ohne ^{115}In), bei 1273 K (Proben mit ^{115}In) in Raumtemperatur durchgeführt.

4.3.2 RBS-Messung

Der Gesamtgehalt an Indium in der Probe mit der Dosis $2 \times 10^{14} \frac{\text{Atome}}{\text{cm}^2}$ ist groß genug, um durch eine RBS-Channelling-Messung eine Gitterplatzbestimmung durchzuführen. Die Messungen wurden von Katharina Lorenz am Instituto Tecnológico e Nuclear in Portugal durchgeführt (s. Abbildung 4.12). Es wurden zunächst RBS-Spektren der Probe unter verschiedenen Verkippungswinkeln relativ zur $\langle 0001 \rangle$ -Achse und zur $\langle \bar{2}133 \rangle$ -Achse des Kristalls angefertigt. Da die Energien der rückgestreuten Ionen den verschiedenen Atomen im Kristall zugeordnet werden, konnten Energiefenster aus dem Al- und dem In-Bereich festgelegt werden. Die Anzahl der Ereignisse in diesen Fenstern wurde auf die Anzahl der Ereignisse im entsprechenden Fenster eines Random-Spektrums (s. Abschnitt 2.7) normiert und anschließend gegen den Verkippungswinkel zur Kristallachse, unter dem das RBS-Spektrum aufgenommen wurde, aufgetragen. Jeder Punkt entspricht also dem normierten Wert aus einem ausgewählten Energiefenster eines RBS-Spektrums, welches unter dem zugehörigen Verkippungswinkel zur jeweils im Bild angegebenen Kristallachse aufgenommen wurde.

Im Diagramm sieht man, dass die Werte für Indium der gleichen Charakteristik wie der für Aluminium entsprechen. Daraus folgt, dass etwa 90% des Indiums substitutionell auf einem Al-Platz im Gitter eingebaut werden. Der etwas engerer Verlauf beim Indium ist wahrscheinlich auf den größeren kovalenten Radius von Indium im Vergleich zu Aluminium zurückzuführen. Für Indium beträgt er 144 pm, für Aluminium 118 pm [AYL81].

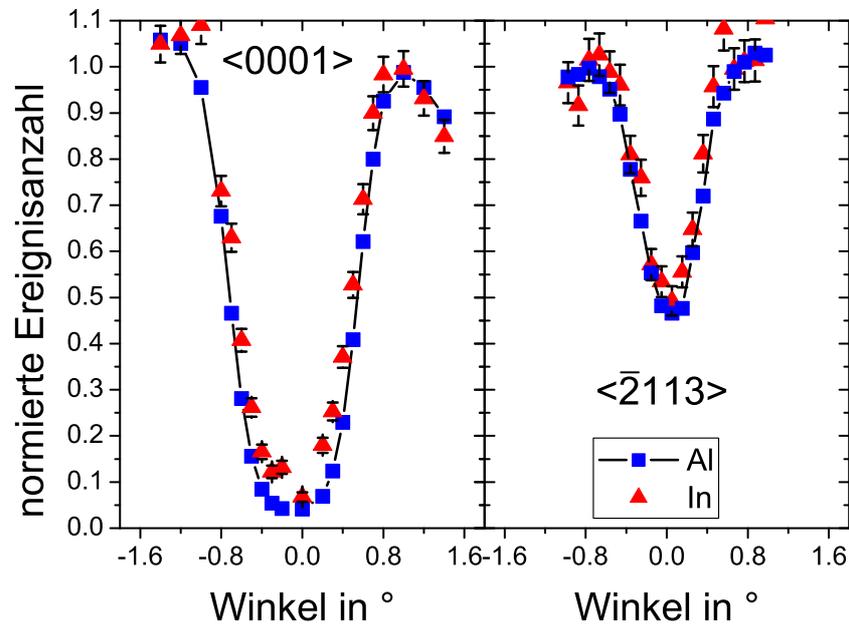


Abbildung 4.12: Diagramm aus RBS-Spektren zur Gitterplatzbestimmung von Indium in AlN. Dargestellt ist die Anzahl der Ereignisse in einem ausgewählten Energiefenster, normiert auf Werte aus Messungen, die nicht in Kristallachsenrichtung durchgeführt wurden (Random-Spektrum, s. Abschnitt 2.7), gegen den Verkippungswinkel relativ zur betrachteten Kristallachse. Jeder Messpunkt entspricht einem RBS-Spektrum. Für die blauen Punkte wurde ein Energiefenster im Al-Bereich der rückgestreuten Ionen gewählt, für die roten Punkte ein Fenster im In-Bereich.

4.3.3 Diskussion

Wie bereits in Abschnitt 4.1 erwähnt, kann die Ausheiltemperatur von 1173 K statt 1273 K bei der Referenzprobe zu leicht veränderten Parametern der R-Wert-Spektren führen. Dieser Einfluss ist aber bei Weitem nicht groß genug, um die hier auftretenden Veränderungen zu erklären. Da ansonsten keine Vergleichsmessung einer Probe von $3,5 \mu\text{m}$ zur Verfügung stand und aufgrund der geringen Relevanz einer leichten Abweichung für den hier beobachteten Verlauf, kann die Messung dennoch zum Vergleich dienen.

Besonderes Augenmerk bei der Betrachtung der Ergebnisse dieses Abschnitts ist auf das Absinken des Defektanteils mit steigender In-Dosis zu richten. Dies entspricht genau dem erwarteten Verhalten unter der Annahme, dass der beobachtete Defekt an Indium koppelt: Die zusätzlichen In-Atome konkurrieren mit den In-

Sonden um den Defekt. Daher koppeln weniger von ihnen direkt an radioaktives ^{111}In und tauchen somit im Defektanteil nicht mehr auf. Da die Defekte jedoch in der Probe erhalten bleiben, befinden sie sich in der weiteren Gitterumgebung der Sonde. Dies erklärt den Anstieg des zweiten Anteils mit steigender In-Dosis. Das Ansteigen der Dämpfung der Frequenzen lässt sich vermutlich als Reaktion des Kristallgitters auf den vermehrten Einbau der großen In-Atome interpretieren. In ist mit einem kovalenten Radius von 144 pm das größte in den Kristall eingebundene Atom.

Aus RBS-Messungen folgte, dass das implantierte Indium zu etwa 90% substitutionell auf einem Al-Gitterplatz im Kristall eingebaut wird.

Abschließend lässt sich also aus den Messergebnissen folgern, dass der untersuchte Defekt an Indium koppelt, welches sich in etwa 90% der Fälle auf einem Al-Gitterplatz befindet.

4.4 Injektion von Stickstoffleerstellen

Aus den Resultaten vorangegangener Messungen (s. [SCH07], [PEN07]) entstand die Hypothese, dass es sich bei dem hier in AlN untersuchten Defekt, der in weniger ausgeprägter Form auch in GaN zu beobachten ist, um eine Stickstoffleerstelle handelt (s. [SPV]). Um dies zu überprüfen, wurde im Rahmen dieser Arbeit die Ausdiffusion atomaren Stickstoffs aus der untersuchten Probe forciert. Anschließend wurden PAC-Messungen der R-Wert-Spektren bei Raumtemperatur durchgeführt, wie auch bei 473 K unter Stickstofffluss im PAC-Ofen (s. Abschnitt 3.3). Durch Untersuchungen des Ausheilverfahrens von AlN und GaN ist bereits bekannt, dass bei hohen Temperaturen atomarer Stickstoff aus der Probe diffundiert (s. [LOR02]). Um diesen Vorgang zu minimieren, wird das Ausheilen der Proben bei Stickstofffluss unter Verwendung eines Proximity Caps durchgeführt (s. Abschnitt 3.2). Da eine erhöhte Anzahl an Stickstoffleerstellen im vorliegenden Fall aber erwünscht war, wurde die Probe nach einem Ausheilen der durch die Implantation entstandenen Gitterschäden für jeweils 5 bis 10 min auf die Temperaturen 1073 K, 1223 K, 1273 K, 1373 K und 1473 K gebracht. Dies geschah im Vakuum ohne Proximity Cap. Nach jedem Temperaturschritt wurde das R-Wert-Spektrum der Probe bei Raumtemperatur gemessen.

Da das Verhalten des Defektanteils besonders deutlich bei Messungen unter 473 K zu erkennen ist, wurden nach dem Ausheilen der Probe, sowie nach dem Erhitzen auf 1223 K, 1373 K und 1473 K im Anschluss an die Raumtemperaturmessungen R-Wert-Spektren bei 473 K unter Stickstofffluss im PAC-Ofen aufgenommen.

Für diese Untersuchungen wurde eine 0,5 μm dicke AlN-Probe mit einer Mg-Dosis von $10^{14} \frac{\text{Atome}}{\text{cm}^2}$ verwendet. Sie hatte nach Ende der Mg-dosisabhängigen Messungen (s. Abschnitt 4.2) noch ausreichend Aktivität, um weiter vermessen zu werden. Zusätzlich zeichnete sich schon ab, dass ein Mg-Anteil keinen wesentlichen Einfluss auf den untersuchten Defekt hat.

4.4.1 Messungen bei Raumtemperatur

Die folgenden Messungen wurden bei Raumtemperatur im PAC-Ofen aufgenommen. Die ermittelten R-Wert-Spektren finden sich in Abbildung 4.13. Um die Parameter der Spektren miteinander vergleichen zu können, wurden vor der ersten Messung die durch Implantation entstandenen Gitterschäden 2 min bei 1273 K unter Stickstofffluss mit Proximity Cap ausgeheilt. Als Referenzspektrum dient das anschließend bei Raumtemperatur aufgenommene R-Wert-Spektrum. Die Parameter der angefitteten Kurven sind in Tabelle 4.5 zusammengestellt. Sie bilden die Grundlage für den in Abbildung 4.14 dargestellten Verlauf der Parameter abhängig von der Behandlungstemperatur.

Behandlungstemperatur im Vakuum [K]	Referenz- messung	1073	1173	1223	1273
f_1 [%]	19,0(4)	18(2)	20,0(7)	20(1)	20(1)
ν_1 [MHz]	32,99(6)	33,9(4)	33,5(3)	33,9(3)	34,0(3)
δ_1 [%]	0(2)	0(9)	0(3)	0(5)	0(5)
f_2 [%]	34,7(8)	36(4)	34(1)	34(2)	33(2)
ν_2 [MHz]	40,0(4)	41,0(7)	40,6(4)	41,8(4)	41,1(4)
δ_2 [%]	8,7(3)	10(1)	8,7(5)	7,5(9)	10(1)
f_3 [%]	46,3(7)	46(3)	46(1)	46(2)	47(2)
ν_3 [MHz]	353(4)	348(21)	353(11)	328(22)	359(13)
δ_3 [%]	28(2)	25(7)	33(3)	36(7)	24(3)
Behandlungstemperatur im Vakuum [K]	1373	1473			
f_1 [%]	14,8(3)	11,9(7)			
ν_1 [MHz]	33,3(3)	34,9(3)			
δ_1 [%]	0(2)	0(6)			
f_2 [%]	32,1(8)	34,1(9)			
ν_2 [MHz]	40,0(4)	40,3(4)			
δ_2 [%]	17,6(7)	27(2)			
f_3 [%]	53,1(9)	54(2)			
ν_3 [MHz]	337(3)	329(5)			
δ_3 [%]	22,3(9)	19(1)			

Tabelle 4.5: Parameter der R-Wert-Spektren für AlN von 0,5 μm Dicke mit einer Mg-Dosis von $10^{14} \frac{\text{Atome}}{\text{cm}^2}$. Nach einem zweiminütigen Ausheilen wurde das erste Spektrum als Referenzspektrum aufgenommen. Danach wurde die Probe für jeweils 5 bis 10 min auf 1073 K, 1173 K, 1223 K, 1273 K, 1373 K und 1473 K im Vakuum ohne Proximity Cap gebracht. Nach jedem Temperaturschritt erfolgte eine Messung des R-Wert-Spektrums. Alle Messungen fanden bei Raumtemperatur statt.

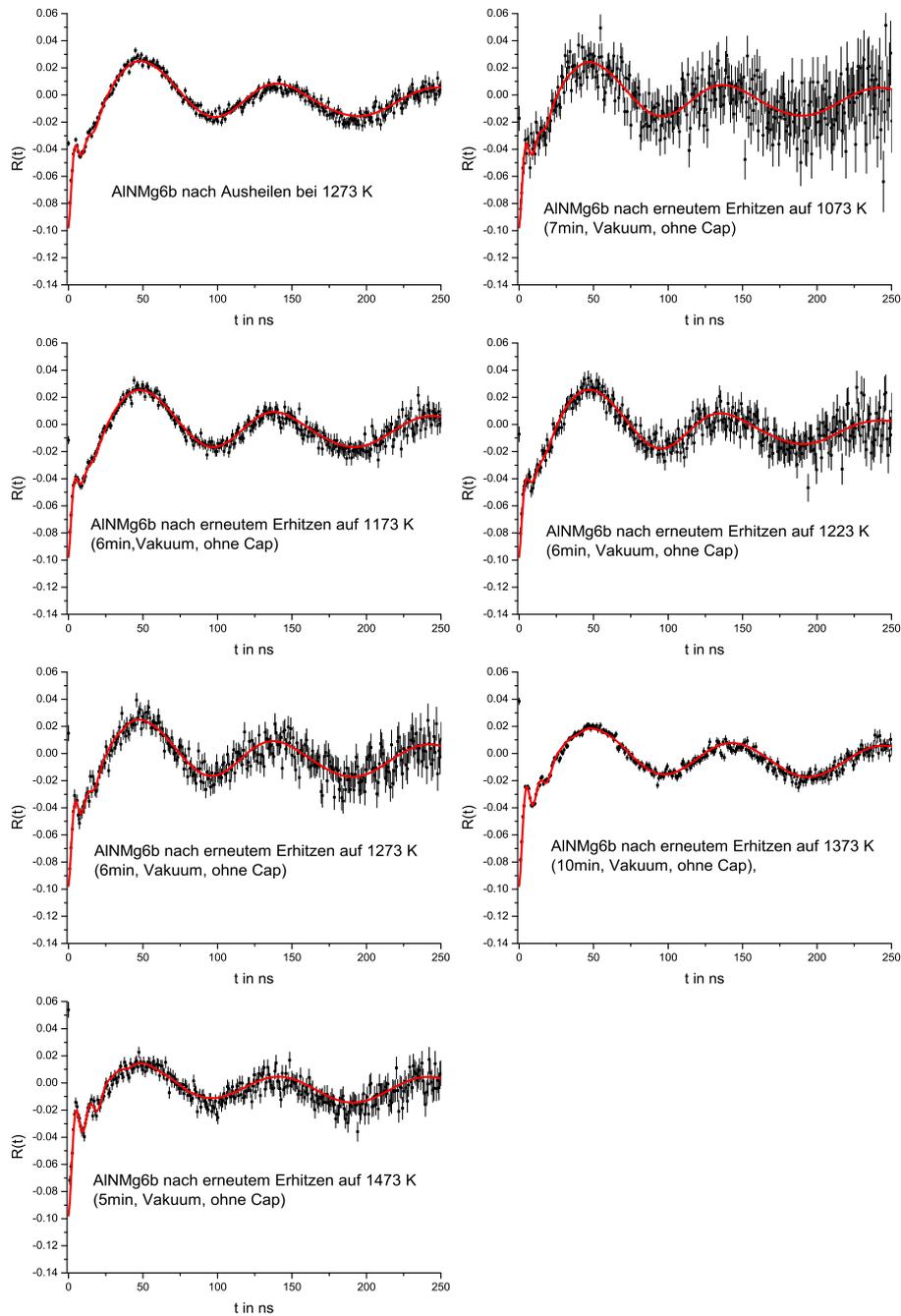


Abbildung 4.13: R-Wert-Spektren einer $0,5 \mu\text{m}$ dicken AlN-Probe mit einer Mg-Dosis von $10^{14} \frac{\text{Atome}}{\text{cm}^2}$. Die Probe wurde zunächst bei 1273 K unter Stickstofffluss ausgeheilt. Anschließend wurde ein R-Wert-Spektrum bei Raumtemperatur (RT) gemessen. Danach wurde die Probe für 5 bis 10 min im Vakuum auf die Temperaturen 1073 K , 1173 K , 1223 K , 1273 K , 1373 K und 1473 K gebracht. Nach jeder Temperaturbehandlung wurde ein R-Wert-Spektrum bei Raumtemperatur aufgenommen.

Bei Betrachtung der Anteile sieht man keine wesentlichen Änderungen bis zu einer Temperatur von 1273 K. Anteil 2 zeigt auch darüber hinaus bis einschließlich nach dem Erhitzen auf 1473 K einen nahezu konstanten Verlauf mit einer maximalen relativen Abweichung von 7% zum Referenzwert.

Ab einer Behandlungstemperatur von 1373 K steigt der Defektanteil von einem Wert von 47% bei 1273 K auf 54% bei 1473 K Behandlungstemperatur. Der Anstieg dieses Anteils geschieht auf Kosten des Anteils mit ungestörter Sondenumgebung. Er sinkt mit steigender Behandlungstemperatur von etwa 20% auf etwa 12%.

Die Dämpfung des ungestörten Anteils ist in jedem der R-Wert-Spektren der Abbildung 4.13 vernachlässigbar klein. Die Frequenz des Anteils 1 ist damit als ungedämpft anzusehen. Deutlich ist der Anstieg der Dämpfung des zweiten Anteils ab 1273 K zu erkennen. Dort liegt sie noch bei einem Wert von 10% bis auf 27% nach einer Behandlung bei 1473 K. Die Dämpfung der Defektfrequenz steigt von etwa 25% bei 1073 K über 33% bei 1173 K auf 36% bei 1223 K Behandlungstemperatur. Danach fällt sie auf 24% zurück und sinkt weiter bis auf einen Wert von 19% bei 1473 K.

Der Frequenzverlauf aller Anteile ändert sich im Rahmen der Fehler kaum. Für Frequenz 1 ist allenfalls eine leicht steigende Tendenz zu beobachten. Der relative Unterschied zwischen dem Referenzwert von 33 MHz für Frequenz 1 und dem Endwert von etwa 35 MHz nach Erhitzen auf 1473 K beträgt etwa 6%. Für Frequenz 2 liegen sowohl der Referenz- wie auch der letzte Wert der Messreihe bei 40 MHz. Die Defektfrequenz hat einen Startwert von 353 MHz und liegt nach Erhitzen auf 1473 K bei 329 MHz. Die entspricht einem relativen Absinken von knapp 7% zum Referenzwert.

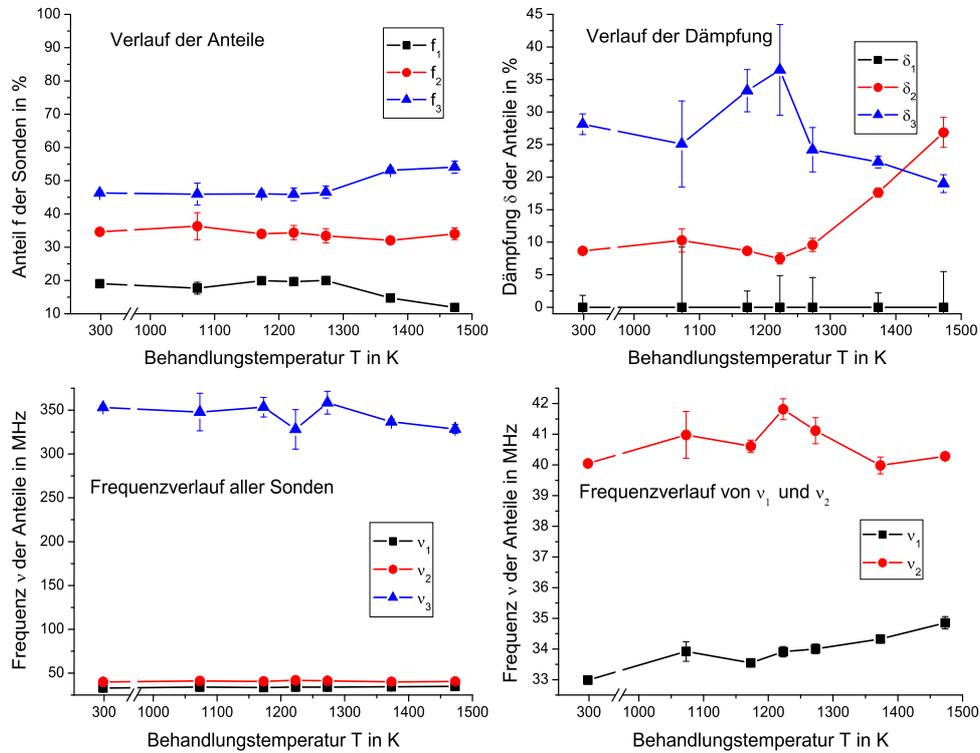


Abbildung 4.14: Verlauf der Parameter der R-Wert-Spektren aus Abb. 4.13 gemessen bei Raumtemperatur an einer $0,5 \mu\text{m}$ dicken AlN-Probe mit einer Mg-Dosis von $10^{14} \frac{\text{Atome}}{\text{cm}^2}$. Die Parameter des Referenzspektrums, das nach Ausheilen bei 1273 K aufgenommen wurde, sind bei 293 K eingezeichnet. Darauf folgte ein Erhitzen der Probe für jeweils 5 bis 10 min auf die Temperaturen zwischen 1073 K und 1473 K im Vakuum. Die Parameter der anschließenden Messungen (s. Tabelle 4.5) bilden die Grundlage für den gegen die Behandlungstemperatur dargestellten Verlauf. Die zur ungestörten Sondenumgebung gehörenden Parameter sind durch schwarze Quadrate gekennzeichnet. Die roten Kreise gehören zu den Sonden mit einer Störung in weiterer Umgebung. Mit blauen Dreiecken sind die Parameter dargestellt, bei denen sich ein Defekt auf dem nächsten Gitterplatz in Richtung der \hat{c} -Achse zur Sonde befindet.

4.4.2 Messungen bei 473 K

Im direkten Anschluss an die Raumtemperaturmessungen nach einem 5 bis 10 minütigen Erhitzen der Probe auf 1223 K, 1373 K und 1473 K wurden Messungen bei 473 K im PAC-Ofen unter Stickstoffatmosphäre aufgenommen. Als Referenz-

messung wurde vor Beginn des Verfahrens zur Injektion von Stickstoffleerstellen ein R-Wert-Spektrum der Probe erstellt. Es wurde nach dem Ausheilen der Probe bei 1273 K im Anschluss an die Raumtemperaturmessung, die die Referenzwerte für den vorangegangenen Messteil liefert (s. Abschnitt 4.4.1), bei 473 K aufgenommen. Die Spektren finden sich in Abbildung 4.15. Ihre Parameter sind in Tabelle 4.6 zusammengefasst. Aus ihnen ergibt sich der in Abbildung 4.16 dargestellte Verlauf.

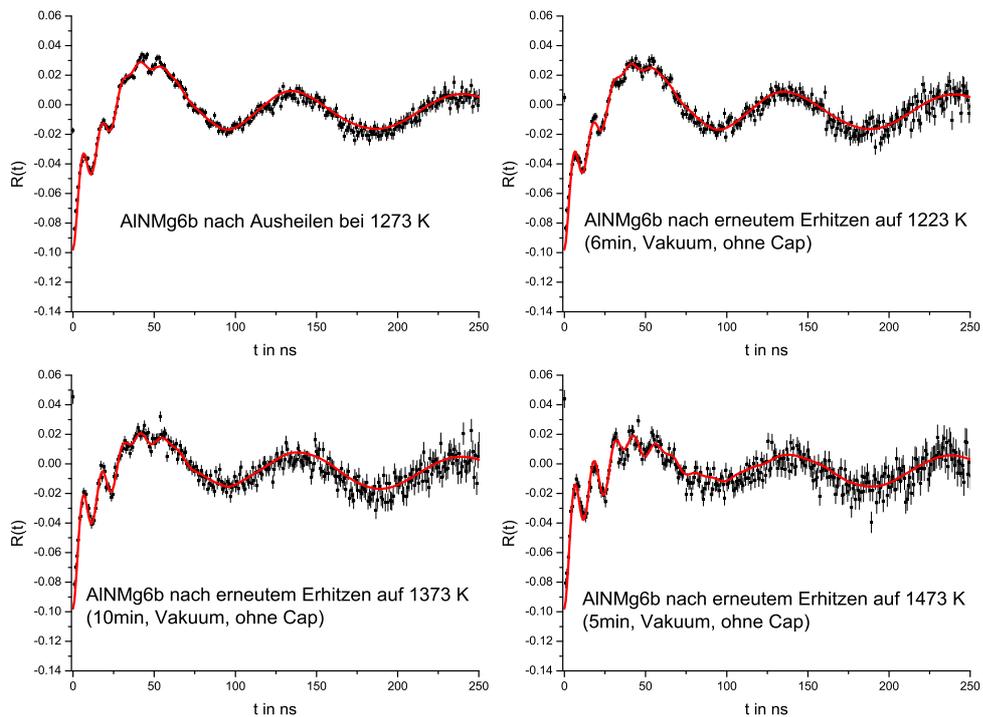


Abbildung 4.15: R-Wert-Spektren einer $0,5 \mu\text{m}$ dicken AlN-Probe. Diese wurde zunächst bei 1273 K unter Stickstofffluss ausgeheilt. Im Anschluss an die Raumtemperaturmessungen (s. Abschnitt 4.4.1) wurden bei der nicht im Vakuum erhitzten Probe, nach einem Erhitzen auf 1223 K, nach dem auf 1373 K und nach dem auf 1473 K R-Wert-Spektren bei 473 K unter Stickstofffluss PAC-Ofen aufgenommen (s. 3.3).

Wie bei den Raumtemperaturmessungen sinkt auch hier der Anteil der ungestörten Sonden im Verlauf der Messreihe während der zweite Anteil der Sonden nahezu konstant bleibt und der Defektanteil um etwa den Anteil steigt, um den Anteil 1 absinkt.

Die Dämpfung der Frequenz des ungestörten Anteils liegt im Messverlauf im als ungedämpft zu betrachtenden Bereich um 0%. Es ist eine sinkende Tendenz in der Dämpfung des Defektanteils zu erkennen. Sie startet bei etwa 12% und sinkt im Verlauf auf etwa 9%, was einem Absinken um 25% des Referenzwertes entspricht. Besonders deutlich ist der Anstieg der Dämpfung der zweiten Frequenz bei 1373 K auf 26% und bei 1473 K auf 36%, wobei der Startwert etwa 10% beträgt. Der Verlauf der Frequenzen ist auch hier nahezu konstant. Die relativen Abweichungen zu den jeweiligen Referenzwerten liegen im Bereich von 5% und darunter.

Behandlungstemperatur im Vakuum [K]	Referenz- messung	1223	1373	1473
f_1 [%]	19,5(4)	19,1(8)	17(1)	12,8(7)
ν_1 [MHz]	34,1(3)	34,29(8)	35,2(4)	35,3(4)
δ_1 [%]	0(2)	0(2)	2,4(2)	0,1(1)
f_2 [%]	40,4(5)	39,9(9)	36(2)	38,1(9)
ν_2 [MHz]	41,13(5)	41,4(4)	40,7(4)	43,2(9)
δ_2 [%]	9,8(3)	10,8(5)	26(1)	36(3)
f_3 [%]	40,1(6)	41,0(8)	47(1)	49,1(9)
ν_3 [MHz]	276(3)	277(3)	274(3)	268(3)
δ_3 [%]	11,9(5)	12,2(7)	11,0(6)	8,7(5)

Tabelle 4.6: Parameter der R-Wert-Spektren für AlN von 0,5 μm Dicke mit einer Mg-Dosis von $10^{14} \frac{\text{Atome}}{\text{cm}^2}$. Nach einem zweiminütigen Ausheilen wurde das erste Spektrum als Referenzspektrum bei 473 K unter Stickstoffatmosphäre im PAC-Ofen aufgenommen. Nach einem darauffolgenden Erhitzen im Vakuum ohne Proximity Cap wurden im Anschluss an die in Abschnitt 4.4.1 dargestellten Raumtemperaturmessungen nach 1223 K, 1373 K und 1473 K R-Wert-Spektren ebenfalls bei 473 K unter Stickstoffatmosphäre im Ofen aufgenommen.

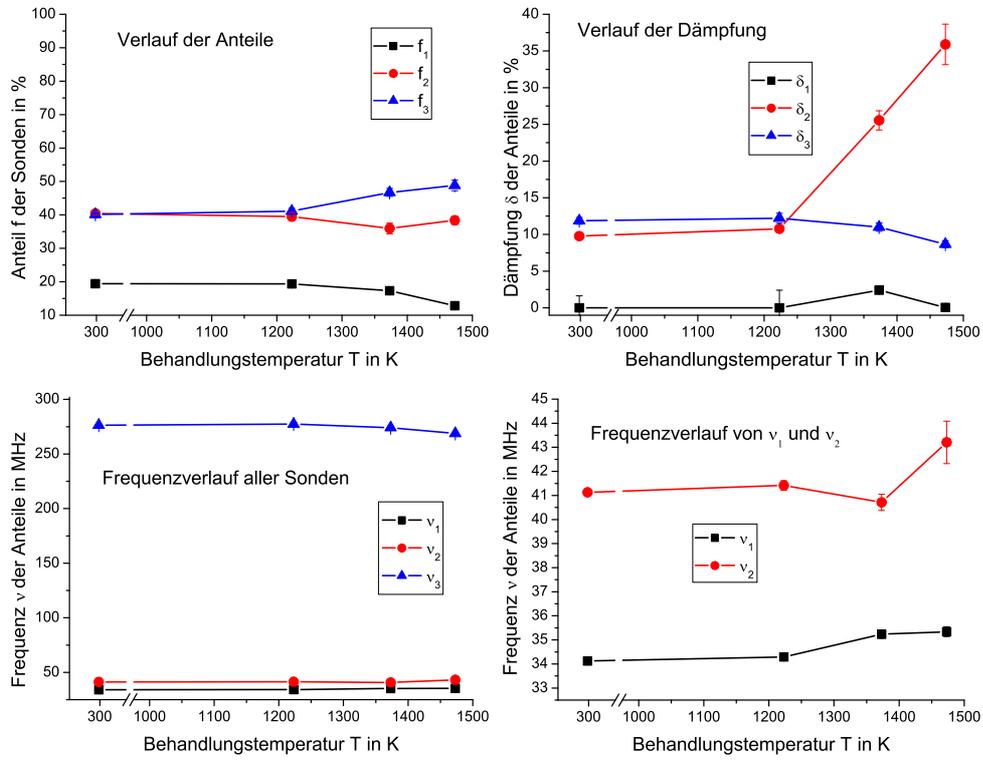


Abbildung 4.16: Verlauf der Parameter einer $0,5 \mu\text{m}$ dicken AlN-Probe mit einer Mg-Dosis von $10^{14} \frac{\text{Atome}}{\text{cm}^2}$. Aufgetragen sind die Parameter aus Tabelle 4.6 der R-Wert-Spektren in Abbildung 4.15. Sie wurden bei 473 K unter Stickstoffatmosphäre im PAC-Ofen (s. Abschnitt 3.3) gemessen. Wieder sind die zur ungestörten Sondenumgebung gehörenden Parameter durch schwarze Quadrate gekennzeichnet. Die roten Kreise gehören zu den Sonden mit einer Störung in weiterer Umgebung. Mit blauen Dreiecken sind die Parameter dargestellt, bei denen sich ein Defekt auf dem nächsten Gitterplatz in Richtung der \hat{c} -Achse zur Sonde befindet.

4.4.3 Diskussion

Betrachtet man zunächst die Messungen bei Raumtemperatur, so sieht man Abweichungen im Verlauf der dritten Frequenz, ihrer Dämpfung und der zweiten Frequenz. Diesbezüglich sei auf die in diesem Bereich größeren Fehler hingewiesen, die sich aus der vergleichsweise schlechteren Statistik bei Aufnahme der R-Wert-Spektren ergeben. Somit hat dieser Effekt eher messtechnische als physikalisch relevante Ursachen und ist daher vernachlässigbar.

Deutlich und nicht durch Fehlergrößen zu erklären ist jedoch der Anstieg des Defektanteils ab Behandlungstemperaturen oberhalb von 1273 K. Er geht einher mit dem Sinken des ungestörten Anteils. Dies entspricht dem erwarteten Verhalten der Anteile unter der Annahme, dass es sich bei dem Defekt um eine Stickstoffleerstelle handelt. Denn durch Erzeugung von zusätzlichen Stickstoffleerstellen wurde die Anzahl der Sonden mit einem Defekt in unmittelbarer Nachbarschaft erhöht, während sich weniger Sonden in ungestörter Umgebung befinden. Daraus folgt, dass durch das erzwungene Ausdiffundieren von Stickstoff die Anzahl der beobachteten Defekte steigt.

Die Dämpfung des Anteils der Sonden mit einem Defekt in weiterer Umgebung steigt ebenfalls oberhalb von 1273 K Behandlungstemperatur. Da dies bedeutet, dass es im zweiten Anteil der Sonden eine breitere Verteilung der EFGs gibt, lässt sich interpretieren, dass mit steigender Defektanzahl die Sonden des zweiten Anteils nicht einen sondern möglicherweise auch mehrere Defekte sehen. Das würde wiederum zu einer größeren Anzahl von Möglichkeiten führen, wie sich Defekte um eine Sonde des zweiten Anteils anordnen können, damit eine breitere Verteilung der elektrischen Feldgradienten bewirken, was sich in einer größeren Dämpfung äußert.

Aufgrund der Tatsache, dass die eine Messreihe bei Raumtemperatur und die andere bei 473 K durchgeführt wurde, unterscheiden sich natürlich die Werte der Referenzspektren (s. Abschnitt 4.1). Der weiter beobachtete Verlauf zeigt allerdings bei beiden Messreihen das gleiche Verhalten, wenn man davon absieht, dass in der Messreihe, die bei 473 K aufgenommen wurde, ein Absinken der Dämpfung der Defektfrequenz zu erkennen ist.

Die Messergebnisse beider Reihen sprechen also aus den oben genannten Gründen dafür, dass es sich bei dem untersuchten Defekt tatsächlich um eine Stickstoffleerstelle handelt.

Kapitel 5

Zusammenfassung

Die Gruppe-III-Nitride zeichnen sich durch eine große Bandlücke aus und durch die Tatsache, dass diese über die Zusammensetzung der verschiedenen Gruppe-III-Elemente vom infraroten über alle Farben des sichtbaren bis hin zum ultravioletten Bereich durchstimmbare ist. Dies macht sie interessant für die industrielle Nutzung, in der sie heute schon viele Anwendungen finden. Dabei ist noch nicht geklärt, warum eine effiziente Lichtausbeute optischer Bauelemente aus Gruppe-III-Nitriden überhaupt möglich ist, denn ein weiteres kennzeichnendes Merkmal ist ihre hohe Defektdichte. Um den Grund für dieses Phänomen zu finden, sind bereits einige Untersuchungen z.B. über das Ausheilverhalten nach Implantation und die Temperaturabhängigkeit durchgeführt worden (s. [SCH07], [PEN07], [LOR02], [KEI01]). Ein Resultat dieser Ergebnisse ist die bereits eingangs erwähnte Hypothese, dass es sich bei dem Defekt, der in GaN, welches mit ^{111}In untersucht wird, wie auch in deutlicherer Ausprägung in AlN auftritt, um eine an Indium gekoppelte Stickstoffleerstelle handeln könnte.

Diese Arbeit knüpft an die vorangegangenen Untersuchungen an. Es wurde mit Hilfe der gestörten $\gamma\gamma$ -Winkelkorrelation der in GaN und AlN auftretende Defekt unter Einfluss zweier Fremdatome und einer erhöhten Stickstoffleerstelldichte in AlN untersucht. Dazu wurde die PAC-Sonde ^{111}In verwendet. Ziel der Arbeit war es, die genannte Hypothese zu bekräftigen oder zu widerlegen. Dazu wurde ^{24}Mg in verschiedenen Dosen als Konkurrenz zum angeregten ^{111}Cd , aus welchem die zur PAC-Messung nötige $\gamma\gamma$ -Kaskade nach Implantation von ^{111}In erfolgt, in AlN implantiert. Es wurde ein dosisabhängiges Messprogramm bei Raumtemperatur und bei 473 K durchgeführt. Aus den so entstandenen R-Wert-Spektren wurde das dosisabhängige Verhalten ermittelt. In gleicher Weise wurde das Verhalten von AlN bei steigender Indium-Dosis in Raumtemperatur untersucht. Dazu wurde stabiles ^{115}In zusätzlich zu radioaktivem ^{111}In implantiert, um eine Konkurrenz zwischen ihnen zu schaffen für den Fall, dass der Defekt an Indium koppelt. Um zu untersuchen, ob es sich bei dem Defekt um eine Stickstoffleerstelle handelt,

wurde eine Probe im Vakuum auf hohe Temperaturen erhitzt (bis zu 1473 K). Dadurch wurde die Ausdiffusion von atomarem Stickstoff bzw. das Eindiffundieren von Stickstoffleerstellen forciert. Anschließend wurden R-Wert-Spektren bei Raumtemperatur und bei 473 K aufgenommen. Daraus wurde das Verhalten unter steigendem Stickstoffleerstellenanteil ermittelt.

Aus den dosisabhängigen Messungen an AlN mit ^{24}Mg konnte kein Einfluss des Magnesiums ermittelt werden, der darauf schließen ließe, dass Magnesium und Cadmium um den Defekt konkurrieren. Denn bis zu einer Mg-Dosis, die so hoch ist, dass sie das Kristallgitter zerstört, findet keine wesentliche Änderung der aus den R-Werten ermittelten Parameter statt. Da Cadmium und Magnesium 2-wertig sind, hätte eine Kopplung mit dem Defekt die Vermutung aufgeworfen, dass sie aufgrund einer Coulombwechselwirkung besteht, der Defekt also negativ ist. Diese Vermutung kann durch die hier dargestellten Messungen nicht bestätigt werden.

Anders ist die Situation nach der Implantation von ^{115}In . Der dosisabhängige Verlauf der Parameter zeigt mit steigender In-Dosis deutlich ein Verhalten, welches man unter der Annahme dass ^{115}In und ^{111}In um den Defekt konkurrieren, erwarten würde. Mit steigender Dosis von stabilem Indium sinkt der Defektanteil stark. Bei einer Dosis von etwa 2×10^{14} sinkt er auf etwa 40% des Wertes einer Probe ohne ^{115}In . Der Anteil ungestörter Sonden steigt dagegen. Dies spricht für eine Kopplung zwischen dem Defekt und Indium. Stellt man dem Defekt also mehr Indium zur Verfügung, verteilt er sich auf den Indiumgesamtgehalt. So haben weniger Sonden einen Defekt auf dem nächstliegenden Gitterplatz und tauchen in den R-Wert-Spektren satt im Defektanteil im Anteil ungestörter Sonden auf. Da Indium isoelektronisch in AlN eingebaut wird und den größten kovalenten Radius der im Kristall vertretenen Atome aufweist, liegt die Vermutung nahe, dass es sich bei Kopplung um einen elastischen Effekt handelt.

Die Messungen an einer Probe in die Stickstoffleerstellen injiziert wurden, ergab schließlich einen Anstieg des Defektanteils bei absinkendem Anteil an ungestörten Sonden. Bei größerem Anteil an Stickstoffleerstellen haben also mehr Sonden einen Defekt in unmittelbarer Umgebung, während sich weniger Sonden in einer ungestörten Gitterumgebung befinden. Daraus lässt sich schlussfolgern, dass es sich bei dem untersuchten Defekt tatsächlich um eine Stickstoffleerstelle handelt.

Die hier dargestellten Messungen bestärken also die Hypothese, dass der in AlN und GaN auftretende Defekt eine aufgrund elastischer Effekte an Indium kopplende Stickstoffleerstelle ist.

Weitere Untersuchungen des Defektes sind schon insofern sehr interessant, da sie Aufschluss darüber geben könnten, ob und in welcher Weise dieser Einfluss auf die ungewöhnlich hohe Lichteffizienz der optoelektronischen Bauelemente aus Gruppe-III-Nitriden hat.

Anhang A

Ausheilen von AlN verschiedener Mg-Dosen

A.1 AlN mit $5 \times 10^{13} \frac{\text{Atome}}{\text{cm}^2}$ Mg

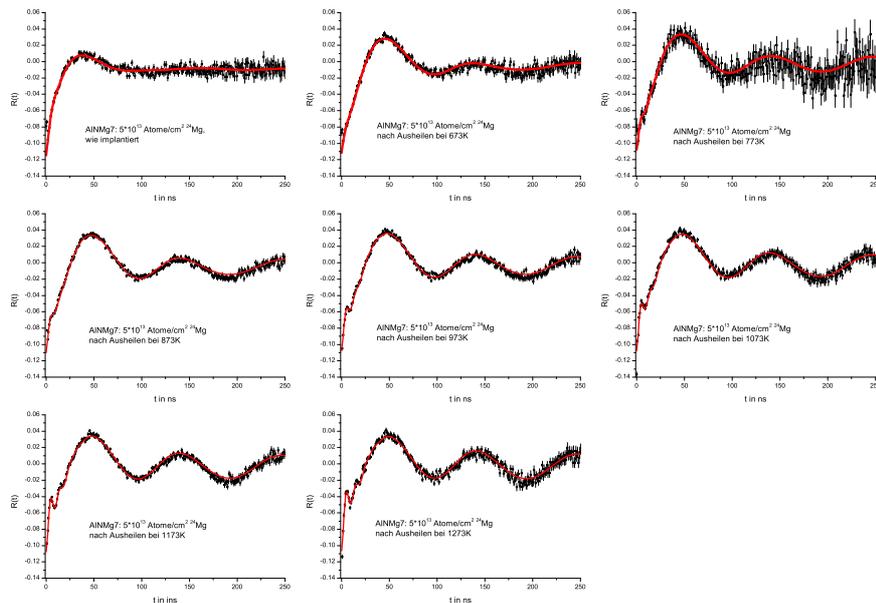


Abbildung A.1: R-Wert-Spektren einer $0,5 \mu\text{m}$ dicken AlN-Proben mit Mg-Dosis von $5 \times 10^{13} \frac{\text{Atome}}{\text{cm}^2}$. Dargestellt ist ein schrittweises thermisches Ausheilen der Gitterschäden, die durch die Implantation entstanden sind.

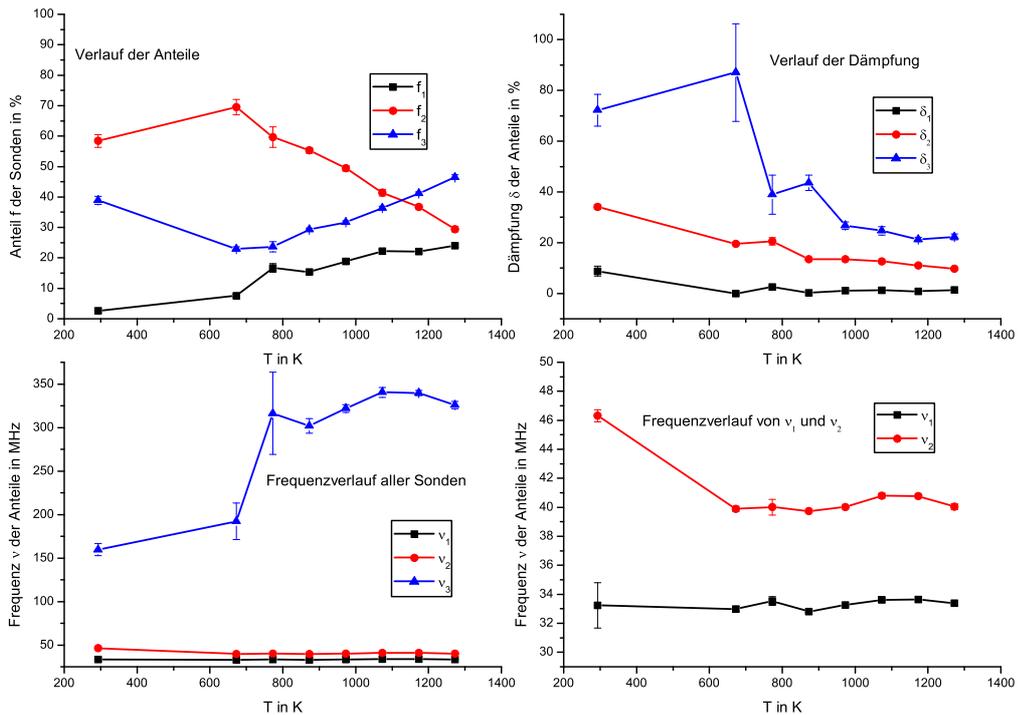


Abbildung A.2: Verlauf der R-Wert-Spektren einer $0,5 \mu\text{m}$ dicken AlN-Proben mit Mg-Dosis von $5 \times 10^{13} \frac{\text{Atome}}{\text{cm}^2}$ bei einem schrittweisen thermischen Ausheilen der Gitterschäden, die durch die Implantation entstanden sind. Die zur ungestörten Sondenumgebung gehörenden Parameter sind durch schwarze Quadrate gekennzeichnet. Die roten Kreise gehören zu den Sonden mit einer Störung in weiterer Umgebung. Mit blauen Dreiecken sind die Parameter dargestellt, bei denen sich ein Defekt auf dem nächsten Gitterplatz in Richtung der \hat{c} -Achse zur Sonde befindet.

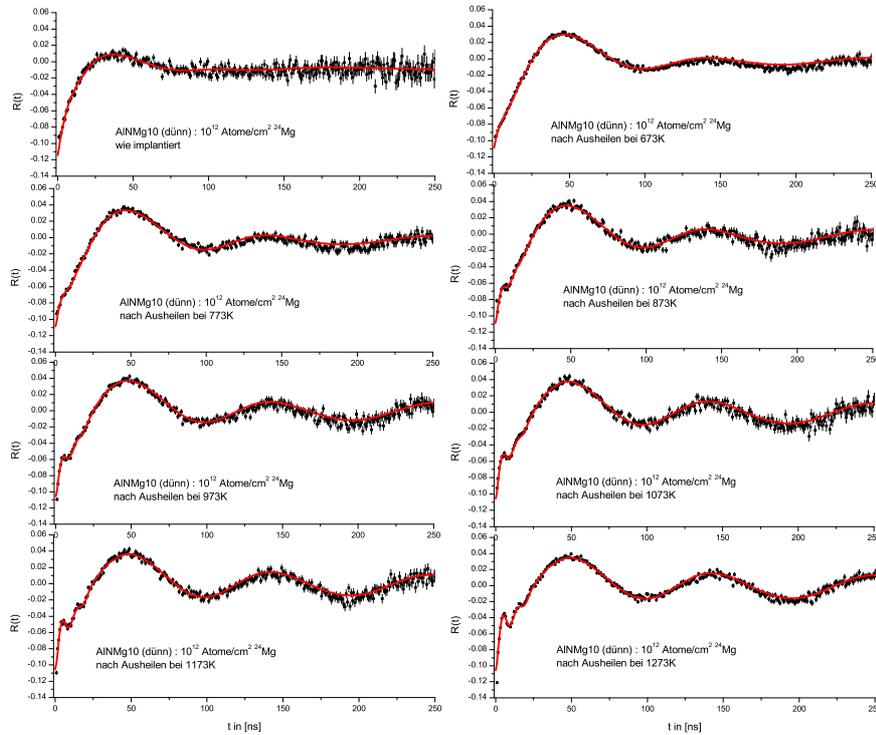
A.2 AlN mit $10^{12} \frac{\text{Atome}}{\text{cm}^2}$ Mg

Abbildung A.3: R-Wert-Spektren einer $0,5 \mu\text{m}$ dicken AlN-Proben mit Mg-Dosis von $10^{12} \frac{\text{Atome}}{\text{cm}^2}$. Dargestellt ist ein schrittweises thermisches Ausheilen der Gitterschäden, die durch die Implantation entstanden sind.

Ein Vergleich zwischen den Verlaufsdiagrammen der beiden Proben (s. Abbildung A.2 und A.4) zeigt, dass sich durch die unterschiedlichen Implantationsdosen von $5 \times 10^{13} \frac{\text{Atome}}{\text{cm}^2}$ und $10^{12} \frac{\text{Atome}}{\text{cm}^2}$ kein Unterschied im Ausheilverhalten ergibt.

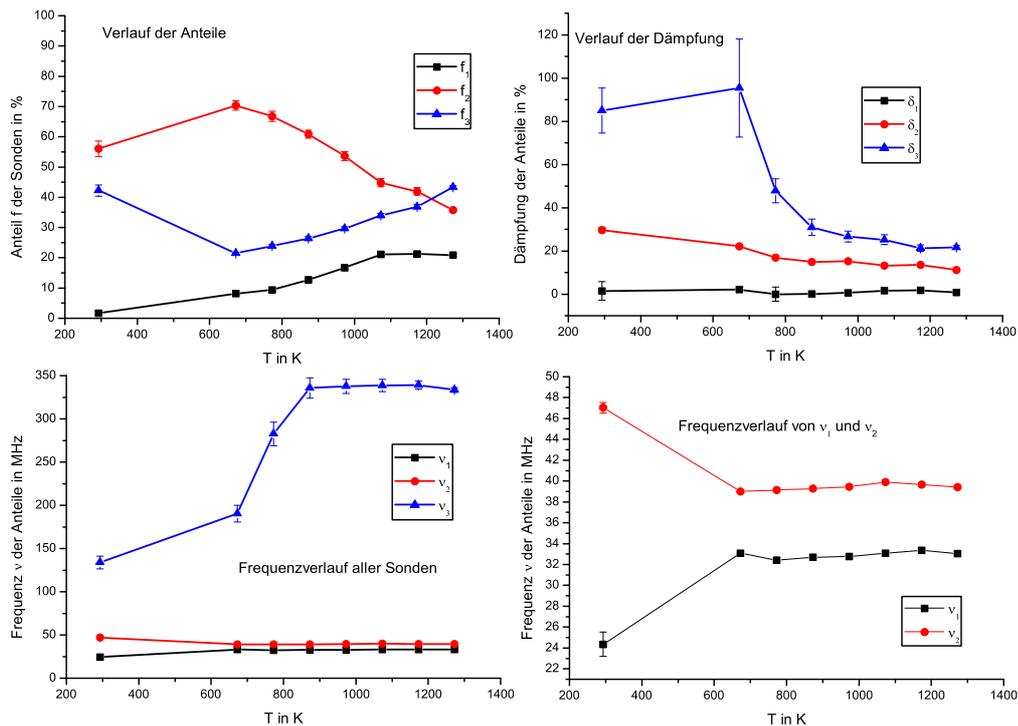


Abbildung A.4: Verlauf der R-Wert-Spektren einer $0,5 \mu\text{m}$ dicken AlN-Proben mit Mg-Dosis von $10^{12} \frac{\text{Atome}}{\text{cm}^2}$ bei einem schrittweisen thermisches Ausheilen der Gitterschäden, die durch die Implantation entstanden sind. Die zur ungestörten Sondenumgebung gehörenden Parameter sind durch schwarze Quadrate gekennzeichnet. Die roten Kreise gehören zu den Sonden mit einer Störung in weiterer Umgebung. Mit blauen Dreiecken sind die Parameter dargestellt, bei denen sich ein Defekt auf dem nächsten Gitterplatz in Richtung der \hat{c} -Achse zur Sonde befindet.

Anhang B

Temperaturabhängige Messungen an AlN mit Mg

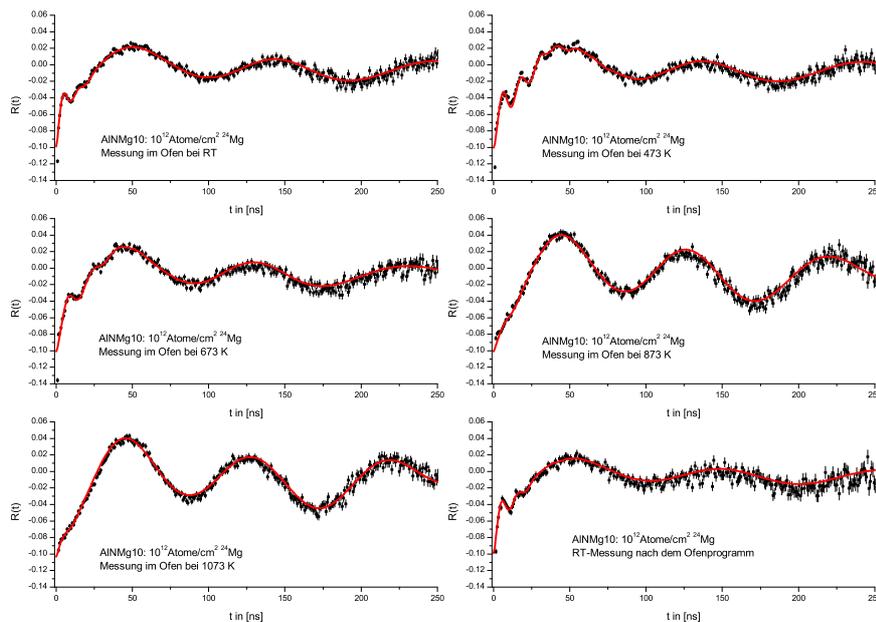


Abbildung B.1: R-Wert-Spektren einer 0,5 μm dicken AlN-Proben mit Mg-Dosis von $10^{12} \frac{\text{Atome}}{\text{cm}^2}$ nach zweiminütigem Ausheilen bei 1273 K, gemessen im PAC-Ofen bei Raumtemperatur, 473 K, 673 K, 873 K, 1073 K und anschließend noch einmal bei Raumtemperatur.

70 ANHANG B. TEMPERATURABHÄNGIGE MESSUNGEN AN ALN MIT MG

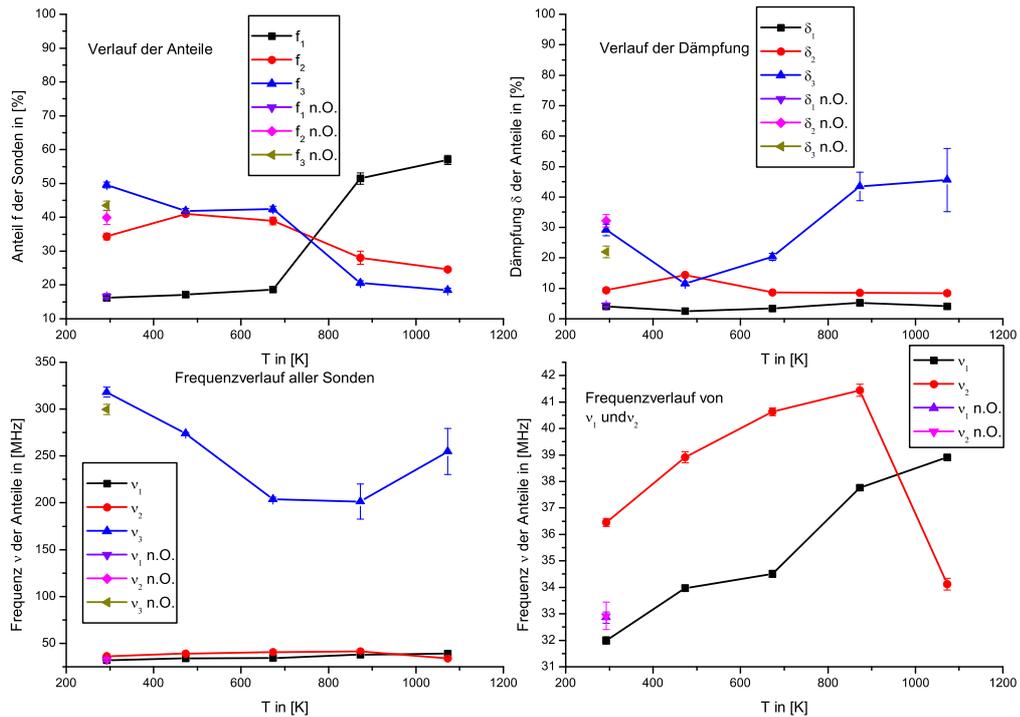


Abbildung B.2: Verlauf der Fitparameter einer $0,5 \mu\text{m}$ dicken AlN-Proben mit Mg-Dosis von $10^{12} \frac{\text{Atome}}{\text{cm}^2}$ nach zweiminütigem Ausheilen bei 1273 K, gemessen im PAC-Ofen bei Raumtemperatur, 473 K, 673 K, 873 K, 1073 K und anschließend noch einmal bei Raumtemperatur. Die mit n.O. gekennzeichneten Messpunkte stammen aus einem R-Wert-Spektrum, das nach dem Ofenprogramm bei Raumtemperatur aufgenommen wurde. Deutlich wird, dass die Startwerte der Messung nicht wieder erreicht werden. Das aufgenommene Verhalten ist demnach in diesem Fall nicht völlig reversibel (s. dazu Abschnitt 4.2).

Anhang C

Messungen bei 1073 K an AlN verschiedener In-Dosen

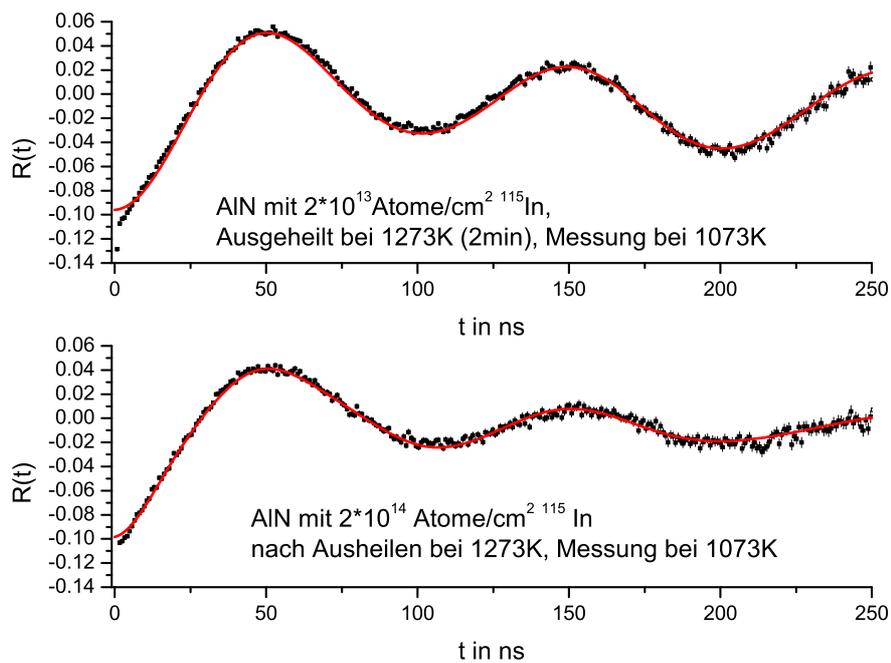


Abbildung C.1: R-Wert-Spektren zweier $3,5 \mu\text{m}$ dicker AlN-Proben mit ¹¹⁵In-Dosis von $2 \times 10^{13} \frac{\text{Atome}}{\text{cm}^2}$ und $2 \times 10^{14} \frac{\text{Atome}}{\text{cm}^2}$ nach zweiminütigem Ausheilen bei 1273 K, gemessen im PAC-Ofen bei 1073 K.

72 ANHANG C. MESSUNGEN BEI 1073 K AN ALN VERSCHIEDENER IN-DOSEN

Literaturverzeichnis

- [ARE80] A.R.Arends, C.Hohenemser, F.Pleiter, H.de Waard, L.Chow, R.M.Suter: *Data reduction methodology for perturbed angular correlation experiments*; Hyp.Int., vol. 8, pp. 191-213 (1980)
- [AYL81] Aylward, Findlay: *Datensammlung Chemie in SI-Einheiten*; Verlag Chemie, Weinheim (1981)
- [BAR92] N.Barradas: *NNFit the PAC MANual*; Lissabon (1992)
- [BIE80] J.P.Biersack, L.G.Haggmark: *A Monte Carlo computer program for the transport of energetic ions in amorphous targets*; Nucl. Instr. Meth., vol. 174, 257-269 (1980)
- [CHI06] S.F.Chichibu, A.Uedono, T.Onuma et al.: *Origin of defect-insensitive emission probability in In-containing (Al,In,Ga)N alloy semiconductors*; nature materials, vol. 5
- [GAL07] M.Galtrey, R.Oliver, C.Humphreys: *Atom probe provides evidence to question InGaN cluster theory*; Comp. Semicond., vol. 13, pp. 27-30 (2007)
- [GER08] T.Geruschke: *private Mitteilungen*
- [IBA90] H.Ibach, H.Lüth: *Festkörperphysik - Einführung in die Grundlagen*; Springer Berlin (1990)
- [IOFFE] Ioffe Physico-Technical Institute: *New Semiconductor Materials. Characteristics and Properties*; Electronic Archive, <http://www.ioffe.rssi.ru/SVA/NSM/>
- [KEI01] M.Keiser: *Aluminiumnitrid-Schutzschichten auf Galliumnitrid-Herstellung und Charakterisierung*; Diplomarbeit Universität Bonn (2001)
- [LOR02] K.Lorenz: *Implantationsstudien an Gruppe-III-Nitriden*; Dissertation Universität Bonn (2002)

- [MAR90] G.Marx: *Aufbau und Test einer RTA-Kurzzeit-Temper-Anlage*; Diplomarbeit Universität Bonn (1990)
- [NED07] R.Nédélec: *PAC-Untersuchungen mit Seltenen Erden Sonden in Halbleitern mit großer Bandlücke*; Dissertation Universität Bonn (2007)
- [PEN07] J.Penner: *Lokale Gitterumgebung von Indium in GaN, AlN und InN*; Dissertation Universität Bonn (2007)
- [RUS01] F. Ruske: *Indiumimplantation in Galliumnitrid untersucht mit der γ - γ -Winkelkorrelationsmethode*; Diplomarbeit Universität Bonn (2001)
- [SCH93] M.Schulz-Rojahn: *Aufbau und Test eines PAC-Messofens und TDPAC-Messungen am System ^{111}In in AgGaS_2* ; Diplomarbeit Universität Bonn (1993)
- [SCH97] G. Schatz, A. Weidinger: *Nukleare Festkörperphysik*; Teubner Stuttgart (1997)
- [SCH07] J.Schmitz: *PAC-Untersuchungen an Gruppe-III-Nitridhalbleitern mit der Sonde ^{111}In* ; Diplomarbeit Universität Bonn (2007)
- [SIE79] Ed.: K. Siegbahn: *Alpha-, beta- and gamma-ray Spectroscopy*; North-Holland Publ. Comp. Amsterdam (1979)
- [STE07] M.Steffens: *Hyperfeinwechselwirkung in dünnen Schichten des Gate-Dielektrikums HfO_2* ; Diplomarbeit Universität Bonn (2007)
- [SPV] J.Schmitz, J.Penner, R.Vianden, K.Lorenz, E.Alves: *A stable In-V_N complex in AlN : a new hypothesis to explain exciton localisation in nitrides*; zur Publikation eingereicht
- [VIA90] R. Vianden: *Electric field gradients in metals*; Hyp. Int., vol. 35, pp. 1079-1118 (1987)
- [WAL06] W.Walukiewicz, J.W. Ager III, K. M. Yu, Z. Liliental-Weber, J. Wu, S. X. Li, R. E. Jones, J. D. Denlinger: *Structure and electronic properties of InN and In -rich group III-nitride alloys*; J. Phys. D: Appl. Phys., vol. 39, pp. R83-R99 (2006)
- [WE07] P.Wellmann, Universität Erlangen-Nürnberg: *Leuchtdioden aus Galliumnitrid – Eine Glühbirne des 21. Jahrhunderts*; <http://www.iisb.fraunhofer.de/de/profil/jt2007/wellmann.pdf>

Danksagung

An dieser Stelle möchte ich mich ganz herzlich bei all den Menschen bedanken, die mich bei meiner Diplomarbeit unterstützt und damit zu dieser beigetragen haben.

An erster Stelle ist da Herr Priv. Doz. Dr. Reiner Vianden zu nennen, der mir diese Diplomarbeit erst ermöglicht hat. Vielen Dank für die gute Betreuung und immer wieder aufmunternde Unterstützung.

Besonders danken möchte ich auch Herrn Prof. Dr. Maier für die Übernahme des Koreferates.

Der gesamten Arbeitsgruppe Vianden möchte ich danken für die freundliche Aufnahme in die Gruppe, ständige Hilfs- und auch sonstige Bereitschaft, ihr erworbenes Wissen mit mir zu teilen.

Für die Hilfe beim Einarbeiten in die Messmethode und den Probenumgang danke ich Dr. Jakob Penner und insbesondere Thomas Geruschke, wie auch für die Hilfe bei allen Fragen, die sich im Laufe dieses Jahres ergaben. Für die angenehme Arbeitsatmosphäre im Büro danke ich Maqsd Rasulbayev und Michael Steffens, der mir wie auch Dr. Ronan Nédélec und Riccardo Valentini eine große Hilfe in Computerangelegenheiten war. Nicole Santen danke ich für die besonders ausführliche Korrektur dieser Arbeit. Julianna Schmitz danke ich für die Einführung in den Umgang mit der Diamantdrahtsäge, wie auch für die übersichtliche Darstellung ihrer Messergebnisse, die mir immer wieder als Vergleich dienten.

Danken möchte ich Dr. Katharina Lorenz für die RBS-Messungen. Den Mitarbeitern des Isotopenseparators danke für die in dieser Arbeit beschriebenen Implantationen. Ohne die Arbeit von Herrn Priv. Doz. Dr. Paul-Dieter Eversheim und insbesondere Cornelia Noll, Siegfried Hinderlich und Albert Dahl wäre diese Arbeit nicht möglich gewesen.

Wenn auch die diesbezüglichen Messungen leider keine aussagekräftigen Ergebnisse nach sich zogen, möchte ich Frau Hildegard Hodde für ihr besonderes Engagement bezüglich ohmscher Kontakte auf GaN und AlN danken.

Der Arbeitsgruppe von Herrn Prof. Dr. Maier möchte ich für die spontane Hilfe besonders in den letzten Wochen dieser Arbeit danken. Auch bei den vielen Helfern in den feinmechanischen und elektronischen Werkstätten und den Sekretariaten bedanke ich mich. Ebenso danke ich allen anderen Mitarbeitern des HSKP, deren Unterstützung ich in Anspruch nehmen durfte.

Schließlich möchte ich mich bei meinen Eltern bedanken, die mir dieses Studium erst ermöglicht haben und auch während der Diplomarbeitszeit eine große Unterstützung waren.

Danksagung, die Zweite

An dieser Stelle möchte ich mich bei einigen Menschen noch auf persönlichere Art ganz herzlich für die Unterstützung im Jahr meiner Diplomarbeit bedanken. Als erstes ist da natürlich Herr Dr. Vianden zu nennen, der mir diese Diplomarbeit erst ermöglicht und durch seine freundliche Art an manchem Tag erleichtert hat. Herrn Thomas Gerschke möchte ich dafür danken, dass er einen Weg gefunden hat mit meinen „Hilf mir!!“- und den „Ich will das alleine können“-Phasen umzugehen und ich so einiges lernen konnte, was mir wohl bei einer weniger zwischenmenschlich kompetenten Betreuung verwehrt geblieben wäre. Danken möchte ich auch für die Einsicht „Das ist halt Experimentalphysik.“. Frau Nicole Santen danke ich für den hilfreichen Tipp, eher mit dem Schreiben der Arbeit anzufangen, den ich leider nicht so beherzigt habe, wie ich mir das zwischendurch immer wieder gewünscht hätte. Außerdem danke ich für die ausführliche Korrektur dieser Arbeit. Herrn Ronan Nédélec danke ich für Einblicke in den Umgang mit technischen Geräten („Du musst das Gerät zwingen, das zu tun, was Du von ihm willst.“). Herrn Riccardo Valentini danke ich für seine unbeschwerte Art das Gehen zu zelebrieren. Herrn Michael Steffens möchte ich insbesondere dafür danken, dass er mir an so vielen Montagen bis 12.00 Uhr das Büro überlassen hat (das hab ich gemerkt). Herrn Maqsud Rasulbayev danke ich für die vielen den Horizont erweiternden Gespräche. Für die Hilfe dabei, den Fit-Parametern physikalisch sinnvolle Aussagen abzuringen danke ich besonders Herrn Jakob Penner. Herrn Patrick Kessler danke ich für Lektionen in Ruhe und Gelassenheit. Der Gruppe Maier danke ich für das freundliche Asyl in Regensburg und die gute Gemeinschaft in Zakopane. Frau Sarah Wrede möchte ich herzlich für die seelisch moralische Unterstützung insbesondere während der letzten 1 1/2 Monate dieser Arbeit danken. Herrn Enma danke ich für den besten Kaffee des ganzen Institutes. Herrn Meinert Lewerenz und Herrn Christian Höhl danke ich für die spontane Hilfe in der Vorbereitung meines Diplomkolloquiums. Für die persönlichen Aufmunterungen und Unterstützungen möchte ich mich auch ganz herzlich bei Melanie Klöß, Marius Arenz, Jacqueline Nagel und ganz besonders bei Sven Zander bedanken, der mir gerade in der stressigen Endphase den Rücken freigehalten und mich auch sonst in jeder ihm möglichen Weise unterstützt hat.