

Röntgendiffraktometrische Charakterisierung
von Germanium-Nanokristalliten
auf und in Siliziumkarbid

Dissertation

zur Erlangung des akademischen Grades
doctor rerum naturalium

vorgelegt dem Rat der Physikalisch-Astronomischen Fakultät
der Friedrich-Schiller-Universität Jena

von Diplomphysikerin Bettina Wunderlich
geboren am 09. Juli 1973 in Gotha

Gutachter:

1. Prof. Dr. K. Goetz
2. Prof. Dr. W. Wesch
3. Prof. Dr. H.-R. Höche

Tag der letzten Rigorosumsprüfung: 21.07.2004

Tag der öffentlichen Verteidigung: 28.10.2004

Inhaltsverzeichnis

1. Einführung	1
1.1. Eigenschaften und Verwendungszweck von niedrigdimensionalen Strukturen	1
1.2. Stand der Forschung	3
2. Herstellungsmöglichkeiten von niedrigdimensionalen Strukturen	5
2.1. Übersicht.....	5
2.2. Herstellung von korrelierten Dot-Systemen	6
2.3. Molekular-Strahl-Epitaxie (MBE).....	7
2.4. Implantation	8
3. Verschiedene Untersuchungsverfahren zur Charakterisierung von Nanokristalliten	9
3.1. Atomkraftmikroskopie (AFM)	9
3.2. Rutherford-Rückstreu-Spektroskopie (RBS)	11
3.3. Transmissions-Elektronen-Mikroskopie (TEM)	14
3.4. Charakterisierung mit Röntgenstrahlen.....	16
3.4.1. Untersuchung von Nanokristalliten - XRD	19
3.4.1.1 verschiedene Messregime.....	19
3.4.1.2 Rossendorfer Beamline (ROBL) an der European Synchrotron Facility (ESRF) in Grenoble	20
3.4.2. Untersuchung von Nanokristalliten – oberflächenempfindliche Methoden	22
3.4.3. Anormale Dispersion	24
4. Modellvorstellungen	25
4.1. Besonders wichtige Eigenschaften der Ge-Nanokristallite.....	25
4.2. Einfluss von Größen- und Orientierungsverteilung auf das Beugungsprofil	26
5. Messung an aufgewachsenen Ge-Nanokristalliten	32
5.1. Charakterisierung der Ge-Nanokristallite	32
5.1.1. Größenbestimmung der Ge-Nanokristallite senkrecht und parallel zur Oberfläche	32

5.1.2. Bestimmung der Orientierungsverteilung der Ge-Nanokristallite.....	38
5.1.3. Laterale Orientierung der Nanokristallite	39
6. Implantierte Nanokristallite.....	43
6.1. Charakterisierung des Substrates.....	43
6.2. Charakterisierung der Nanokristallite	47
6.2.1. Erste sondierende Messungen.....	47
6.2.2. Gestalt und laterale Symmetrie der Nanokristallite	50
6.2.3. Modell zur Bestimmung der Nanokristallitgröße.....	50
6.2.4. Bestimmung der Nanokristallitgröße bei verschiedenen Proben	54
6.2.5. Abhängigkeit der durchschnittlichen Nanokristallitgröße von der Temperzeit	57
6.3. Alterung der Probe.....	58
6.4. Problem der Reflexverschiebung	64
6.4.1. Allgemein	64
6.4.2. Stöchiometrischen Zusammensetzung der Ge-Nanokristallite.....	66
6.4.2.1. Änderung des Streuvermögens an der Ge-Absorptionskante	66
6.4.2.2. Kalibrierung der Wellenlänge und I_0 -Intensität.....	68
6.4.2.3. Bestimmung des Ge-Gehaltes von OF-Nanokristalliten	71
6.4.2.4. Bestimmung des Ge-Gehaltes von implantierten Nanokristalliten	74
6.4.3. Bestimmung der Spannung der umgebenden SiC-Matrix	77
6.4.3.1. Abschätzung der maximalen Verspannung der Ge-Nanokristallite durch Druck der umgebenden Matrix	77
6.4.3.2. Beitrag zur diffusen Streuung verursacht durch Defekte in der Matrix	79
6.4.3.3. Messungen	84
7. Zusammenfassung und Ausblick.....	94
Literaturverzeichnis.....	96
Anhang A.....	100
Anhang B.....	102
Danksagung.....	103

1. Einführung

1.1. Eigenschaften und Verwendungszweck von niedrigdimensionalen Strukturen

Als nanostrukturierte Materialien bezeichnet man Materialien, die niedrigdimensionale Strukturen mit Abmessungen zwischen 1nm und 100nm enthalten. Dieser Längenscale angemessen ist eine neue Disziplin der Naturwissenschaften, die zwischen der Festkörperphysik und der Atomphysik anzusiedeln ist. Die Festkörperphysik beschreibt den unendlich ausgedehnten Festkörper und die Atomphysik die individuellen Atome und Moleküle. Materialien mit niedrigdimensionalen Strukturen enthalten Einheiten mit einer abzählbaren Anzahl von Atomen, die neue elektronische, optische und chemische Eigenschaften aufgrund ihrer Dimension zeigen.

Das Interesse an niedrigdimensionalen Halbleiterstrukturen ist in den letzten Jahren ungeheuer angestiegen, infolge ihrer speziellen physikalischen Eigenschaften und ihrem Potential für Anwendungen auf dem Gebiet der Mikro- und Optoelektronik.

In solchen niedrigdimensionalen Strukturen ist die Bewegung der freien Ladungsträger räumlich durch Potentialbarrieren eng begrenzt. Da die Größe dieser Regionen kleiner ist als die Elektronenwellenlänge, kommt es zur Quantisierung der Energiezustände der Elektronen.

Man unterscheidet zwischen „quantum well“-Strukturen, in denen die Bewegung der Elektronen nur in einer Dimension beschränkt ist, und „quantum wires“-Strukturen, in denen diese Beschränkung in zwei Dimensionen gilt. Das ultimative Limit von niedrigdimensionalen Strukturen ist der Quantendot, in welchem die Ladungsträger in allen drei Dimensionen begrenzt werden. Deshalb lässt sich einen Quantendot als künstliches Atom bezeichnen.

Abbildung 1 zeigt die schematische Darstellung der Zustandsdichte der Elektronen in Abhängigkeit der Dimension [MORIARTY 2001]. Bei einem 3D-Festkörper weist die

Zustandsdichte eine \sqrt{E} -Abhängigkeit von der Energie auf. In idealen 2D-Strukturen, sogenannten „quantum well“-Strukturen, ist die Zustandsdichte eine Stufenfunktion und in 1D-Strukturen, sogenannten „quantum wires“-Strukturen, zeigt sich eine $1/\sqrt{E}$ -Abhängigkeit von der Energie. Die „quantum dot“-Strukturen (0D-Struktur) besitzen diskrete, δ -funktionsförmige Elektronenzustände, analog eines einzelnen Atoms.

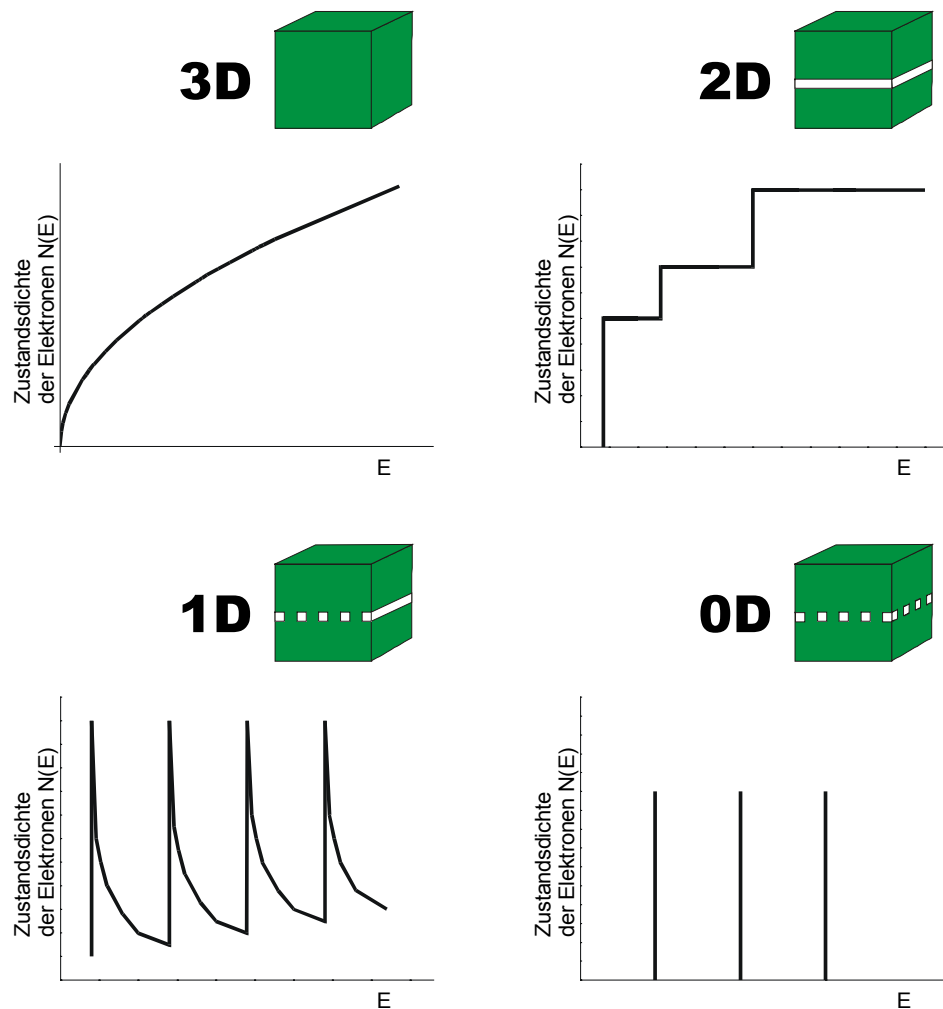


Abb. 1: schematische Darstellung der Zustandsdichte der Elektronen in Abhängigkeit der Dimension.

Durch die geeignete Kombination zweier Halbleiter (Quantendots eingebettet in eine Halbleitermatrix) können auch im Falle indirekter Halbleiter strahlende Elektronen-Loch-Rekombinationen ermöglicht werden. Die Energie dieser Übergänge ist abhängig von der

räumlichen Ausdehnung der Quantendots und damit bestimmt die Größe der eingebetteten Nanokristallite die Wellenlänge der emittierten Photonen. Diese Eigenschaft wird „blue shift“ genannt, sie bezeichnet die Verschiebung der Wellenlänge in den blauen Spektralbereich mit abnehmender Kristallitgröße.

1.2. Stand der Forschung

Gruppe IV Nanokristallite indirekter Halbleiter, wie Germanium und Silizium, eingebettet in eine geeignete Matrix sind für neue Anwendungen in der Mikro- und Optoelektronik besonders interessant. In den vergangenen Jahren wurden die Photolumineszenz-Eigenschaften von Si-Nanokristallen eingebettet in SiO_2 untersucht und eine größenabhängige Peakintensität der emittierten Strahlung im nahen infraroten und im sichtbaren Spektralbereich gefunden [TAKAGI 1990, SCHUPPLER 1995, KANZAWA 1997]. Aus dem Vergleich der elektronischen Eigenschaften von Si und Ge kann geschlussfolgert werden, dass die Änderung der Bandstruktur in einem Quanten-*Confinement* von Ge-Nanokristallen zu einer höheren Effizienz der Strahlungsrekombination führt. Eine größenabhängige Photolumineszenz im nahen infraroten Spektralbereich von Ge-Nanokristallen eingebettet in SiO_2 wurde nachgewiesen [MAEDA 1995]. Das Halbleitermaterial Siliziumkarbid (SiC) hat gegenüber herkömmlichen Materialien wie Silizium eine Vielzahl herausragender Materialeigenschaften und könnte deshalb gerade für Anwendungen in extremen Umgebungen oder für besondere elektronische Anforderungen der Halbleiter der Zukunft sein. SiC weist eine hohe Elektronenbeweglichkeit auf, ist thermisch und mechanisch stabil und besitzt eine große polytypabhängige Energiebandlücke von 3,3eV für 4H-SiC und 3,0eV für 6H-SiC. Nachteilig hingegen ist, dass Siliziumkarbid ein indirekter Halbleiter ist. Deshalb ist eine effektive Photo- oder Elektrolumineszenz in SiC nicht ohne weiteres möglich.

Einen Ausweg stellt die Einbettung von Halbleiter-Nanokristallen in eine SiC-Matrix dar. Die Einbettung von Ge-Nanokristallen in einen Halbleiter mit einer großen Energiebandlücke würde die elektronische Anregung von Lichtemissionen bestimmter Wellenlänge in Abhängigkeit der Kristallitgröße ermöglichen.

In den letzten Jahren wurde im Sonderforschungsbereich 196 „Physik und Chemie optischer Schichten“ an der Universität Jena umfangreiche Forschung zur Problematik der

Nanokristalle in SiC betrieben. Publikationen zur Formierung von Gruppe IV Nanokristallen in SiC waren zum Zeitpunkt des Beginns der Arbeiten im Sonderforschungsbereich nicht bekannt. Im Institut für Festkörpertheorie und theoretische Optik der Universität Jena wurden *ab initio*-Rechnungen durchgeführt, die die prinzipielle Möglichkeit der Lumineszenz von Si oder Ge-Nanokristallen in SiC zeigen [Weissker 2002, 2003].

Es zeigte sich, dass zur Herstellung von vergrabenen Ge-Nanokristalliten in SiC-Substraten, das Verfahren der Ionen-Implantation mit anschließender Temperung verwendet werden kann. [Schubert 2002]

Zur strukturellen Charakterisierung von vergrabenen Ge-Nanokristalliten in SiC-Substraten standen im Sonderforschungsbereich neben der Rutherford-Weitwinkelstreuung (RBS) und Photolumineszenz-Messungen (PL) auch Transmissions-Elektronen-Mikroskopie (TEM) zur Verfügung. Mit der TEM können nach einer sehr aufwendigen Probenpräparation nur mikroskopisch kleine Bereiche untersucht werden. Exemplarisch werden nur ausgewählte Ge-Nanokristallite und nur deren unmittelbare Umgebung charakterisiert. Es sind keine Integralaussagen über die gesamte Probe möglich. Auch Untersuchungen zum Alterungsprozess können nicht an der selben Probe durchgeführt werden.

Die Röntgendiffraktometrie ist ein zerstörungsfreies Analyseverfahren, bei dem in der Regel keine Probenpräparation notwendig ist. Sie ermöglicht eine umfassende, strukturelle Charakterisierung ohne die Gefahr der Veränderung des Probensystems bzw. der Nanokristallite durch Präparationsschritte oder Strahlenschäden während der Messung. Es wird ein makroskopischer Ausschnitt der Probe untersucht. Somit sind Integralaussagen über die Gesamtheit der Nanokristallite möglich. Untersuchungen zum Alterungsprozess können an der selben Probe nach unterschiedlichen Zeitspannen beliebig oft wiederholt werden. Zusätzlich kann das Substratmaterial und dessen Veränderungen aufgrund der Implantation und Temperaturbehandlung für relevante Probendicken auch in der Tiefe untersucht werden. Es sind somit noch weiterführende Aussagen zum Bildungsprozess der Nanokristallite und zu Ausheilvorgängen im Substratmaterial möglich. In dieser Arbeit werden die Ergebnisse der umfassenden röntgenographischen Charakterisierung dieses Materialsystems vorgestellt.

2. Herstellungsmöglichkeiten von niedrigdimensionalen Strukturen

2.1. Übersicht

Bei der Herstellung von Quantendots, stoßen die herkömmlichen Verfahren der Halbleiterherstellung, speziell die Lithographietechnik, an ihre Grenzen. Wegen der hohen Qualitätsanforderungen an niedrigdimensionale Strukturen, z.B. defektfreie Grenzflächen und hohe Ordnungsstruktur, müssen alternative Herstellungsverfahren entwickelt werden.

Bei der Gas-Phasen-Synthese werden die Cluster, die sich in der Gas-Phase gebildet haben, auf einem Festkörpersubstrat deponiert. Zu dieser Synthese zählen unter anderen die Gas-Aggregatikon, die Laser-Verdampfung und das Ionen-*Sputtern*.

Die spontane Bildung von dreidimensionalen Inseln in der Heteroepitaxie ist eine neue Technik für die Synthese von selbstorganisierten Quantendots. Diese Technik basiert unter anderem auf den fundamentalen morphologischen Instabilitäten von verspannten Oberflächen. Durch die Verspannung, induziert durch die verschiedenen Gitterkonstanten des Substrates und des aufgetragenen Materials, geht das anfängliche zweidimensionale epitaktische Wachstum der Zwischenschicht in ein dreidimensionales Insel-Wachstum (Stranski-Krastanov-Wachstum) über, sobald eine kritische Schichtdicke erreicht ist. Diese Bildung von selbstorganisierten Inseln reduziert die Verspannung und verringert die totale Energie des Systems. Die Größe, Dichte und Gestalt der Nanocluster kann durch die Änderung der Wachstumsparameter und die Orientierung des Substrates beeinflusst werden. Im frühen Stadium des Wachstums sind diese Inseln defektfrei und völlig kohärent zum Substrat [SPRINGHOLZ 1998, TERSOFF 1996].

Ein anderer Mechanismus des Inselwachstums in der Heteroepitaxie ist das Vollmer-Weber-Wachstum. Bei diesem Prozess sind die freien Oberflächenenergien des Substrates und des adsorbierenden Materials so, dass das Adsorbat die Substratoberfläche nicht benetzt, aber dreidimensionale Inseln auf der Oberfläche bildet. Diese Wachstumsmethode erfordert eine chemisch inerte Oberfläche mit einer niedrigen freien Oberflächenenergie,

z.B. amorphe Kohlenstoff-, Graphit-, Metalloxyd- und Wasserstoff- passivierte Si-Oberflächen.

2.2. Herstellung von korrelierten Dot-Systemen

Eine Möglichkeit, gut geordnete und dicht gepackte Nanostruktur-Arrays in Halbleitern, Metallen oder anderen Materialien herzustellen, ist eine freie Lithographietechnik. Bei diesem Verfahren wird die hohe Ordnungsstruktur von eloxierten, porösen Aluminiumoxyd-Membranen ausnutzt. Die Nanoporen bilden sich unter sorgfältig kontrollierten Bedingungen als ein selbstorganisiertes hochgeordnetes Gitter mit einheitlichen Porendurchmesser und Porenabstand. Die Poren sind parallel zur Oberflächennormale orientiert. Diese Nanoporen-Array-Struktur wird direkt auf eine Halbleiter- oder Metalloberfläche mittels Ätzen übertragen oder man verwendet sie als Maske für die Elektronenstrahlverdampfung und erzeugt so Säulen- bzw. Dot-Arrays. [LIANG 2002]

Auch der Mechanismus der Selbstorganisation ist ein vielversprechender Weg zur Herstellung von Quantendot-Arrays, insbesondere da die Inseln eine einheitliche Größe aufweisen. Der nächste Schritt ist die Herstellung von Quantendot – Übergittern, bei denen die einzelnen Dots lateral und vertikal zueinander ausgerichtet sind. Selbstangeordnete Quantendot-Übergitter bestehen aus Schichten mit stark verspannten Stranski-Kastanow Inseln, die durch Zwischenschichten von einander getrennt werden. Diese Zwischenschichten besitzen eine geringe Gitterfehlpassung zum Substrat, wodurch die treibende Kraft für das verspannungsinduzierte, kohärente Inselwachstum während des Überwachens der Dots, stark reduziert wird. Die daraus resultierende Oberfläche für die folgende Schicht mit Dots ist völlig glatt. Die starken Gitterdeformationen des Matrixmaterials um die vergrabenen Inseln herum erzeugen eine ungleichförmige Spannungsverteilung der epitaktischen Oberfläche. Die Dot-Nukleation erfolgt bei einem Minimum der Oberflächenspannung, so findet eine Korrelation zu den bereits gewachsenen Dots statt.

Dieser Mechanismus konnte schon in einigen Materialsystemen demonstriert werden, z.B. SiGe/Si, InAs/GaAs und CdZnSe/ZnSe [SPRINGHOLZ 2001] und PbSe/PbEuTe [HOLY 2001].

2.3. Molekular-Strahl-Epitaxie (MBE)

Das Wachstum von selbstorganisierten Inseln in gitterfehlangepassten Heterostrukturen ist eine übliche Methode um nanokristalline Strukturen zu erzeugen. Für die in dieser Arbeit charakterisierten Proben wurden Ge Nanokristallite von einigen Nanometern Größe auf SiC(0001)-Substraten mittels Molekular-Strahl-Epitaxie erzeugt. Die Bildung von zwei- oder dreidimensionalen Ge-Inseln ist abhängig von der Polarität des SiC-Substrates (Si- oder C-Seite), der SiC-Oberflächen-Stöchiometrie und Rekonstruktion, der Wachstumsrate und der Temperatur.

Die Proben wurden im Rahmen des Sonderforschungsbereiches 196 „Physik und Chemie optischer Schichten“ der Deutschen Forschungsgemeinschaft am Institut für Festkörperphysik der Friedrich-Schiller-Universität Jena hergestellt. Im Experiment wurde eine Ultrahochvakuum-Kammer mit Feststoff-Quellen benutzt. Die 4H- und 6H-SiC Substrate mit sehr geringem Fehlschnitt (*on-axis*) und (0001)-Orientierung wurden mit Wasserstoff-Ätzen bei 1800K vorbehandelt. Anschließend wurden die Substrate *in situ* im Si-Fluß geheizt, um die Oberfläche zu säubern und verschiedene Oberflächen-Rekonstruktionen einzustellen. Bei der Herstellung der Nanokristallite wird auf das Substrat zuerst ein *Wettinglayer* aus SiO₂ mit einer Dicke von etwa einer Monolage aufgebracht und dann mit dem Wachstum der Ge-Nanokristallite begonnen. Die Oberflächenstruktur wurde mit niedrigenergetischen Elektronen-Diffraktometrie (LEED) und die Oberflächenzusammensetzung mit Röntgen-Photonelektronen-Spektroskopie (XPS) analysiert. Germanium wurde von einer Effusionszelle mit einer Verdampfungsrate von 0,1-1,5nm min⁻¹ und bei einer Substrattemperatur zwischen 740K und 870K verdampft. Auf der Substratoberfläche bildeten sich dann an das Matrixgitter angepasste Ge-Inseln bzw. Ge-Nanokristallite aus. Die Oberflächenstruktur, die Morphologie, die Größe, die Geometrie, die Dichte und die Verteilung der Nanokristallite wurden *in situ* mit Scanning-Tunnel-Mikroskopie (STM), niedrigenergetischer Elektronendiffraktometrie (LEED) und *ex situ* mit Atom-Kraft-Mikroskopie (AFM), Röntgendiffraktometrie (XRD) und Transmissions-Elektronen-Mikroskopie (TEM) untersucht [SCHROETER 2001, 2002].

2.4. Implantation

Auch ein völlig anderer Probenotyp wurde im Rahmen des Sonderforschungsbereiches 196 am Institut für Festkörperphysik hergestellt und mit Rutherford-Rückstreu-Spektroskopie (RBS) charakterisiert (siehe Abschnitt 3.2.). Es handelt sich um vergrabene Ge-Nanokristallite in 4H-SiC[0001]-Substraten, die mit dem Verfahren der Ionen-Implantation und anschließender Temperung erzeugt wurden. Dazu wurden Ge⁺-Ionen mit einer Energie von 250keV in einen 4H-SiC[0001]-Einkristallwafer implantiert. Die Implantationstemperatur betrug 20°C bzw. 700°C. Die hohe Implantationstemperatur wurde gewählt, um einer Amorphisierung des oberflächennahen Kristallbereiches vorzubeugen. Die Ionenstromdichte war geringer als 1μAcm⁻². Die Proben wurden 6°-8° zum Ionenstrahl geneigt, um Kanalisierungseffekte während der Implantation zu vermeiden. Der verwendete Ionenfluß von 1*10¹⁶cm⁻² verursachte eine Ge-Peakkonzentration von etwa 1 Atomprozent innerhalb der Ionenreichweite von 105nm. Die anschließende Temperaturbehandlung erfolgte bei 1600°C in Ar Atmosphäre (20kPa Druck) für 30s, 120s bzw. 360s. Dazu wurde ein Kurzzeit-Temperofen („*rapid thermal annealing*“- Anlage) verwendet, bei dem die Probe zwischen zwei elektrisch geheizte Graphitstreifen platziert wurde. Die Probe wurde mit einem unimplantierten SiC-Stück abgedeckt, um ein Erosion der Probenoberfläche während des Heizens zu verhindern [SCHUBERT DISS., SCHUBERT 2002].

Die Proben wurden anschließend mit Rutherford-Rückstreu-Spektroskopie (RBS), Elektronen-Transmissions-Mikroskopie (TEM), hochauflösender Transmissions-Elektronen-Mikroskopie (HRTEM), energiedispersiver Röntgen-Spektroskopie (EDX) und Röntgendiffraktometrie (XRD) analysiert. Diese Methoden liefern unter anderem Informationen über die Ge-Verteilung, den Einbau des Germaniums in das SiC-Gitter und die Schädigung des SiC-Gitters nach der Implantation und der Temperaturbehandlung.

3. Verschiedene Untersuchungsverfahren zur Charakterisierung von Nanokristalliten

Die geringen Dimensionen von Quantendots, die typischerweise zwischen 10^4 und 10^5 Atome enthalten, erfordern spezielle Analysemethoden, die auf den Grundlagen der Transmissions-Elektronen-Mikroskopie (TEM), der Atomkraftmikroskopie (AFM), der Rutherford-Rückstreu-Spektroskopie (RBS) bzw. der Röntgendiffraktometrie (XRD) basieren. Auf weitere Verfahren zur Charakterisierung von Quantendots wie z.B. Photolumineszenzmessungen (PL) oder hochaufgelöste Elektronenenergie-Verlustspektroskopie (EELS) und andere soll hier nicht eingegangen werden.

3.1. Atomkraftmikroskopie (AFM)

Mit Hilfe der Atomkraftmikroskopie kann die Größe, die Größenverteilung, die Gestalt und die Dichte von Nanokristalliten auf Oberflächen bestimmt werden.

Am Institut für Festkörperphysik der Friedrich-Schiller-Universität Jena wurden Ge-Nanokristallite von einigen Nanometern Größe auf 6H-SiC(0001)-Substraten mit Molekular-Strahl-Epitaxie gewachsen und anschließend mit Atomkraftmikroskopie charakterisiert [SCHROETER 2002]. Die meisten Nanokristallite haben bezüglich der Oberflächennormalen eine rotationssymmetrische Gestalt. Bei der in dieser Arbeit vermessenen Probe haben sich zwei verschiedene Inseltypen auf der Oberfläche gebildet. Der laterale Durchmesser der kleineren Nanokristallite beträgt etwa (100-150)nm und die Höhe 50nm bei einer durchschnittlichen Dichte von 10^8cm^{-2} . Die großen Insel haben einen lateralen Durchmesser von 700nm und eine Höhe von 250nm. Das Häufigkeitsverhältnis zwischen kleinen und großen Inseln ist etwa 30:1. Bei den großen Inseln könnte es sich um Reste von Si, aus dem SiO_2 -*Wettinglayer* handeln.

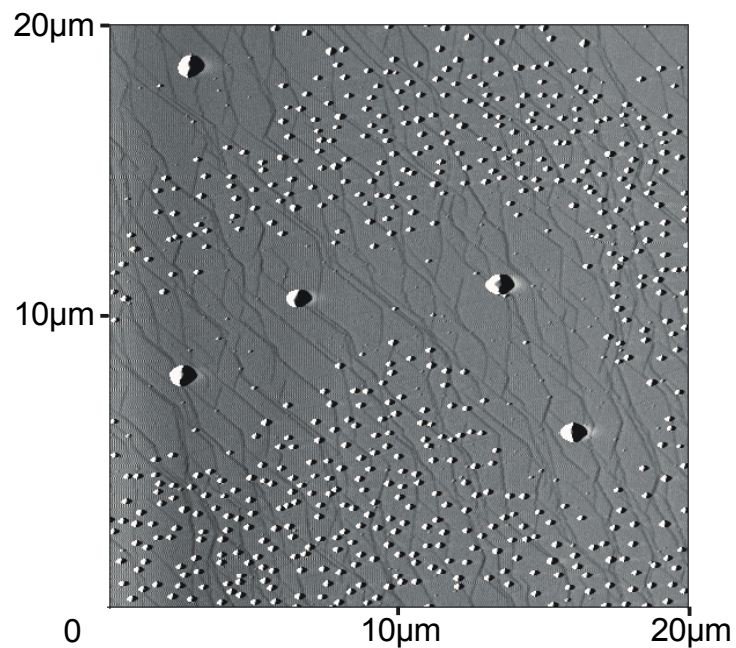


Abb. 2: AFM-Bild von aufgewachsenen Ge-Nanokristalliten auf einem 6H-SiC-Substrat (gemessen an der FSU Jena im Institut für Festkörperphysik von Dr. Schroeter)

Auf dem AFM-Bild erkennt man die regellose Anordnung der kleinen Inseln, bei denen es sich um die zu charakterisierenden Ge-Nanokristallite handelt. Den großen Inseln konnte kein röntgenographisch gemessener Reflex zugeordnet werden, wahrscheinlich handelt es sich um amorphe Ausscheidungen des *Weddinglayers*.

3.2. Rutherford-Rückstreu-Spektroskopie (RBS)

Mit der Rutherford-Rückstreu-Spektroskopie können oberflächennahe Bereiche von Festkörpern bis in einige Mikrometer Tiefe analysiert werden.

Aus RBS-Spektren kann man unter anderen die Schädigung des Matrixgitters nach der Implantation und die Verteilung der implantierten Ionen bestimmen. Bei der RBS wird ein Strahl aus leichten Ionen (üblicherweise H^+ oder He^+) mit einer bestimmten Energie auf die zu untersuchende Festkörperoberfläche gerichtet. Die an den Atomen des Festkörpers gestreuten Ionen werden registriert und die Rückstreausbeute über der Energie der zurückgestreuten Ionen aufgetragen. Erfolgt der Einschuss der Ionen im kristallinen Material in Richtung einer niedrig indizierten Kristallachse, sinkt die Wahrscheinlichkeit für Kernstöße aufgrund des Kanalisierungseffektes. Bei einem geschädigten Kristallgitter (z.B. nach Ionenimplantation) treten bevorzugt Stöße mit deplazierten Gitteratomen auf, wenn in Kanalisierungsrichtung eingestrahlt wird. Eine andere Möglichkeit der Einstrahlung ist der Einschuss der Ionen in *random*-Richtung. Dabei wird die Probe zum Ionenstrahl verkippt und während der Messung zusätzlich noch um die Oberflächennormale rotiert.

Am Institut für Festkörperphysik der Friedrich-Schiller-Universität Jena wurden mit der Rutherford-Rückstreu-Spektroskopie (RBS) die Proben mit vergrabenen Ge-Nanokristalliten in 4H-SiC(0001)-Substraten, die mit dem Verfahren der Ionen- Implantation und anschließender Temperung erzeugt wurden, charakterisiert.

Die Rutherford-Rückstreu-Spektroskopie (RBS) wurde in Kanalisierungsrichtung entlang der kristallographischen [0001]-Achse des 4H-SiC-Substrates mit 1,4MeV He^+ -Ionen und unter einem Rückstrewinkel von 170° durchgeführt. Diese Konfiguration erlaubt, die Schädigung im Si-Untergitter mit einer Tiefenauflösung von etwa 7nm in der oberflächennahen Region des SiC-Wafers und die Ge-Verteilung zu detektieren.

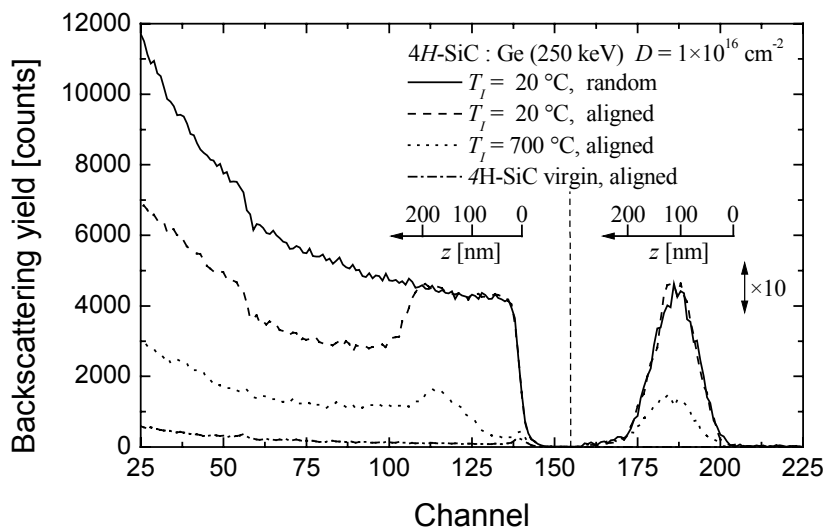


Abb. 3: Rücksteuspektren von 1,4MeV He^+ -Ionen an 4H-SiC implantiert mit 250keV Ge^+ -Ionen bei Raumtemperatur und 700°C für Messungen in Zufalls- und Kanalisierungsrichtung. Rechts im Bild sind die Rückstreureignisse an den implantierten Ge-Atomen sichtbar. Zur besseren Veranschaulichung ist die Ge-Komponente der Spektren um den Faktor 10 überhöht. (Abbildung aus [SCHUBERT 2002])

Abbildung 3 zeigt RBS-Spektren von implantierten Proben. Die Intensität der Rückstreuung für Einfall in Kanalisierungsrichtung erreicht für Proben, die bei 20°C implantiert wurden, die gleiche Intensität wie für Einfall in *random*-Richtung. Dies ist ein Indiz für die Bildung einer amorphen SiC-Schicht ausgehend von der Oberfläche bis in eine Tiefe von etwa 200nm. Für Proben, die bei 700°C implantiert wurden, ist die Intensität der Rückstreuung für gerichteten Einfall reduziert. Es tritt nur eine geringe Gitterschädigung, hauptsächlich in einer Tiefe von 100-230nm auf. Diese liegt tiefer als das Maximum der Ge-Verteilung. Auch im Bereich des Rückstreusignals von Ge-Atomen ist die Intensität der Rückstreuung für Einfall in Kanalisierungsrichtung nach der Implantation bei 700°C im Vergleich zum Einfall in *random*-Richtung reduziert. Dies deutet auf einen partiellen Einbau von Ge in das SiC-Gitter entlang der [0001]-Richtung während der Implantation hin. Germanium Atome, die in den Si und C Atomreihen liegen, werden abgeschattet und somit seltener von den He^+ -Ionen gestoßen. Deshalb ist die Intensität der Rückstreuung für

Einfall in Kanalisierungsrichtung geringer als für Einfall in *random*-Richtung, bei dem alle Ge-Atome für den einfallenden Strahl sichtbar sind. Die Integration des Rückstreusignals für Germanium ergibt, dass 65% der Ge-Atome nach der Implantation bei 700°C entlang der [0001]-Richtung lokalisiert sind. Dabei ist unklar, ob die Ge-Atome auf Gitterplätzen oder *interstitiell* entlang der [0001]-Achse sitzen.

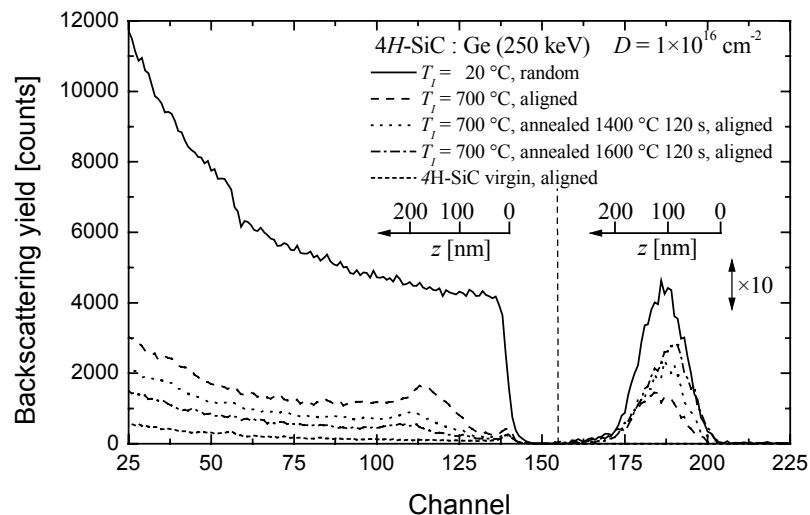


Abb. 4: Rückstreuungsspektren von 1,4 MeV He^+ -Ionen an 4H-SiC implantiert mit 250 keV Ge^+ -Ionen. Die Spektren zeigen die Effekte der nachträglichen Temperaturbehandlung bei 1400°C bzw. 1600°C. Rechts im Bild sind die Rückstreuungseignisse an den implantierten Ge-Atomen sichtbar. Zur besseren Veranschaulichung ist die Ge-Komponente der Spektren um den Faktor 10 überhöht. (Abbildung aus [SCHUBERT 2002])

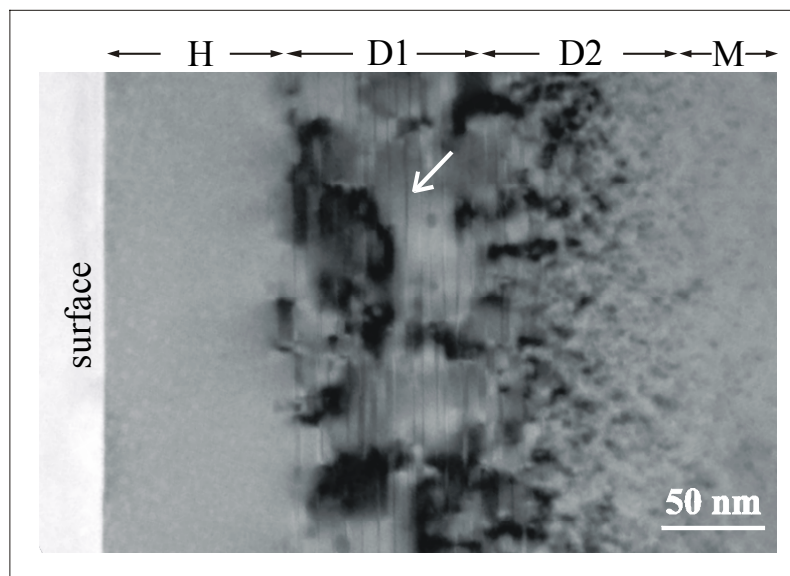
Nach der Temperaturbehandlung bei 1400°C für 120 s wurde die Gitterschädigung des implantierten SiC-Wafers reduziert. Zusätzlich ist im RBS-Spektrum für Einfall in Kanalisierungsrichtung auch ein größerer Anteil der Ge-Atome sichtbar. Das bedeutet, dass ein Teil der Ge-Atome die Si-, C- bzw. Zwischengitterplätze entlang der [0001]-Atomreihe verlassen haben müssen. Dieses Verhalten tritt nach einer Temperaturbehandlung bei 1600°C für 120 s verstärkt auf und ist in der Oberflächenregion (80 nm Tiefe) besonders ausgeprägt. Dies kann mit der Bildung von Ge-Clustern in einer oberflächennahen Schicht erklärt werden. [SCHUBERT DISS.]

3.3. *Transmissions-Elektronen-Mikroskopie (TEM)*

Die auf den Grundlagen der Transmissions-Elektronen-Mikroskopie (TEM) basierenden Untersuchungsverfahren ermöglichen eine Charakterisierung der Mikrostruktur und der Mikrochemie der Quantendots auf atomarer Ebene. Der Vorteil dieser Methoden besteht in der Möglichkeit einer direkten Darstellung eines einzelnen Quantendots. Nachteilig ist die aufwendige und nicht zerstörungsfreie Probenpräparation. Dadurch können auch keine Untersuchungen zum Alterungsprozess der Nanokristallite an derselben Probe durchgeführt werden.

Für die Transmissions-Elektronen-Mikroskopie wurden Probenquerschnitte von vergrabenen Ge-Nanokristalliten in einer 4H-SiC-Matrix präpariert und am Institut für Festkörperphysik der Friedrich-Schiller-Universität Jena vermessen. [GORELIK DISS.].

Abb. 5: Hellfeld-TEM-Aufnahme von dem 4H-SiC-Wafer nach der



Implantation mit Ge^+ -Ionen ($D = 1 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-2}$, $E_0 = 250 \text{ keV}$) bei 700°C und nachfolgender Temperung bei 1600°C für 120s. (Abbildung aus [SCHUBERT 2002])

Die Hellfeld-TEM-Aufnahme (Abb. 5) von dem SiC-Wafer nach der Implantation mit Ge^+ und Temperung bei 1600°C kann in vier Bereiche unterteilt werden. Der oberflächennahe

Bereich H weist eine hexagonale SiC-Struktur mit Hohlräumen auf. Diese Hohlräume wurden nach der Temperung gebildet, wahrscheinlich durch die Agglomeration von Vakanzen, die durch die Implantation entstanden sind. Die zerstörte Region D kann in zwei Bereiche D1 und D2 unterteilt werden. Der Bereich D1 weist zahlreiche Stapelfehler parallel zu der [0001]-Wachstumsrichtung der 4H-SiC Matrix auf. Zusätzlich kommt es zur Agglomeration von Punktdefekten aller Art (Si, C und Ge in Zwischenräumen und Si- oder C-Vakanzen). Die Punktdefektcluster (auch Nanokristallite) und die planaren Defekte treten nicht unabhängig voneinander auf. Gewöhnlich enden die Stapelfehler mit diesen Clustern. Gorelik [GORELIK DISS.] beschreibt ein Modell zur Bildung von Ge-Ausscheidungen in der Region D1. Dort haben sich die Ge-Nanokristallite hauptsächlich gebildet. Ihre Verteilung ist nicht homogen. Im Bereich D2 ist eine Vielzahl von Punktdefekten, die ihren Ursprung in der Defektdiffusion während und nach der Implantation haben, sichtbar. Stapelfehler wurden im Bereich D2 nicht beobachtet. Der vierte Bereich M markiert die nahezu unzerstörte SiC-Matrix.

Mit Hilfe der energiedispersiven Röntgen-Spektroskopie (EDX) konnte die Germanium-Verteilung in der SiC-Matrix bestimmt werden. Das Maximum der Ge-Verteilung liegt in einer Tiefe von 100nm. Der erhöhte Ge-Gehalt in den Clustern verglichen mit der durchschnittlichen Ge-Konzentration wurde mit Hilfe des energiedispersiven EDX-Signals bestimmt. Die präzise Bestimmung des Ge-Gehaltes in Nanokristalliten ist mit großen Fehlern behaftet. Der Grund hierfür ist die ungenaue Bestimmung des Volumenanteils des Clusters innerhalb des beleuchteten Probengebietes [GORELIK DISS.].

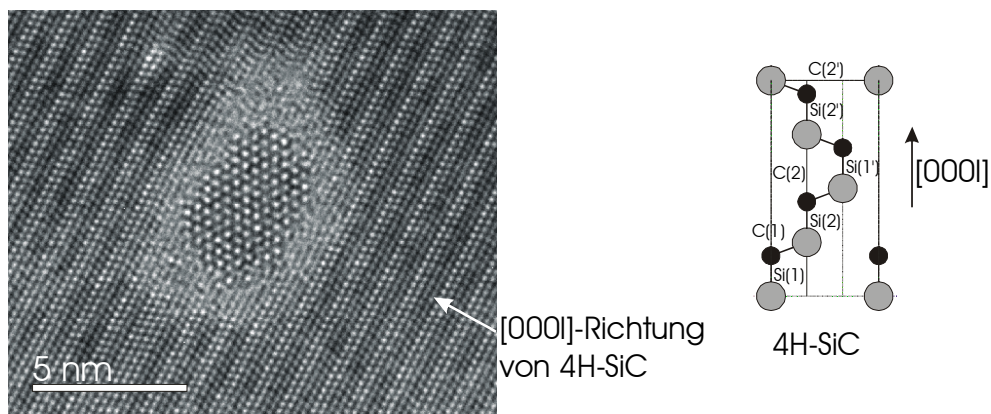


Abb. 6: Hochauflösende Transmissions-Elektronen-Mikroskopie Aufnahme

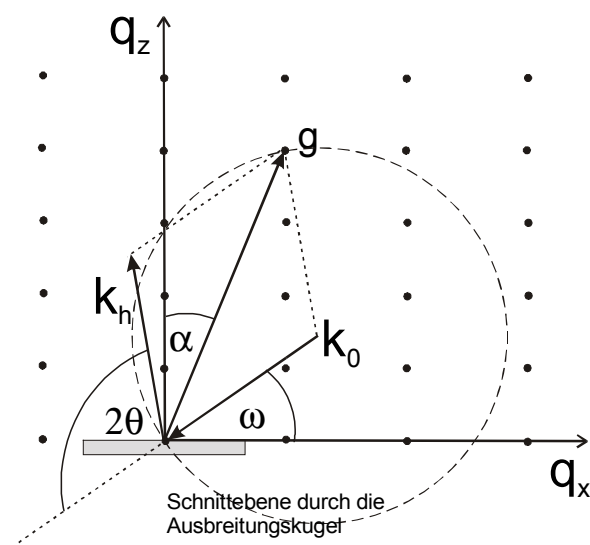
Die Proben mit vergrabenen Ge-Nanokristalliten in 4H-SiC[0001]-Substraten, die mit dem Verfahren der Ionen-Implantation und anschließender Temperung erzeugt wurden, konnten unter anderem auch mit hochauflösender Transmissions-Elektronen-Mikroskopie (HRTEM) charakterisiert werden. Ein typischer Nanokristallit ist in Abbildung 6 zu sehen. Die Nanokristallite sind nicht entlang der [0001]-Achse des SiC-Kristalls orientiert. Dies erklärt das erhöhte RBS-Signal für gerichteten Einfall entlang der [0001]-Achse des 4H-SiC-Substrates nach der Temperaturbehandlung im Vergleich zum RBS-Signal nach der Implantation, aber vor der Temperaturbehandlung.

3.4. Charakterisierung mit Röntgenstrahlen

Die Röntgendiffraktometrie ermöglicht eine zerstörungsfreie Charakterisierung der Quantendots, der umgebenen Matrixbereiche und des verwendeten Substratmaterials. Es können auch Untersuchungen zum Alterungsprozess der Nanokristallite und Störungen in der Matrix an derselben Probe durchgeführt werden. Bei röntgenographischen Analyseverfahren wird über alle zur Streuung beitragenden Nanokristallite in der erfassten Probenfläche von einigen Quadratmikrometern bis Quadratmillimetern gemittelt. Man erhält Integralaussagen, die jeweils ein makroskopisches Ensemble von Nanokristalliten charakterisieren, in Ergänzung zu den mit TEM bzw. AFM gewonnen Angaben, die sich jeweils auf Einzelkristallite beziehen.

Die Ewald-Konstruktion stellt die Verbindung zwischen dem reziproken Raum der Probe und dem Diffraktometer her. Mit ihr kann man die Beugungsbedingungen graphisch veranschaulichen, nach denen nur dann eine Reflexion stattfindet, wenn die Ausbreitungskugel der Strahlung einen reziproken Gitterpunkt schneidet. Die Ewald-Konstruktion wird nicht nur für die Darstellung von Röntgenbeugung, sondern auch für Elektronen- und Neutronenbeugung eingesetzt. Ein Vorteil dieser Konstruktion ist es, dass man in einem Bild Proben- und Justiereinflüsse übersichtlich darstellen kann.

In Abbildung 7 ist eine asymmetrische Reflexion dargestellt. Das graue Rechteck symbolisiert die Probe und damit die relative Lage des realen Raumes.



\mathbf{k}_0 Wellenvektor des einfallenden Strahles	2θ doppelter Braggwinkel
\mathbf{k}_h Wellenvektor des ausfallenden Strahles	ω Einfallswinkel
\mathbf{q}_x Achse parallel zur Oberfläche	\mathbf{g} reziproker Gittervektor
\mathbf{q}_z Achse senkrecht zur Oberfläche	α Ebenenverkipfungswinkel

Abb. 7: Darstellung einer asymmetrischen Reflexion im reziproken Raum

Der Wellenvektor \mathbf{k}_0 der einfallenden Strahlung bildet mit der Oberfläche bzw. der \mathbf{q}_x -Achse den Einfallswinkel ω . Der Winkel zwischen \mathbf{k}_0 und \mathbf{k}_h ist der doppelte Braggwinkel 2θ . Der Ebenenverkipfungswinkel α ist der Winkel zwischen der

Oberflächennormalen der Probe (in Abb. 7 die q_z -Achse) und der Netzebenennormale der entsprechenden Reflexion.

Mit Hilfe der Ewald-Konstruktion lässt sich der Bereich des reziproken Gitters angeben, der durch die Messung von Braggreflexen im Reflexionsfall bzw. im Transmissionsfall erfasst werden kann.

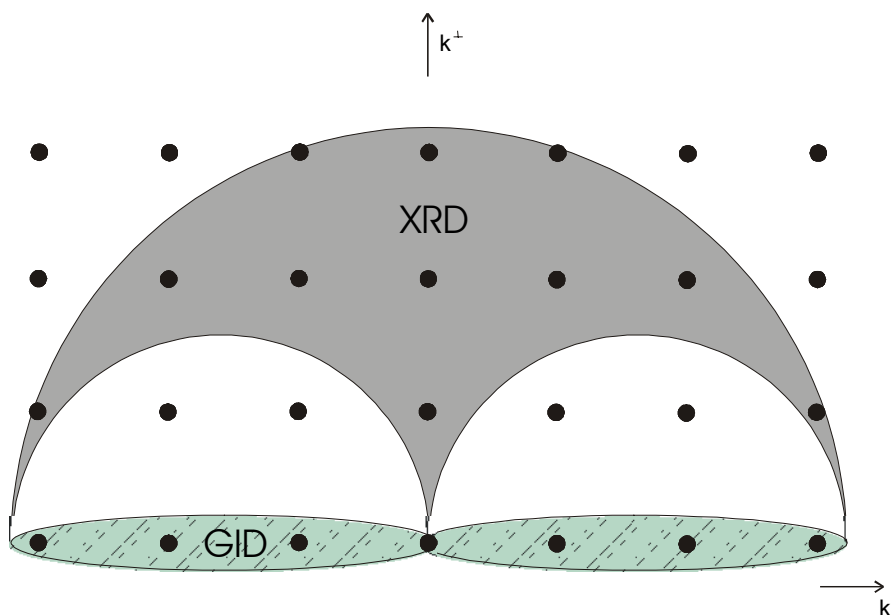


Abb. 8: Messbereich im reziproken Raum in Reflexion (grauer Bereich), in Transmission (weißer Bereich) und mit streifendem Einfall (schraffierter Bereich)

Die Radien der kleinen Halbkreise sind die reziproke Wellenlänge $1/\lambda$ der Messstrahlung. Innerhalb dieser Kreise befindet sich ein Gebiet, in dem Messungen in Transmission erfolgen, es wird als Laue-Gebiet bezeichnet. Der große Halbkreis beschreibt das maximal messbare Gebiet mit dieser Wellenlänge. Außerhalb der kleinen Kreise aber innerhalb des großen Halbkreises liegt das Gebiet, in dem Messungen in Reflexion durchgeführt werden. Es wird als das Bragg-Gebiet (grau markierter Bereich) bezeichnet.

Alle Reflexe auf der k_{\perp} - und k_{\parallel} -Achse sind symmetrische Reflexe. Die Reflexe auf der k_{\perp} -Achse sind in Reflexionsgeometrie messbar und auf der k_{\parallel} -Achse in Transmission. Die anderen Reflexe innerhalb des Bragg-Gebietes sind in der asymmetrischen Geometrie

messbar. Der schraffierte Bereich kennzeichnet das Gebiet, das mit der Technik des streifenden Einfalls (GID) analysiert werden kann. Die Beugungsgeometrie der „*Grazing Incidence Diffraction*“ (GID) ermöglicht die Messung von *in-plan* Gitterparametern in der Nähe der Probenoberfläche. Kapitel 3.4.2. beschreibt dieses Verfahren näher.

3.4.1. Untersuchung von Nanokristalliten - XRD

3.4.1.1 verschiedene Messregime

Im reziproken Raum steckt die Information über die reale Gitterstruktur der Probe, die man mit Beugungsmethoden gewinnen kann. Dies bedeutet, wenn eine gewisse Anzahl reziproker Gitterpunkte vermessen wurden, lassen sich Aussagen zu den Eigenschaften des Substrates und den aufgewachsenen bzw. implantierten Nanokristalliten, treffen, wie zum Beispiel die Größe, die Anpassung an des Matrixgitter und die Orientierungsverteilung der Nanokristallite.

In der Abbildung 9 sind die verschiedenen Meßmethoden skizziert. Die Ewald-Kugel bleibt während eines *Scans* über einen reziproken Gitterpunkt im Nullpunkt fixiert. Ein ω -*Scan* (Drehung der Probe) verläuft angular und ein $\omega/2\theta$ -*Scan* (Drehung der Probe und des Detektors gleichzeitig) verläuft radial. Bei einem 2θ -*Scan* (Drehung des Detektors, $\omega = \text{const.}$) wird entlang einer Kreisbahn abgetastet, ohne die Position der Ewald-Kugel im reziproken Raum zu ändern. Eine ϕ -Rotation (Drehung der Probe um die Oberflächennormale) bedeutet eine Drehung um die \mathbf{q}_z -Achse, wenn die Oberflächennormale parallel der \mathbf{q}_z -Achse ist. Eine Drehung um χ (Neigung der Probe) entspricht einer Drehung um die \mathbf{q}_x -Achse.

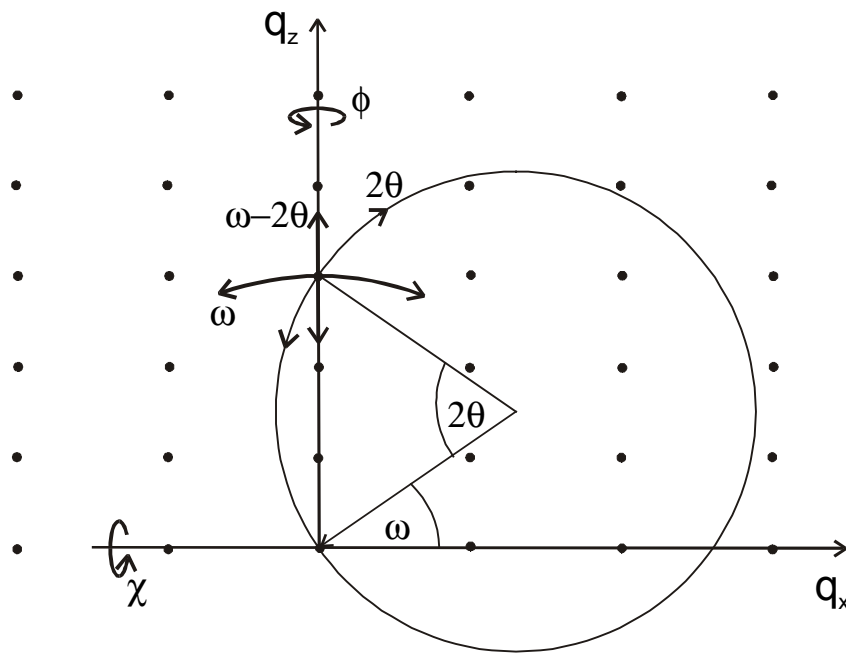


Abb. 9: Scan-Modi im reziproken Raum

Um die hier vorgestellten Messmöglichkeiten und die entsprechende Justage durchführen zu können, wird ein Sechs-Kreis-Goniometer benötigt. Weiterhin erfordert das kleine streuende Volumen der Nanokristallite eine intensitätsstarke Röntgenquelle. Messungen am Drehanodensystem im Institut für Optik und Quantenelektronik der Friedrich-Schiller-Universität Jena zeigten, dass die Intensität für die Messung von Nanokristallitreflexen bei den hier vorgestellten Proben zu gering ist.

Deshalb wurden die Messungen an diesen Proben, die im Rahmen dieser Arbeit charakterisiert wurden, am Synchrotron in Grenoble durchgeführt.

3.4.1.2 Rossendorfer Beamline (ROBL) an der European Synchrotron Facility (ESRF) in Grenoble

Die ROBL-Beamline an der ESRF wird vom Forschungszentrum Rossendorf betrieben und befindet sich am Ablenkmagneten BM 20. An dieser Beamline sind zwei voneinander unabhängigen Messplätze, die alternativ genutzt werden können, eingerichtet. Im Radiochemielabor können Proben, die verschiedene Radionuklide enthalten, hinsichtlich ihrer chemischen Zusammensetzung analysiert werden. Hierzu werden Röntgen-Absorptions-Feinstruktur-Messungen (XAFS) durchgeführt. Das materialwissenschaftliche Labor ist für die strukturellen Charakterisierung von Materialien mit hochauflösender

Diffraktometrie und Reflektometrie geeignet. Dieser Messplatz wurde für die Untersuchung der Nanokristallit-Proben genutzt.

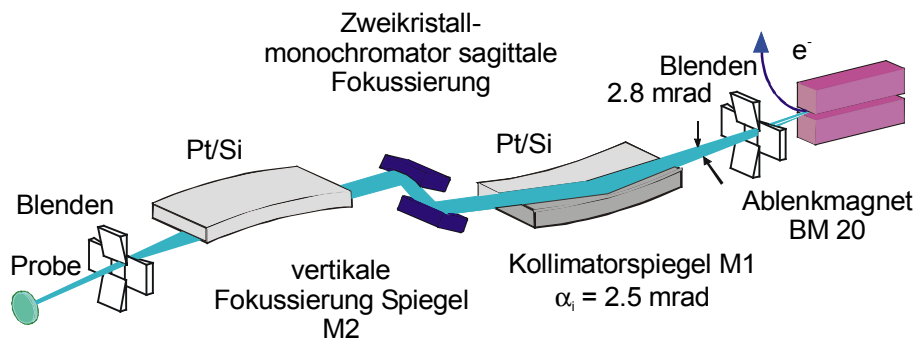


Abb. 10: Schema der Röntgenoptik der ROBL-Beamline an der ERSF, die Spiegel – Doppelkristallmonochromator – Spiegel - Anordnung formt einen monochromatischen Röntgenstrahl (nach [MATZ 1999])

Abbildung 10 zeigt die Röntgenoptik der Beamline. Der erzeugte Röntgenstrahl wird am ersten Spiegel (M1) reflektiert, passiert anschließend den Silizium-Doppelkristallmonochromator und wird nochmals über einen Spiegel (M2) gelenkt. Die zwei Spiegel, auf die der Strahl mit einem Einfallswinkel von 2.5 mrad trifft, unterdrücken die höheren Harmonischen der Messstrahlung bis zu 10^{-4} . Diese Spiegel sind mit parallelen Streifen aus Silizium bzw. Platin beschichtet. Die Energie der Röntgenstrahlung ist in dem Energiebereich von 5keV ($\lambda = 0,25\text{nm}$) bis 35keV ($\lambda = 0.035\text{nm}$) frei wählbar. Der Siliziumspiegel wird in dem Energiebereich von 5keV–12keV eingesetzt und darüber von 12keV–35keV der Platinspiegel gewählt. Der erste Spiegel ist gekrümmt, um den Röntgenstrahl auf den ersten Monochromatorkristall zu kollimieren. Der Doppelkristallmonochromator befindet sich in einer Entfernung von 28.9m vom Ablenkmagnet. Er ist so konstruiert, dass der Röntgenstrahl unabhängig von seiner Energie den Monochromator immer auf gleicher Höhe verlässt (*fixed-exit*). Bei den im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Messungen diente der Silizium-(111)-Reflex zur Monochromatisierung. Er erreicht eine Energieauflösung von $1,5 \cdot 10^{-4}$ - $2,5 \cdot 10^{-4}$.

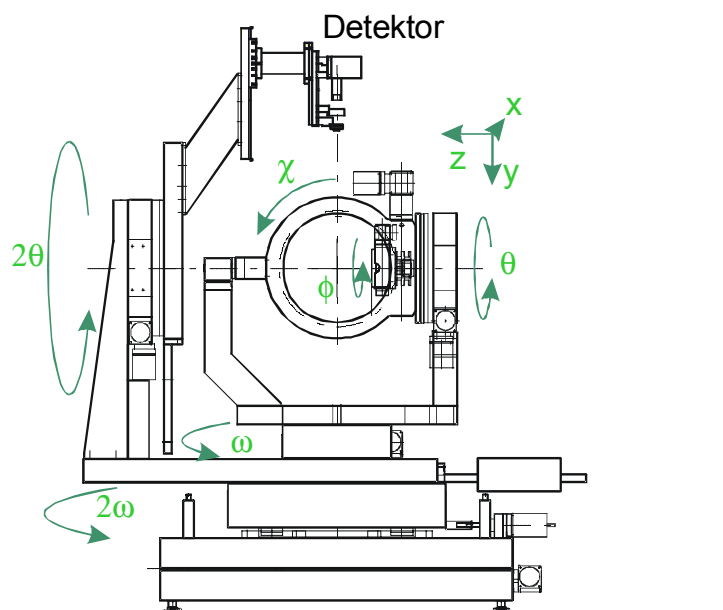


Abb. 11: Sechs-Kreis-Goniometer bei ROBL, Probenkreise: θ , ω , ϕ und χ , Detektorkreise: 2θ und 2ω , Translationen: x , y und z (nach [MATZ 1999])

Am Messplatz der Materialforschung steht ein Sechs-Kreis-Goniometer (HUBER) zur Verfügung (siehe Abb. 11). Zusätzlich zu den Probenkreisen ω , ϕ und χ , ist noch ein weiterer Kreis θ vorhanden. Der Detektor lässt sich durch seine zwei Kreise 2θ und 2ω innerhalb seiner geometrischen Grenzen an jede beliebige Position des Raumes bewegen. Bei allen an dieser Beamline durchgeführten Messungen wurde das Goniometer in horizontaler Geometrie betrieben, d.h. der Röntgenstrahl war π -polarisiert.

3.4.2. Untersuchung von Nanokristalliten – oberflächenempfindliche Methoden

Ein anderes Untersuchungsverfahren, um aufgewachsene oder oberflächennahe Nanokristallite bzw. Schichten zu charakterisieren, ist die Röntgenbeugung mit streifendem Einfall. Man unterscheidet zwischen der Technik der Kleinwinkelstreuung mit streifendem Einfall (GISAXS: *grazing incidence small angle x-ray scattering*) und der Röntgenbeugung unter streifendem Einfall (GID: *grazing incidence x-ray diffraction*).

Bei der GISAXS-Technik streift der einfallende Röntgenstrahl die Probenoberfläche mit einem Einfallswinkel α_i , der in der Größenordnung des kritischen Winkels der Totalreflexion α_c liegt. Die gestreute Intensität wird unter einem streifenden Ausfallswinkel α_f mit einem positionsempfindlichen Detektor registriert. Die Eindringtiefe des Röntgenstrahls wird über den Einfalls- und Ausfallswinkel kontrolliert und ist während einer Messung konstant. Das GISAXS-Signal wird durch Dichtemodulationen erzeugt, die von Oberflächenrauigkeit oder kleinen Ausscheidungen auf der Oberfläche bedingt sind. Für kleine Inseln oder Nanokristallite liefert das GISAXS-Signal Informationen über die Form, die Größenverteilung und die Korrelation der Inseln. Um Streuungen an der Luft zu vermeiden, muss die Probe während der Messung in Vakuum- oder Helium-Umgebung platziert werden. Im allgemeinen können Strukturen mit einer Dicke zwischen 10nm und 200nm untersucht werden. [METZGER 1999, SCHMIDBAUER 1999] Die Charakterisierung von Nanokristalliten unmittelbar während des Wachstums stellt eine moderne Erweiterung dieses Verfahrens dar [RENAUD 2003].

Die Technik der *grazing incidence x-ray diffraction* (GID) ist eine Kombination der Braggbedingung mit der Bedingung für die äußere Totalreflexion an Kristalloberflächen. Die Eindringtiefe der Röntgenstrahlung, die typischerweise zwischen 1-10 μ m liegt, wird auf 1-10nm reduziert. Deshalb eignet sich dieses Messverfahren für die Charakterisierung von sehr dünnen Schichten und Halbleiterheterostrukturen. Der Hauptvorteil der GID-Anordnung ist die Messung der *in-plan* Gitterparameter in Abhängigkeit von der Tiefe unterhalb der Probenoberfläche. Die experimentelle Anordnung ist wie folgt: Ein monochromatischer, paralleler Röntgenstrahl streift die Probenoberfläche mit einem Einfallswinkel α_i , der in der Größenordnung des kritischen Winkels der Totalreflexion α_c liegt. Die Probe wird um die Oberflächennormale gedreht, bis für die Netzebenen, die senkrecht zur Oberfläche liegen, die Bragg-Bedingung mit dem Bragg-Winkel in der Ebene $2\theta_B = \theta_i + \theta_f$ erfüllt ist. Mit einem positionsempfindlichen Detektor kann die gebeugte Intensität in Abhängigkeit vom Einfallswinkel α_i bzw. vom Ausfallswinkel α_f registriert werden. Wenn der Einfallswinkel α_i und der Ausfallswinkel α_f kleiner sind als der kritische Winkel der Totalreflexion α_c , dann ist die Eindringtiefe des Röntgenstrahls extrem reduziert. Sie nimmt mit zunehmendem α_i oder α_f zu, steigt aber nicht mehr unverzüglich an, wenn einer der Winkel den kritischen Winkel der Totalreflexion α_c

überschreitet. Im allgemeinen ist die Eindringtiefe maximal 400-600nm. Ein ausgedehntes *3D-reciprocal space mapping* von einem reziproken Gitterpunkt in der GID-Geometrie aufgenommen, erlaubt die komplette Charakterisierung von der Gestalt, der Verspannung und der Korrelation von freistehenden und vergrabenen Nanokristalliten. [HOLY 1998, METZGER 1999, ZHUANG 1999, FEWSTER 2001, STANGL 2001, ROCH 2002] Infolge der Beschränkung in der Tiefe kann das Substratmaterial bzw. die Matrix nicht vollständig charakterisiert werden. Ein Ziel der vorliegenden Arbeit war auch die umfassende Charakterisierung der Matrix und ihrer Schädigungen, die durch die Implantation von Ge⁺-Ionen entstanden sind. Deshalb wurden vorerst nur Messungen in herkömmlicher Strahl-Geometrie (XRD) durchgeführt.

3.4.3. Anormale Dispersion

Eine Untersuchungstechnik zur Bestimmung von stöchiometrischen Zusammensetzungen in Nanokristalliten sind Beugungsexperimente in der Nähe von Absorptionskanten unter Ausnutzung der anormalen Dispersion. Besonders häufig wird in der Literatur die Bestimmung des Ge-Anteils von Strukturen beschrieben [GOERIGK 2001, MAGALHAES-PANIAGO 2002, SCHÜLLI 2003]. Dabei werden sowohl *coplanare* Röntgenbeugungen als auch Aufnahmetechniken der Röntgenbeugung mit streifendem Einfall und der Kleinwinkelstreuung mit der Methode der anormalen Dispersion kombiniert.

Beispielsweise kann der Konzentrationsverlaufes von Ge innerhalb von Inseln auf Si(001) aus dem Vergleich der Intensitätsverhältnisse für Strahlungsenergien vor der Ge-K-Absorptionskante und bei der Ge-K-Absorptionskante für verschiedene Bragg-reflexionen in der *grazing incidence* Geometrie bestimmt werden [SCHÜLLI 2003].

Auch für andere Probensysteme eignet sich die Röntgenbeugung in der Nähe von Absorptionskanten unter Ausnutzung der anormalen Dispersion. [LYON 2001] beschreibt die Charakterisierung von kleinen Ausscheidungen in einem Cu-Ni-Fe-Einkristall.

4. Modellvorstellungen

Es sollen zwei verschiedene Typen von Ge-Nanokristalliten charakterisiert werden, zum einen aufgewachsene Ge-Nanokristallite auf einem 6H-SiC-Substrat und zum anderen Ge-Nanokristallite, die durch Implantation von Ge^+ -Ionen in einer 4H-SiC-Matrix und anschließender Temperaturbehandlung entstanden sind. Für mögliche Anwendungen in der Optoelektronik sind besonders die eingebetteten Ge-Nanokristallite interessant.

4.1. Besonders wichtige Eigenschaften der Ge-Nanokristallite

Aus theoretischen Überlegungen ergeben sich die besonders relevanten Eigenschaften der Ge-Nanokristallite für die Erzeugung von Photolumineszenzstrahlung. Von WEISSKER (2002, 2003) wurden die optischen Eigenschaften von Ge- und Si-Nanokristalliten mit Hilfe von *ab initio*-Rechnungen in Abhängigkeit der Nanokristallitgröße untersucht. Die Berechnungen basieren auf der Näherung unabhängiger Teilchen und einer Pseudopotential-Planwellen-Methode. Es zeigt sich, dass nicht nur das optische Spektrum, sondern auch die Oszillatorstärken von Übergängen in der Nähe der Absorptionskante von der Nanokristallitgröße abhängig sind. Bei den Berechnungen wird von einer einheitlichen Nanokristallitgröße und einer mit Wasserstoff abgesättigten Nanokristallit-Oberfläche ausgegangen. Dies sind wichtige Voraussetzungen für das Auftreten einer starken Photolumineszenzstrahlung. Mechanische Spannungen führen besonders bei Ge-Nanokristalliten zu einem drastischen Rückgang der Oszillatorstärke [WEISSKER 2002]. Deshalb wird bei der Erzeugung der Nanokristallite eine möglichst schmale Größenverteilungsfunktion und geringe Verspannungen innerhalb der Nanokristallite angestrebt.

Welche Probenqualität ist zu erwarten? Aus den AFM-Aufnahmen der aufgewachsenen Ge-Nanokristallite erkennt man, dass die Ge-Nanokristallite zueinander nicht korreliert sind

und nur annähernd eine einheitliche Größe besitzen. Es muss mit einer relativ breiten Größenverteilung gerechnet werden. Diese Aussage trifft auch auf die durch Implantation hergestellten, eingebetteten Ge-Nanokristallite zu. Weiterhin muss bei beiden Probenotypen mit einer Orientierungsverteilung der Ge-Nanokristallite gerechnet werden. Zusätzlich können noch Deformationen der Ge-Nanokristallite auftreten, die in homogene und inhomogene Anteile unterteilt werden können. Daraus ergeben sich folgende Modellparameter, mit der beide Ge-Nanokristallit-Typen beschrieben werden können:

- Teilchen einer bestimmten Form (z.B. Kugeln) mit
- einer Größenverteilung
- einer Orientierungsverteilung
- einer möglichen homogenen Deformation (z.B. verursacht durch hydrostatischen Druck)
- einer möglichen inhomogenen Deformation

Die Bestimmung möglichst vieler dieser Parameter auf der Basis röntgendiffraktometrischer Daten erfordert eine präzise Vermessung von möglichst vielen Beugungsordnungen der Ge-Nanokristallit-Reflexe. Aufgrund der fehlenden Korrelation zwischen den einzelnen Ge-Nanokristalliten und ihres geringen Volumens sind, trotz der Verwendung von Synchrotronstrahlung, aber nur geringe Intensitäten der abgebeugten Strahlung zu erwarten. Die Experimente müssen zeigen, inwieweit unter diesen Bedingungen eine Bestimmung der aufgeführten Parameter möglich ist.

4.2. Einfluss von Größen- und Orientierungsverteilung auf das Beugungsprofil

Für nanokristalline Pulver, d.h. für den Extremfall einer beliebigen Orientierung der Nanokristallite zueinander, ist der Einfluss der Größenverteilung der Teilchen auf das Beugungsprofil gut untersucht [KRILL 1998]. Wählt man z.B. die integrale Breite eines Beugungsmaximums $\beta(q)$ als charakteristische Größe, so lässt sich daraus eine effektive Teilchengröße berechnen [WARREN 1990]. Die integrale Breite einer Reflexionskurve $\beta(q)$ dargestellt im reziproken Raum ist definiert als der Quotient aus der Integralintensität

(I_{integral}) und der Peakintensität (I_{max}). Im Fall kugelförmiger Teilchen ergibt sich folgender Zusammenhang zwischen der integralen Breite $\beta(q)$ und der Häufigkeitsverteilung $h(D)$ der Kugeln mit dem Durchmesser D .

$$\beta(q) = \frac{1}{0,75} \frac{\int_0^{\infty} D^3 h(D) dD}{\int_0^{\infty} D^4 h(D) dD} = \frac{1}{0,75} \frac{1}{D^*} \quad (4.2.1)$$

D^* ist damit der Quotient aus 4. und 3. Moment der Größenverteilung, d.h. der volumengemittelte Durchmesser der Teilchen, der aus der integralen Breite bestimmt werden kann. Eine Änderung der Teilchenform führt zu einer Variation des Vorfaktors bei D^* . Bei den im Rahmen dieser Arbeit zu untersuchenden Proben wird im Vergleich zu nanokristallinen Pulvern eine schmale Orientierungsverteilung zu erwarten sein. Eine ungeprüfte Anwendung von Gleichung (4.2.1) ist deshalb nicht möglich.

Somit wird der andere mögliche Extremfall analog einem Einkristall mit einer δ -förmigen Orientierungsverteilung untersucht, d.h. alle Nanokristallite weisen die gleiche Orientierung bezüglich der Matrix auf. Wenn man davon ausgeht, dass eine Vermessung der an den Nanokristalliten abgebeugten Intensität über mehrere Größenordnungen und damit eine genaue Profilanalyse kaum möglich sein wird, benötigt man ein einfaches Verfahren zur Bestimmung der Teilchengröße aus den gemessenen Reflexionskurven. Deshalb wurde in Analogie zur Stokes-Wilson-Methode [WARREN 1990] auch für orientierte Teilchen aus der integralen Breite die Teilchengröße D^* bestimmt [siehe Anhang A]. Es ergibt sich:

$$\beta(q) = \frac{1}{0,83} \frac{\int_0^{\infty} D^5 h(D) dD}{\int_0^{\infty} D^6 h(D) dD} = \frac{1}{0,83} \frac{1}{D^*} \quad (4.2.2)$$

D^* ist hier der Quotient aus 6. und 5. Moment der Größenverteilung, d.h. die Art der Mittelung und der Vorfaktor von D^* unterscheiden sich im Vergleich zu Gleichung (4.2.1). Die Variation des Vorfaktors von D^* in Abhängigkeit von der Orientierungsverteilung liegt in der Größenordnung von 10% und ist damit relativ unbedeutend. Der wesentliche Einfluss der Orientierungsverteilung der Nanokristallite auf die Bestimmung der Teilchengröße ist die Art der Mittelung von D^* . Bei orientierten Nanokristalliten liefert dieses Verfahren größere Werte für die durchschnittliche Teilchengröße.

Die integrale Breite im Winkelraum $\beta(2\theta)$ ergibt sich aus $\beta(q)$ (Gl. 4.2.2) wie folgt:

$$\text{für einen } \omega/2\theta\text{-Scan: } \beta(2\theta) = \lambda/2\pi * (\cos \theta)^{-1} * \beta(q) \quad (4.2.3)$$

$$\text{für einen } \omega\text{-Scan: } \beta(\omega) = \lambda/4\pi * (\sin \theta)^{-1} * \beta(q) \quad (4.2.4)$$

In Vorbereitung der röntgendiffraktometrischen Messungen und ihrer Auswertung wird der Einfluss einer Größenverteilung auf die zu erwartende Reflexionskurve untersucht, dabei wird zuerst eine δ -förmige Orientierungsverteilung, analog zum Einkristall, angenommen. KAISER (2002) hat hochauflösende Transmissions-Elektronen-Mikroskopie an Proben durchgeführt, die mit den selben Parameter hergestellt wurden, wie die in dieser Arbeit untersuchten Proben. Unter anderem wurde die Größenverteilung für ca. 60 Ge-Nanokristallite bestimmt. Das sich ergebende Histogramm kann mit einer logarithmischen Normalverteilung mit einer Breite von 2nm bezüglich des Radius gefittet werden (siehe [KAISER 2002]). Deshalb wird auch hier von einer logarithmischen Normalverteilung ausgegangen. Diese Verteilungsfunktion wird auch vielfach in der Literatur [KRILL 1998] für die Beschreibung der Größenverteilung von Nanokristalliten verwendet.

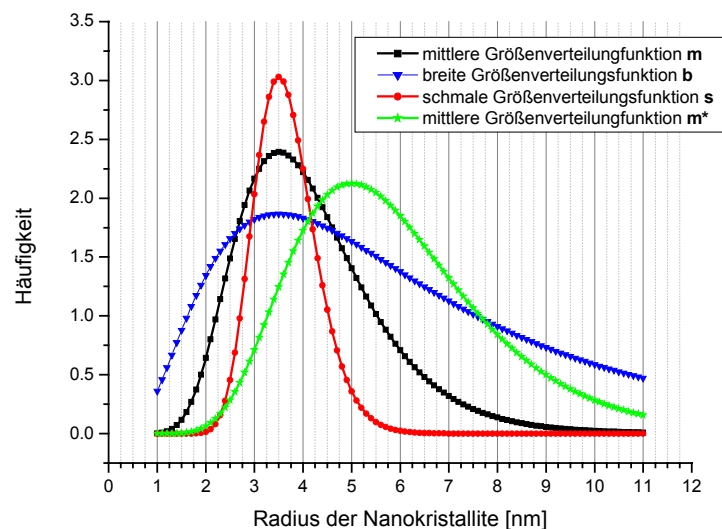


Abb. 12: verschieden angenommene logarithmischen Normalverteilung für kugelförmige Nanokristallite mit verschiedenen Breiten und Maxima

Abbildung 12 zeigt exemplarisch vier angenommene logarithmische Normalverteilungen mit verschiedenen Breiten und Maxima. Es ist die Häufigkeit des Auftretens von kugelförmigen Nanokristalliten mit dem Radius r in Abhängigkeit von r aufgetragen. Bei allen dargestellten Verteilungen ist die Summe über alle Kugelvolumina gleich. Das bedeutet, das kristalline Volumen insgesamt, welches zur Streuung beiträgt, ist konstant. Um den Einfluss der Größenverteilung auf die gemessenen Reflexionskurven abzuschätzen, wurde für undeformierte Kugeln die Teilchenverbreiterung $|D(\mathbf{q})|^2$ im reziproken Raum entlang der q_z -Achse mit der folgenden Formel (4.2.5) simuliert.

$$|D(\mathbf{q})|^2 = \left| \frac{4\pi}{3} r^3 \frac{3(\sin R - R \cos R)}{R^3} \right|^2 \quad \text{mit} \quad R = r q_z \quad (4.2.5)$$

Diese Intensitätsverteilung $|D(\mathbf{q})|^2$ wurde mit der Häufigkeit des entsprechenden Radius r bei einer vorgegebenen Verteilung multipliziert. Anschließend wurden die gewonnenen Resultate aller Kugeln summiert und die gesamte Intensitätsverteilung dargestellt (siehe Abb. 13).

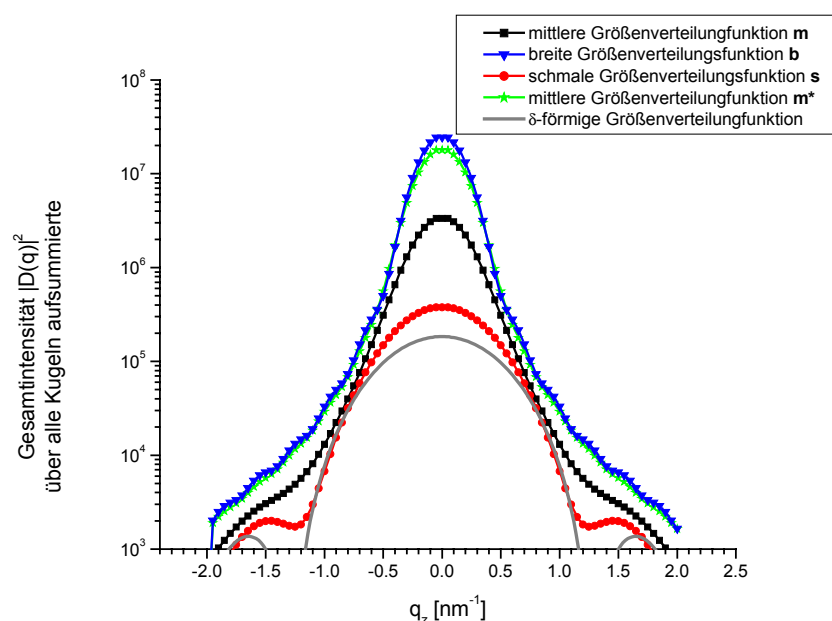


Abb. 13: Gesamte zu erwartende Intensitätsverteilung für einen $\omega/2\theta$ -Scan (dargestellt über dem reziproken Gittervektor q_z) für alle angenommenen logarithmischen Normalverteilungen der Ge-Nanokristallite aus Abb. 12 und einer δ -förmigen Größenverteilung mit dem Maximum bei 3,5nm

Abbildung 13 stellt die zu erwartende Intensitätsverteilung für einen $\omega/2\theta$ -Scan (dargestellt über dem reziproken Gittervektor q_z) für alle angenommenen logarithmischen Normalverteilungen der Ge-Nanokristallite aus Abbildung 12 und einer δ -förmigen Größenverteilung mit dem Maximum bei 3,5nm dar. Jede dieser Kurven wurde im Maximum mit einem Gauß-Profil gefittet und die Integralintensität, die Maximalintensität und die integrale Breite bestimmt (Tab. 1):

Tab. 1: Eigenschaften der gesamten Intensitätsverteilung in Abhängigkeit von verschiedenen angenommenen Größenverteilungen bei gleichem kristallinen Gesamtvolumen

	δ-förmig	s-schmal	m-normal	m*-normal	b-breit
Maximum der Größenverteilung	3,5nm	3,5nm	3,5nm	5,0nm	3,5nm
Breite der Größenverteilung	-	1,5nm	2,2nm	2,2nm	5,0nm
Integrale Breite* Reflexionskurve	1,076nm⁻¹	0,909nm⁻¹	0,549nm⁻¹	0,464nm⁻¹	0,436nm⁻¹
Integralintensität* Reflexionskurve	2,0*10 ⁵	3,5*10 ⁵	1,9*10 ⁶	8,5*10 ⁶	1,1*10 ⁷
Maximalintensität* Reflexionskurve	1,9*10 ⁵	3,8*10 ⁵	3,4*10 ⁶	1,8*10 ⁷	2,5*10 ⁷
D* nach Gl. 4.2.2	7,04nm	8,33nm	13,79nm	16,31nm	17,36nm

*Werte aus Fit mit Gauß-Profil bestimmt

Abbildung 13 und Tabelle 1 veranschaulichen insbesondere die Auswirkungen unterschiedlich breiter Größenverteilungen auf die Reflexionskurven und die aus der integralen Breite entsprechend Gleichung 4.2.2 bestimmten gemittelten Teilchengrößen D^* . Es wird auch deutlich, dass ohne zusätzliche Annahmen aus einer Änderung der Integralintensität nicht auf eine Änderung des kristallinen Gesamtvolumens geschlossen werden kann, da auch Änderungen der Breite der Größenverteilung der Kristallite bei konstantem kristallinen Gesamtvolumen zu einer Änderung der Integralintensität des Röntgenreflexes

führen. Die geringen Unterschiede zwischen den Reflexionskurven bei den sich deutlich unterscheidenden Größenverteilungen \mathbf{m}^* und \mathbf{b} weisen auf die Schwierigkeiten bei der Interpretation der Messergebnisse hin, die bei gleichzeitiger Veränderung mehrerer Probenparameter zu erwarten sind.

5. Messung an aufgewachsenen Ge-Nanokristalliten

Auf einem 6H-SiC-Wafer wurden mit MBE-Technik Ge-Nanokristallite aufgewachsen. Die Einzelheiten der Herstellung sind im Kapitel 2.3. beschrieben.

5.1. Charakterisierung der Ge-Nanokristallite

5.1.1. Größenbestimmung der Ge-Nanokristallite senkrecht und parallel zur Oberfläche

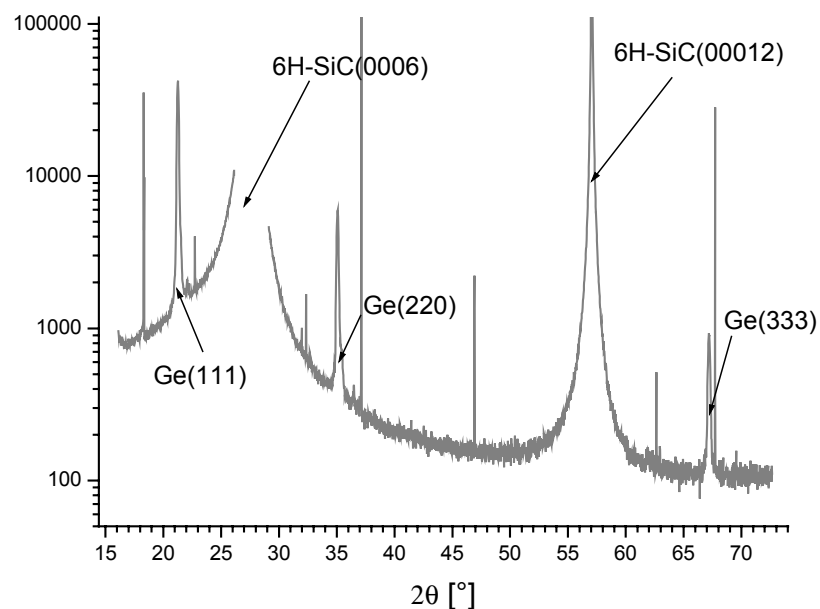


Abb.14: $\omega/2\theta$ -Scan im Winkelbereich von 16° bis 72°

In den Röntgendiffraktogrammen (Abb. 14), die im $\omega/2\theta$ -Modus mit der Synchrotronstrahlung ($\lambda=0,12\text{nm}$) am ESRF in Grenoble aufgenommen wurden, zeigten sich deutliche, gut auswertbare Ge-Reflexe [Ge(111), Ge(220) und Ge(333)], die den Ge-Nanokristalliten zugeordnet werden konnten.

Die Ge-Reflexe sind gegenüber den Einkristallreflexen der perfekten SiC-Matrix stark verbreitert. Reflexverbreiterungen können im Allgemeinen durch die apparativen Einflüsse der verwendeten Messanordnung (z.B. Divergenz der Röntgenstrahlung, spektrale Breite) und die Realstruktur der Probe, wie z.B. die Kristallitgröße, die Orientierungsverteilung von Kristalliten und die Gitterkonstantenschwankung innerhalb der Kristallite, hervorgerufen werden.

Die apparativen Verbreiterungen liegen in der Größenordnung von einigen tausendstel Grad, was die Halbwertsbreiten der SiC-Einkristallreflexe von $0,004^\circ$ belegen. Der Einfluss der apparativen Verbreiterungen auf die Kurvenprofile der Ge-Reflexe kann bei den hier beobachteten Halbwertsbreiten bzw. integralen Breiten in der Größenordnung von einigen zehntel Grad vernachlässigt werden. Die geringen Abmessungen der Ge-Nanokristallite in Richtung der Oberflächennormalen verursachen eine Reflexverbreiterung im $\omega/2\theta$ -Scan (Abb. 14) und die Kristallitgröße in lateraler Richtung eine Verbreiterung im ω -Diffraktogramm. Zusätzlich muss noch mit einer Orientierungsverteilung der Kristallite gerechnet werden, was zu einer Verbreiterung des Kurvenprofils im ω -Scan führt. Eine Gitterkonstantenschwankung bewirkt eine Reflexverbreiterung im $\omega/2\theta$ -Scan und im ω -Scan, wenn kein Analysatorkristall in der Dispersionsebene sondern nur eine Detektorblende verwendet wird. Die Detektorblende muss so schmal wie möglich gewählt werden, um den Einfluss einer Gitterkonstantenschwankung im ω -Scan möglichst zu minimieren. Die Faltung der einzelnen Beiträge zum Reflexionsprofil ergibt die gemessene Reflexionskurve $k(x)$.

Um die Teilchengröße der Ge-Nanokristallite in normaler und lateraler Richtung zu bestimmen, muss der Einfluss der Gitterkonstantenschwankung bzw. der Orientierungsverteilung abgeschätzt werden.

Die Ge-Nanokristallite treten in zwei verschiedenen Orientierungen bezüglich der SiC-Matrix auf ($\langle 111 \rangle$ und $\langle 110 \rangle$ -orientiert). Für die Halbwertsbreiten der Ge-Reflexe der $\langle 111 \rangle$ -orientierten Nanokristallite gemessen in zwei Ordnungen (111) und (333) lässt sich

für reine Teilchenverbreiterungen folgende Beziehung für den $\omega/2\theta$ -Scan formulieren (siehe Gl. 4.2.3):

$$\beta_{111}^T = \beta_{333}^T \frac{\cos \theta_{333}}{\cos \theta_{111}} \quad (5.1.1)$$

Wobei β_{111}^T und β_{333}^T jeweils die Verbreiterungen der Reflexionskurve aufgrund der Teilchengröße darstellen und θ_{111} bzw. θ_{333} die entsprechenden Braggwinkel sind. Das Verhältnis zwischen der gemessenen integralen Breite beim Ge-(111)-Reflex und dem Ge-(333)-Reflex entspricht bis auf eine kleine Abweichung von ca. 5% der obigen Formel (5.1.1). Das bedeutet, dass die Teilchenverbreiterung im $\omega/2\theta$ -Scan den Hauptanteil zur Kurvenverbreiterung beiträgt. Die entsprechenden Ergebnisse sind in Tabelle 2 dargestellt.

Tab. 2: Bestimmung der effektive Größe der Ge-Nanokristallite in normaler Richtung

Reflex	Ge(111)	Ge(333)	Ge(220)	Ge(331)
Reflexposition	$2\theta_0 = 21,270^\circ$ $\omega_0 = 10,555^\circ$	$2\theta_0 = 67,192^\circ$ $\omega_0 = 33,523^\circ$	$2\theta_0 = 35,075^\circ$ $\omega_0 = 17,474^\circ$	$2\theta_0 = 55,315^\circ$ $\omega_0 = 5,599^\circ$
Integrale Breite $\beta(2\theta)$ vom $\omega/2\theta$ -Scan im Winkelraum	0,195°	0,241°	0,207°	0,252°
Fehler $\delta(\beta)$	$\pm 0,001^\circ$	$\pm 0,002^\circ$	$\pm 0,002^\circ$	$\pm 0,004^\circ$
Durchmesser in normaler Richtung (D^*_{normal})	30,0nm	28,5nm	29,0nm	(25,6nm)*
Fehler von D^*_{normal}	$\pm 0,2\text{nm}$	$\pm 0,3\text{nm}$	$\pm 0,3\text{nm}$	$\pm 0,5\text{nm}$

*diese effektive Größe ist entlang eines Schnittes durch den $\langle 111 \rangle$ -orientierten Nanokristallit, der zur Oberflächennormalen um 22° geneigt ist, bestimmt

Die Teilchengröße D^* der Nanokristallite in normaler Richtung (D^*_{normal}) wurde aus der integralen Breite $\beta(2\theta)$ des $\omega/2\theta$ -Scans eines symmetrischen Nanokristallitreflexes mit der Gleichungen (4.2.2) und (4.2.3) aus Kapitel 4 bestimmt. Die unterschiedlichen Werte von D^* beim Ge(111)-Reflex und Ge(333)-Reflex beruhen auf den Abweichung von der Formel (5.1.1).

Analog ergibt sich für den ω -Scan beim Auftreten einer reinen Teilchenverbreiterung folgende Beziehung (siehe Gl. 4.2.4):

$$\beta_{111}^T = \beta_{333}^T \frac{\sin \theta_{333}}{\sin \theta_{111}} \quad (5.1.2)$$

Das Verhältnis der gemessenen integralen Breite vom ω -Scan beim Ge-(111)-Reflex und dem Ge-(333)-Reflex weicht von der Formel (5.1.2) um 22% ab, d.h. es kann nicht mehr von einer reinen Teilchenverbreiterung ausgegangen werden.

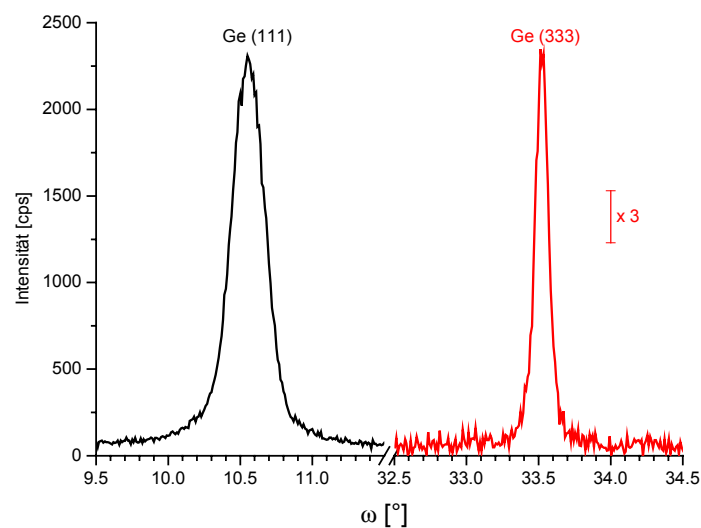


Abb. 15: Rockingkurve (ω -Scan) des Ge-(111)- bzw. Ge-(333)-Reflexes aufgetragen über dem Einfallswinkel ω . Zur besseren Veranschaulichung wurde die Intensität des Ge-(333)-Reflexes mit dem Faktor 3 multipliziert.

Aus Intensitätsgründen waren nur zwei Ordnungen des Ge-Nanokristallit-Reflexes messbar (siehe Abb. 15). Um den Einfluss der Orientierungsverteilung und der Verbreiterung aufgrund der Teilchengröße im ω -Scan zu trennen, stehen nur zwei gemessene integrale Breiten zur Verfügung. Dieses Problem kann mathematisch nur mit zusätzlichen Annahmen, zum Beispiel über die Kurvenformen der einzelnen Beiträge, gelöst werden. Der einfachste Fall ist anzunehmen, dass die gemessene Reflexionskurve und die Kurven, die durch die Orientierungsverteilung und die Kristallitgröße hervorgerufen werden,

lorentzförmig sind. Mit dieser zusätzlichen Annahme kann man den Einfluss der Orientierungsverteilung auf das gemessene Kurvenprofil abschätzen [siehe Anhang B].

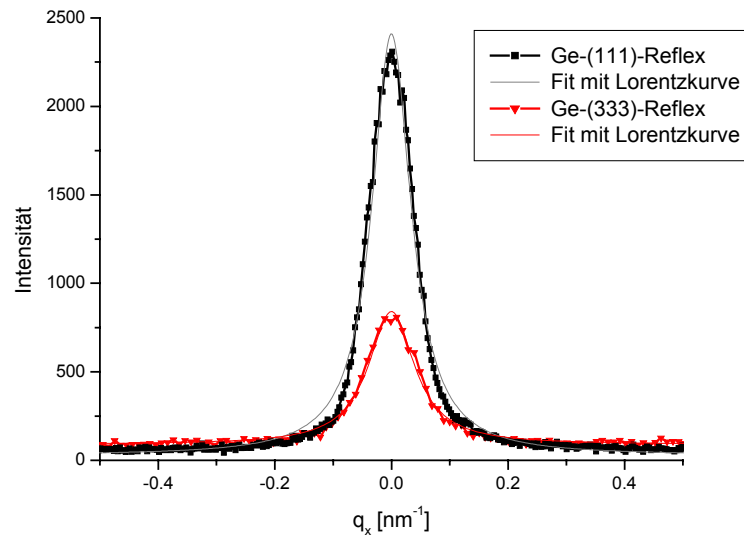


Abb. 16: Rockingkurve (ω -Scan) des Ge-(111)- bzw. Ge-(333)-Reflexes aufgetragen über dem reziproken Gittervektor q_x . Zur Bestimmung der Halbwertsbreiten wurden die Messkurven mit einem Lorentzprofil angepasst.

Aus dieser Abbildung (16) erkennt man, dass die Annahme von Lorentz-Profilen für die Beschreibung der Rockingkurven zu stark vereinfacht ist. Die Anpassung beim Ge-(333)-Reflex ist wesentlich besser als beim Ge-(111)-Reflex. Aber die erreichbare Genauigkeit in der Teilchengrößenbestimmung mit dieser stark vereinfachten Annahme reicht aus.

Für die Halbwertsbreiten der gemessenen Kurven beider Ordnungen des Ge-Reflexes lassen sich folgende Beziehungen für den ω -Scan formulieren [siehe Anhang B]:

$$\beta^O = \beta_{111} - \frac{\beta_{333} - \beta_{111}}{\left(\frac{\sin \theta_{111}}{\sin \theta_{333}}\right) - 1} \quad (5.1.3)$$

$$\beta_{111}^T = \frac{\beta_{333} - \beta_{111}}{\left(\frac{\sin \theta_{111}}{\sin \theta_{333}}\right) - 1}$$

Wobei β_{111} und β_{333} jeweils die gesamte Breite der Reflexionskurve, β_{111}^T die Verbreiterung der Reflexionskurve aufgrund der Teilchengröße, β^O die Verbreiterung der Reflexionskurve aufgrund der Orientierungsverteilung darstellen und θ_{111} bzw. θ_{333} die entsprechenden Braggwinkel sind.

Mit Hilfe der obigen Formeln (5.1.3) kann man aus den gemessenen integralen Breiten $\beta_{111}(\omega)$ bzw. $\beta_{333}(\omega)$ die Orientierungsverteilung β^O und die Verbreiterung aufgrund der Teilchengröße β^T_{111} bzw. β^T_{333} bestimmen. Die resultierenden Ergebnisse sind in Tabelle 3 dargestellt.

Tab. 3: Bestimmung der effektive Größe der Ge-Nanokristallite in lateraler Richtung

Reflex	Ge(111)	Ge(333)	Ge(331)
Reflexposition	$2\theta_0 = 21,270^\circ$ $\omega_0 = 10,555^\circ$	$2\theta_0 = 67,192^\circ$ $\omega_0 = 33,523^\circ$	$2\theta_0 = 55,315^\circ$ $\omega_0 = 5,599^\circ$
Integrale Breite $\beta_{hkl}(\omega)$ vom ω-Scan im Winkelraum	0,380°	0,155°	0,239°
Fehler $\delta(\beta(\omega))$	$\pm 0,001^\circ$	$\pm 0,001^\circ$	$\pm 0,002^\circ$
Verbreiterung aufgrund der Teilchengröße $\beta^T_{hkl}(\omega)$	0,336°	0,111°	0,195°
Verbreiterung aufgrund der Orientierung $\beta^O(\omega)$	0,044°	0,044°	0,044°
Durchmesser der Nanokristallite in lateraler Richtung ($D^*_{lateral}$)	67,5nm	67,8nm	(45,9nm)*
Fehler von $D^*_{lateral}$	$\pm 0,3nm$	$\pm 0,9nm$	$\pm 0,7nm$

*diese effektive Größe ist entlang eines Schnittes durch den $\langle 111 \rangle$ -orientierten Nanokristallit, der zur Oberflächennormalen um 22° geneigt ist, bestimmt analog $\omega/2\theta$ -Scan

Die Größe der Nanokristallite in lateraler Richtung ($D^*_{lateral}$) wurde, analog zu D^*_{normal} , aus den integralen Breiten $\beta^T_{111}(\theta)$ bzw. $\beta^T_{333}(\theta)$ des ω -Scans aus Kapitel 4 mit den Gleichungen (4.2.2) und (4.2.4) bestimmt.

Die röntgendiffraktometrisch gewonnenen Angaben beinhalten jeweils eine Mittelung über alle zur Streuung beitragenden Nanokristallite in der röntgenographisch erfassten Probenfläche von ca. $1mm^2$. Es sind Integralaussagen, die jeweils ein Ensemble von Nanokristalliten charakterisieren, in Ergänzung zu den mit TEM bzw. AFM gewonnenen Angaben, die sich jeweils auf Einzelkristallite beziehen. Somit erhält man Werte, die man als Mittelwerte für eine Größenverteilung der Nanokristallite auffassen muss. In Kapitel 4

ist der Einfluss der Größenverteilung näher erläutert. Die angegebene effektive Teilchengröße L ist volumengemittelt und unabhängig von der Form der Nanokristallite.

Aus den AFM-Messungen ergaben sich folgende Größen für die Ge-Nanokristallite (siehe Abb. 2 im Kap. 3.1.)

$$D_{\text{normal}} = 50\text{nm} \quad D_{\text{lateral}} = (100-150)\text{nm} \quad [\text{SCHROETER 2003}]$$

Diese Werte sind größer als die röntgenographisch bestimmten Werte, liegen aber in der gleichen Größenordnung. Beim Vergleich der verschiedenen Ergebnisse muss die Art der Mittelung (flächenmäßige Mittelung im Fall von AFM und TEM) über die Größe der Ge-Nanokristallite berücksichtigt werden. Ein weiteres Problem stellt die Oxidation der Oberflächen-Nanokristallite dar. Die Größenbestimmung mit Hilfe von AFM-Messungen erfolgten sofort nach dem Wachstum der Ge-Nanokristallite auf dem 6H-SiC-Substrat und innerhalb der Ultrahochvakuum-Kammer, in der die Ge-Nanokristallite gezüchtet wurden. Das bedeutet, die Proben hatten vor den AFM-Messungen keinen Kontakt mit dem Luftsauerstoff. Die röntgenographische Charakterisierung der Ge-Nanokristallite erfolgte unter normalen Bedingungen, also ohne Vakuum-Kammern oder ähnlichem. Das bedeutet, dass die Proben vor den röntgenographischen Messungen einige Tage Kontakt mit dem Luftsauerstoff hatten. Deshalb ist damit zu rechnen, dass die Ge-Nanokristallite mit einer Oxidschicht überzogen waren und sich das kristalline Volumen und entsprechend auch ihre effektiven Größen verringert haben.

5.1.2. Bestimmung der Orientierungsverteilung der Ge-Nanokristallite

Bezüglich der Orientierung der Kristallite lassen sich zwei denkbare Möglichkeiten unterscheiden: eine Krümmung der Netzebenen innerhalb der Nanokristallite und die Verschwenkung der Nanokristallite zueinander. Die Parameter lassen sich aus der Halbwertsbreite der Rockingkurve bestimmen. Dabei müssen die zusätzlich auftretenden Verbreiterungsmechanismen berücksichtigt werden. Um die Rockingkurve des Kristalls zu erhalten, führt man einen ω -Scan durch. Dieser ω -Scan liefert die Orientierungsverteilung gefaltet mit der Gitterkonstantenschwankung, der Verbreiterung aufgrund der Teilchengröße und apparativen Verbreiterungsmechanismen.

Die Winkelakzeptanz des Detektors sollte möglichst klein sein, weil damit der Einfluss der Gitterkonstantenschwankung auf die Rockingkurve verringert wird. Die Winkelakzeptanz des Detektors kann durch eine Blende bzw. einen Analysatorkristall eingeschränkt werden. Da das streuende Volumen der Nanokristallite bei den vermessenen Proben sehr gering ist, war die Verwendung eines Analysatorkristalls aufgrund dieser geringen Intensität der gestreuten Röntgenstrahlung nicht möglich.

Bei den im Experiment verwendeten Detektorblenden und einem Probe-Detektorabstand von 700mm ergibt sich eine Akzeptanz in der Beugungsebene von $0,09^\circ$ und von $0,25^\circ$ senkrecht zur Beugungsebene. Bei der Wahl der Detektorblenden muss berücksichtigt werden, dass es in Abhängigkeit vom Reflex und Form der gestreuten Intensität zu einer leichten Verbreiterung des Reflexes kommen kann. Dies führt zu einer zu groß bestimmten Halbwertsbreite bzw. integralen Breite der Reflexionskurve und damit zu einer etwas zu klein bestimmten Teilchengröße.

Der Einfluss der Verbreiterung aufgrund der Teilchengröße und der Orientierung der Kristallite kann durch die zusätzliche Messung einer höheren Ordnung des Reflexes getrennt werden (siehe Gl. 5.1.3 Kap. 5.1.1).

Unter Berücksichtigung der zusätzlich auftretenden Verbreiterungsmechanismen ergibt sich eine Orientierungsverteilung mit einer integralen Breite von $0,044^\circ$ (siehe Tab. 3). Bei den wenigen Messdaten ist es schwierig zu unterscheiden, ob es sich um eine Krümmung der Netzebenen innerhalb der Nanokristallite, eine Verschwenkung der Nanokristallite zueinander handelt oder ob beide Phänomene gleichzeitig auftreten.

5.1.3. Laterale Orientierung der Nanokristallite

Die Nanokristallite sind epitaktisch auf dem Substrat aufgewachsen, wenn das Kristallsystem der Nanokristallite eine kohärente laterale Zuordnung zum Kristallsystem des Substrates aufweist. Um dies festzustellen, wählt man eine Netzebenenschar der Nanokristallite bzw. des Substrates aus, deren Netzebenennormale nicht parallel zur Oberflächennormalen der Nanokristallite zeigt.

Der reziproke Gitterpunkt, der die entsprechende Netzebenenschar repräsentiert, kann nur bei bestimmten azimutalen Winkeln in Reflexionsstellung gebracht werden. Die Anzahl der auftretenden Winkelpositionen ist abhängig von der Zähligkeit der kristallographischen

Achse, die in die Richtung der Oberflächennormalen der Probe zeigt. Nachdem man die Winkelpositionen des Substrates bezüglich des Diffraktometers bestimmt hat, misst man die Winkelpositionen der Nanokristallite, ohne die Probe vom Diffraktometer zu nehmen. Sonst würde die Orientierung der Winkel bezüglich des Diffraktometers verloren gehen. Um diese verschiedenen Winkelpositionen zu bestimmen, gibt es zwei Möglichkeiten. Entweder man misst den entsprechenden Reflex in schiefer (symmetrischer) oder in asymmetrischer Strahlgeometrie.

Bei der schiefen Strahlgeometrie muss man die Probe um den Ebenenverkipfungswinkel zur Dispersionsebene neigen. Der Ebenenverkipfungswinkel ist der Winkel zwischen der zu vermessenden Netzebenennormalen und der Oberflächennormalen der Probe. Mit dieser Winkeleinstellung führt man einen azimutalen *Scan* von 0° bis 360° durch und registriert die reflektierende Strahlung.

Bei der asymmetrischen Strahlgeometrie befindet sich die Probe senkrecht zur Dispersionsebene. Der Einfallswinkel der Röntgenstrahlung ist die Differenz zwischen dem Braggwinkel θ des Reflexes und dem Ebenenverkipfungswinkel. Der Detektor wird auf den doppelten Braggwinkel eingestellt. Mit diesen Winkeleinstellungen führt man einen azimutalen *Scan* von 0° bis 360° durch und registriert die reflektierende Strahlung.

Im Experiment hat sich gezeigt, dass die schiefe Strahlgeometrie für die Bestimmung der azimutalen Winkelpositionen des Nanokristallit-Reflexes besser geeignet ist. Die reflektierte Intensität von schiefen Reflexen bei leichter Dejustage sinkt nicht so stark ab, wie bei asymmetrischen Strahlgeometrien.

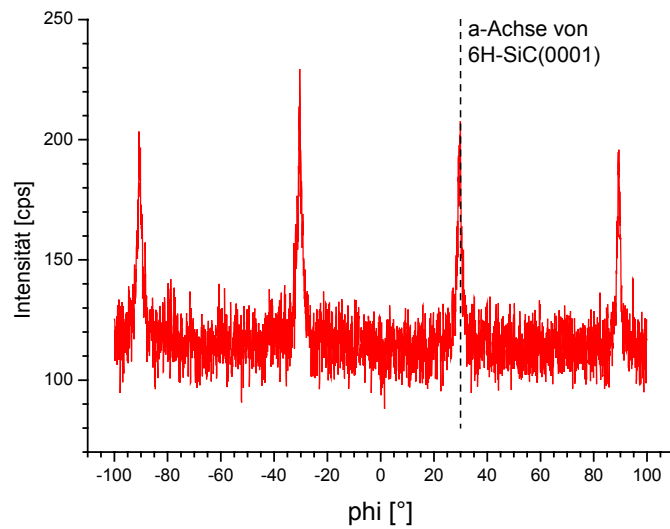


Abb. 17(a): Messung der lateralen Orientierung der Ge-Nanokristallite bezüglich der Kristallsymmetrie der SiC-Matrix

- Kristallite mit $\langle 110 \rangle$ -Orientierung, die Oberflächennormale ist parallel zur c-Achse der SiC-Matrix - Messung des Ge-(111)-Reflexes

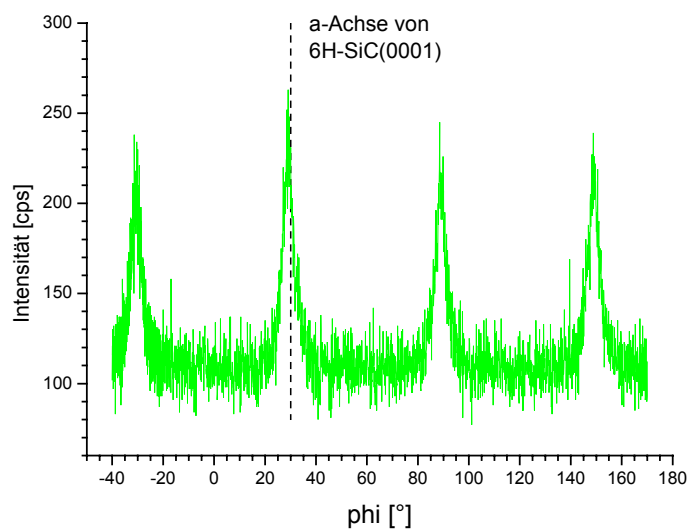


Abb. 17(b): Messung der lateralen Orientierung der Ge-Nanokristallite bezüglich der Kristallsymmetrie der SiC-Matrix

- Kristallite mit $\langle 111 \rangle$ -Orientierung - Messung des Ge-(220)-Reflexes

Bei der Probe wurde zu den beiden vorkommenden Nanokristallorientierungen (Kristallite mit $\langle 111 \rangle$ - und $\langle 110 \rangle$ -Richtung parallel der Oberflächennormalen) jeweils ein schiefer Reflex vermessen, um die laterale Orientierung zu bestimmen. Abbildung 17a zeigt das Auftreten des schiefen (111)-Reflexes bei verschiedenen lateralen Winkelpositionen und gibt die laterale Orientierung der $\langle 110 \rangle$ -orientierten Ge-Kristallite bezüglich der Oberflächennormale der SiC-Matrix an. Abbildung 17b zeigt das Auftreten des schiefen (220)-Reflexes bei verschiedenen lateralen Winkelpositionen und gibt die laterale Orientierung der $\langle 111 \rangle$ -orientierten Ge-Kristallite bezüglich der Oberflächennormalen der SiC-Matrix an.

Aus Abbildung 17a und 17b ist eine kohärente laterale Zuordnung der Nanokristallite zum Substrat ersichtlich. Das hexagonale Kristallsystem des Substrates 6H-SiC besitzt eine 6-zählige Symmetrie in Richtung der c-Achse. Das kubische Kristallsystem von Germanium besitzt eine 2-zählige Symmetrieachse entlang der kristallographischen $\langle 110 \rangle$ -Richtung und eine 3-zählige Symmetrieachse entlang $\langle 111 \rangle$ -Richtung. Die Nanokristallite, bei denen die kristallographische (111)-Orientierung in Richtung der c-Achse des Substrates zeigt, weisen eine laterale Orientierung ihrer kristallographischen $\langle 110 \rangle$ -Richtung zur a-Achse des Substrates auf. Aufgrund der Dreizähligkeit der $\langle 111 \rangle$ -Richtung im Ge-Kristallsystem ist ein dreimaliges Auftauchen der Reflexe, jeweils im Abstand von 120° , zu erwarten. Die Messergebnisse der Probe zeigen aber, dass der schiefe Ge-(220)-Reflex sechsmal innerhalb von 360° jeweils im Abstand von 60° auftaucht. Die Störung der Dreizähligkeit der $\langle 111 \rangle$ -Richtung ist mit einer Verzwillingung innerhalb der Nanokristallite oder mit zwei verschiedenen Typen von aufgewachsenen Nanokristalliten, zueinander um 60° verdreht, zu erklären. Die beiden möglichen Lagen bzw. Orientierungen der Nanokristallite können energetisch nicht unterschieden werden und sind völlig äquivalent. Aufgrund der geringen Abmessungen eines einzelnen Nanokristallits ist die Verzwillingung innerhalb eines Nanokristallites sehr unwahrscheinlich. Diese Aussagen gelten analog für die $\langle 110 \rangle$ -orientierten Nanokristallite [WUNDERLICH, Dipl. 1998].

Es wurden zwei von einander unabhängige Ge-Nanokristallit-Typen nachgewiesen, die bezüglich der 6H-SiC-Matrix $\langle 111 \rangle$ - und $\langle 110 \rangle$ -orientiert sind.

6. Implantierte Nanokristallite

In ein 4H-SiC-Substrat wurden Ge^+ -Ionen mit einer Energie von 250 keV bei 700°C und einer Flächendosis von $D = 1 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-2}$ implantiert und anschließend in einer RTA-Anlage bei verschiedenen Temperaturen und unterschiedlichen Zeiten angelassen. Die Einzelheiten der Herstellung sind im Kapitel 2.4. beschrieben. Der Schwerpunkt der Ge-Verteilung liegt etwa in 100 nm Tiefe und entspricht 1-2 Atomprozent Germanium. Bei einer Anlasstemperatur von 1600°C bilden sich Germanium-Nanokristallite.

6.1. Charakterisierung des Substrates

Nachfolgend werden die Ergebnisse der röntgendiffraktometrischen Untersuchungen anhand von ausgewählten Messungen an Ge-implantierten Proben dargestellt.

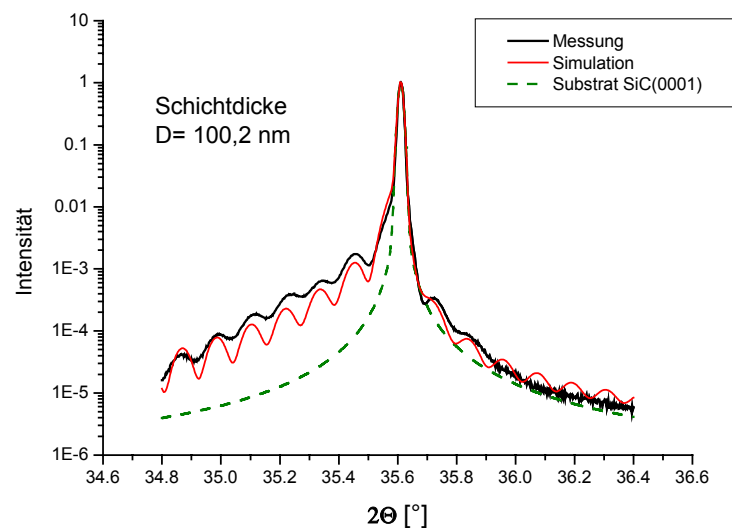


Abb. 18: $\omega/2\theta$ -Scan des symmetrischen 0004-Reflexes von 4H-SiC

Abbildung 18 zeigt den $\omega/2\theta$ -Scan des symmetrischen 0004-Reflexes von 4H-SiC. In den Ausläufern der intensitätsstarken symmetrischen 000l-Reflexe von SiC treten Schichtdickenoszillationen auf, die wie folgt gedeutet werden:

Die Ge-Implantation verursacht in ca. 100–230nm Tiefe eine stark gestörte Zwischenschicht. In ihr werden die Ge-Atome mit gaußförmiger Tiefenverteilung vorwiegend auf Zwischengitterplätzen eingelagert (siehe Kapitel 3.2. Aussagen der RBS-Messungen). Über der stark gestörten Zwischenschicht bleibt der Kristallbereich strukturell nahezu ungestört, somit kommt es zur Interferenz der an der Oberfläche reflektierten Welle und der abgebeugten Welle aus dem nahezu ungestörten oberflächennahen Kristallbereich. Aus der Simulation der Schichtdickenoszillation ergibt sich eine Tiefe der Zwischenschicht von 100,2 nm.

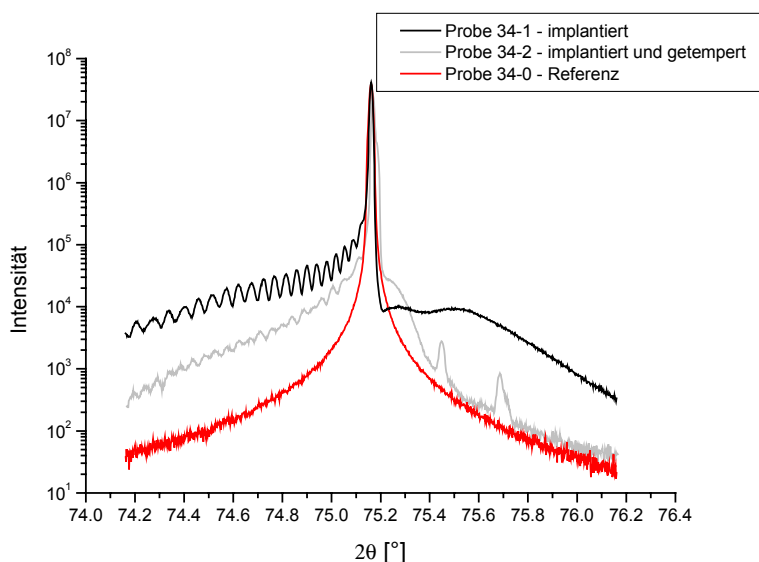


Abb. 19: $\omega/2\theta$ -Scans des symmetrischen 4H-SiC-(0008)-Reflexes nach verschiedenen Herstellungsschritten

In Abbildung 19 sind $\omega/2\theta$ -Scans des symmetrischen 0008-Reflexes von 4H-SiC nach den einzelnen Prozessschritten wiedergegeben. Die unterste Kurve zeigt den unbehandelten 4H-SiC-Wafer, die schwarze Kurve die Messung nach der Implantation bei 700°C und die graue Kurve nach der Temperaturbehandlung bei 1600°C für 120s. Bei den implantierten Proben ist die diffuse Streuung gegenüber der Referenzmessung erhöht. Dies weist auf

Störungen des SiC-Kristallgitters hin. Nach dem Anlassprozess bei 1600 °C reduzieren sich die Amplitude der Schichtdickenoszillationen und die diffuse Streuung im Vergleich zu der implantierten Probe ohne Temperaturbehandlung. Dies lässt sich mit einem partiellen Ausheilen der stark gestörten Zwischenschicht erklären, was unter anderem zur Bildung von Ge-Nanokristalliten führt.

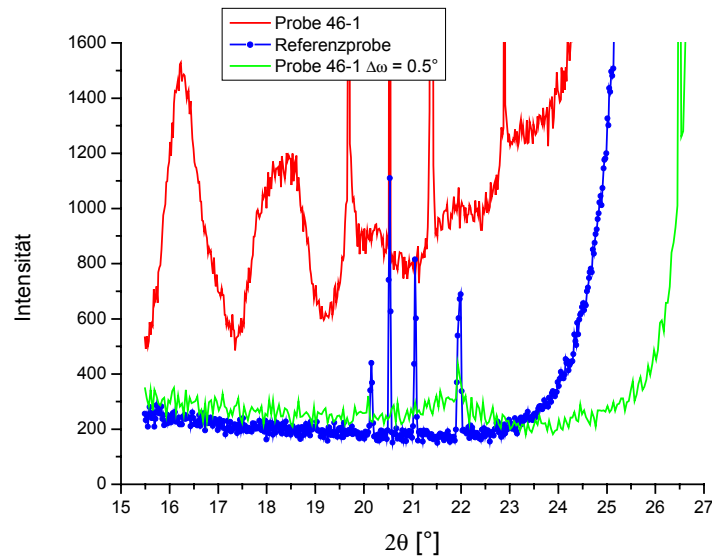


Abb. 20: $\omega/2\theta$ -Scans des symmetrischen 4H-SiC-(0004)-Reflexes der Probe 46-1 (implantiert mit $1 \cdot 10^{16} \text{cm}^{-2} \text{Ge}^+$ bei 700°C und getempert bei 1600°C für 360s) und der Referenzprobe (unbehandelter 4H-SiC-Wafer). Die graue Kurve zeigt die Messung der Probe 46-1 mit einer Verstimmung von $\Delta\omega = 0,5^\circ$.

Weitere Schichtdickenoszillationen mit größerer Periode sind im entfernten Kleinwinkelbereich des Ausläufers des intensitätsstarken symmetrischen 0004-Reflexes von SiC zu beobachten (Abb.20). Sie können durch die Interferenz der an den jeweiligen Grenzflächen der gestörten Schicht abgebeugten Wellen erklärt werden. Aus der Periode der Schichtdickenoszillation ergibt sich eine Dicke der Zwischenschicht von ca. 3-4nm. Diese Dicke beschreibt den in den TEM-Messungen als D bezeichneten Bereich (siehe Kap. 3.3).

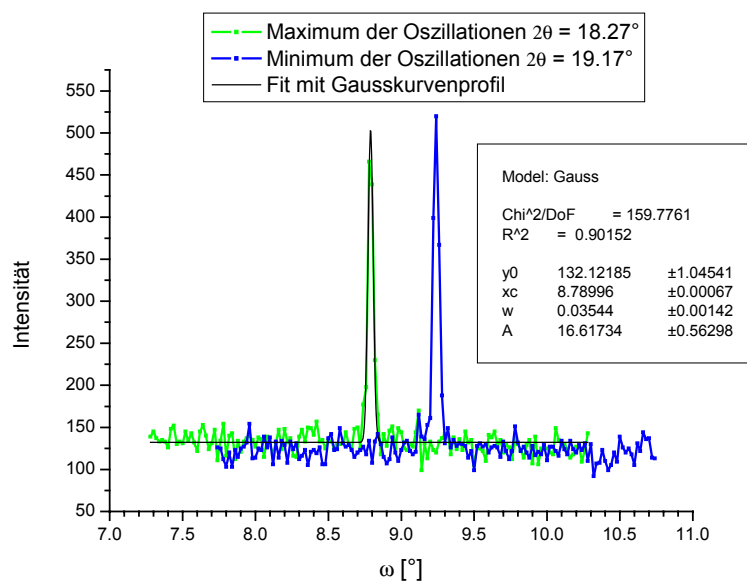


Abb. 21: ω -Scans beim Maximum und Minimum der Oszillationen (siehe Abb. 20)

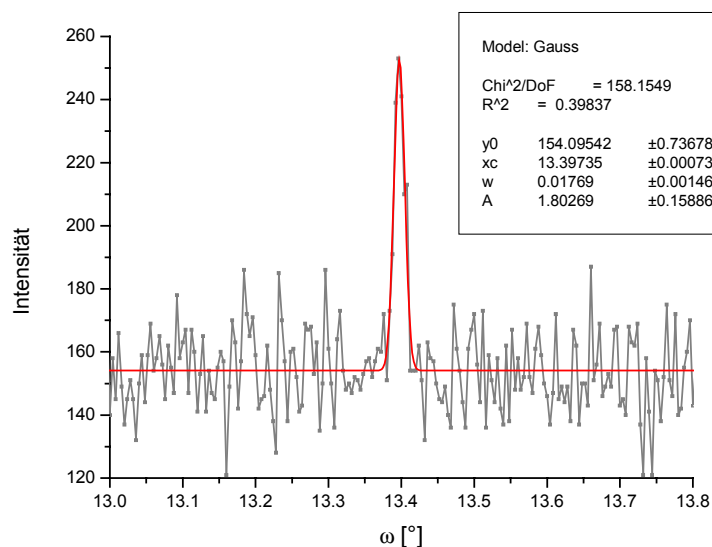


Abb. 22: ω -Scan der Referenzprobe bei der Winkelposition $2\theta = 19^\circ$

Die entsprechenden ω -Scans bei den Maxima bzw. Minima der Schichtdickenoszillationen haben Halbwertsbreiten zwischen $0,03^\circ$ und $0,04^\circ$. Dies liegt in der gleichen Größenordnung wie die Halbwertsbreite ($\Delta\omega = 0,02^\circ$) des ω -Scans der Referenzprobe bei

einer ähnlichen Winkelposition in 2θ . Dies zeigt, dass der Effekt der Oszillationen von flächenhaften Strukturen im 4H-SiC-Wafer kommt. Verstimmt man die $\omega/2\theta$ -Zuordnung für den 0004-Reflex von 4H-SiC, so verschwinden die Schichtdickenoszillationen und nur ein Maximum ist noch sichtbar (siehe Abb. 20 verstimimte Kurve). Der Substratreflex hat in ω - und $\omega/2\theta$ -Richtung eine sehr geringe Halbwertsbreite, deshalb nimmt die Intensität schon bei leichter Verstimmung der $\omega/2\theta$ -Zuordnung stark ab.

Der Reflex, der von den Ge-Nanokristalliten verursacht wird, hat aufgrund der geringen Teilchengröße der Nanokristallite eine große Halbwertsbreite in ω - bzw. $\omega/2\theta$ -Richtung, deshalb reagiert er kaum auf die geringe Verstimmung der $\omega/2\theta$ -Zuordnung. Mit dem Verfahren der leichten Verstimmung der $\omega/2\theta$ -Zuordnung lässt sich der Einfluss des Ausläufers des Substratreflexes auf den schwachen Nanokristallit-Reflex stark reduzieren und eine Messung oft erst ermöglichen.

6.2. Charakterisierung der Nanokristallite

6.2.1. Erste sondierende Messungen

Nachfolgend sind Messungen der ersten Probenserie dargestellt, die im $\omega/2\theta$ -Modus mit der intensitätsstarken Synchrotronstrahlung ($\lambda=0,154\text{nm}$) an der ESRF in Grenoble aufgenommen wurden (Abb. 23). In einem 4H-SiC-Substrat wurden Ge^+ - Ionen mit einer Energie von 250keV bei 700°C und einer Flächendosis von $D = 1 \cdot 10^{16} \text{cm}^{-2}$ implantiert. Ein Probestück (34-2) wurde anschließend in einer RTA-Anlage bei 1600°C für 120s angelassen. Die schwarze Kurve zeigt die Messung der Probe nach der Implantation bei 700°C und die graue Kurve nach anschließender Temperaturbehandlung.

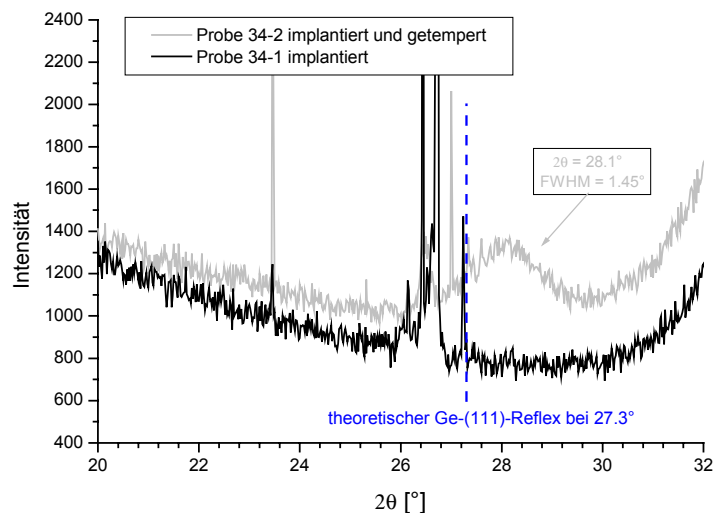


Abb. 23: $\omega/2\theta$ -Scans des Ge-111-Bereiches, Probe 34-2 (implantiert mit $1 \cdot 10^{16} \text{cm}^{-2} \text{Ge}^+$ bei 700°C und getempert bei 1600°C für 120s) - graue Kurve, Probe 34-1 (nur implantiert mit $1 \cdot 10^{16} \text{cm}^{-2} \text{Ge}^+$ bei 700°C) - schwarze Kurve

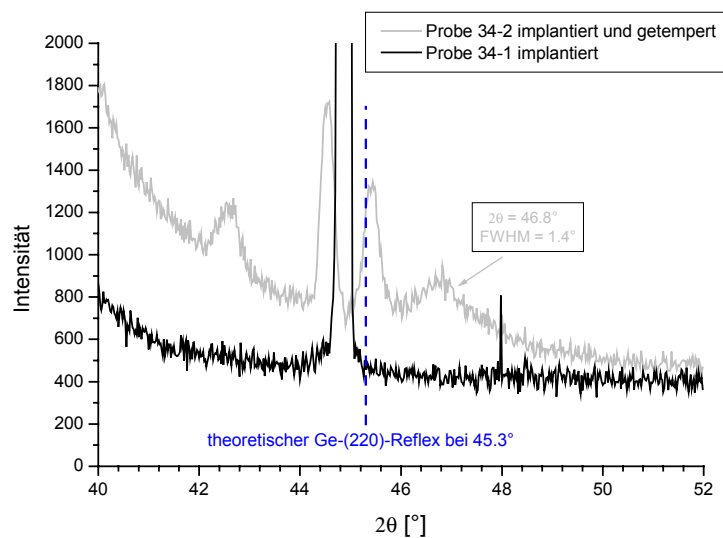


Abb. 24: $\omega/2\theta$ -Scans des Ge-220-Bereiches, Probe 34-2 (implantiert mit $1 \cdot 10^{16} \text{cm}^{-2} \text{Ge}^+$ bei 700°C und getempert bei 1600°C für 120s) - graue Kurve, Probe 34-1 (nur implantiert mit $1 \cdot 10^{16} \text{cm}^{-2} \text{Ge}^+$ bei 700°C) - schwarze Kurve

Vergleicht man die Röntgendiffraktogramme beider Probenstücke, erkennt man jeweils einen zusätzlichen Ge-Reflex bei der Probe, die nach der Implantation noch angelassenen wurde. Dieser Reflex hat eine Halbwertsbreite von ca. $1,71^\circ$ bei der Ge-(111)-Position und $1,40^\circ$ bei der Ge-(220)-Position. In dieser Größenordnung müssten Reflexverbreiterungen liegen, die von Strukturen mit einer Größe in normaler Richtung von 5-10nm verursacht werden. Um aufzuklären, ob es sich um einen Reflex von einer Schicht oder von Nanokristalliten handelt, muss ein ω -Scan beim Maximum des Reflexes durchgeführt werden.

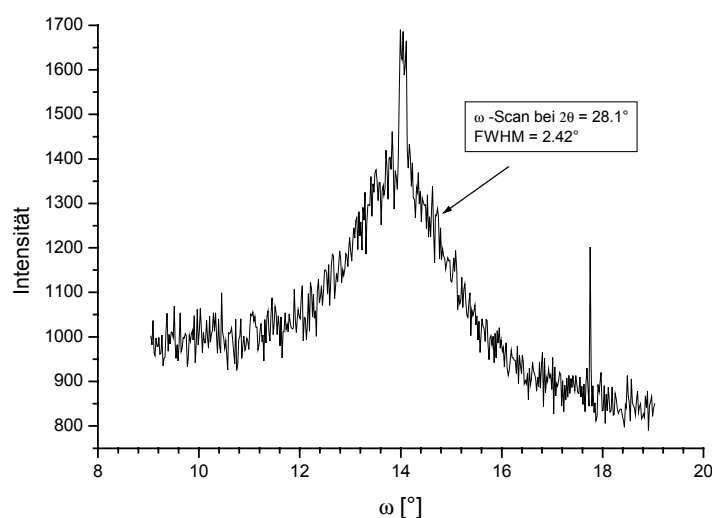


Abb. 25: ω -Scan des Ge-(111)-Reflexes beim Maximum $2\theta = 28,1^\circ$ des $\omega/2\theta$ -Scan aus Abbildung 23

Der ω -Scan des Ge-(111)-Reflexes (siehe Abb. 25) mit einer Halbwertsbreite von $2,42^\circ$ zeigt, dass der Reflex durch Ge-Nanokristallite verursacht wird. Der ω -Scan des Ge-(220)-Reflexes hat eine Halbwertsbreite von $2,20^\circ$. Das heißt, während der Temperaturbehandlung bei 1600°C für 120s haben sich in der Probe $\langle 111 \rangle$ - und $\langle 110 \rangle$ -orientierte Ge-Nanokristallite gebildet.

Analoge Messungen bei implantierten Proben mit einer Temperaturbehandlung bei 1400°C und 1500°C zeigen keine Reflexe, die Ge-Nanokristalliten zugeordnet werden können. Die Ge-Nanokristallite bilden sich erst nach einer Temperaturbehandlung bei 1600°C in der SiC-Matrix.

6.2.2. Gestalt und laterale Symmetrie der Nanokristallite

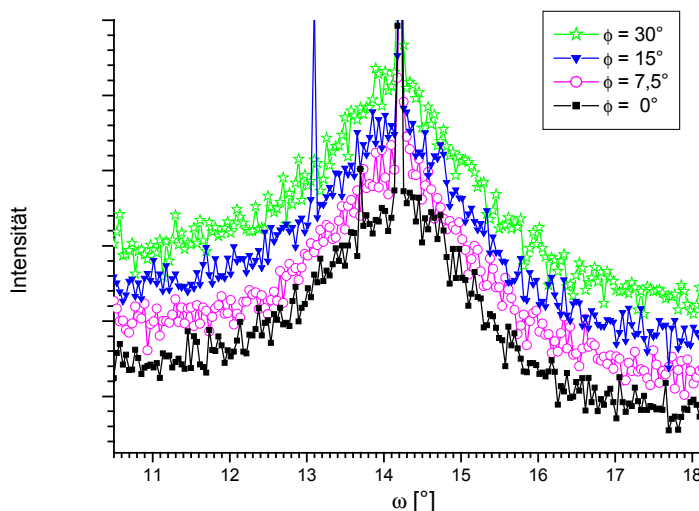


Abb. 26: ω -Scans des symmetrischen Ge-(111)-Reflexes bei verschiedenen azimutalen Winkeln ϕ

Abbildung 26 zeigt ω -Scans des symmetrischen Ge(111)-Reflexes bei verschiedenen Winkelpositionen der Probe (laterale Drehung) zum einfallenden Strahl. Zur besseren Veranschaulichung wurden die Messkurven für die Werte $\phi = 7,5^\circ/15^\circ/30^\circ$ entlang der Ordinate verschoben. Eine Winkelabhängigkeit des Reflexes wurde nicht beobachtet, daraus ergibt sich eine laterale Rotationssymmetrie der Nanokristallite.

6.2.3. Modell zur Bestimmung der Nanokristallitgröße

Ausgehend von den Modellvorstellungen aus Kapitel 4.1. und den Messungen aus Kapitel 6.2.2. ergeben sich folgende Näherungen für die Ge-Nanokristallite.

Die Ge-Nanokristallite können als Teilchen mit der Form eines Rotationsellipsoids angenähert beschrieben werden. Dieses Modell legen auch die TEM-Aufnahmen (Beispiel siehe Kap. 3.3. Abb. 6 und [KAISER 2001, KAISER 2002]) nahe. Abbildung 27 zeigt das Modell eines Ge-Nanokristallites, die z-Achse des Rotationsellipsoids verläuft parallel zur Oberflächennormale, die entsprechende Halbachse ist h . Die Schnittfläche des Rotationsellipsoids in der x-y-Ebene ist ein Kreis mit dem Radius s .

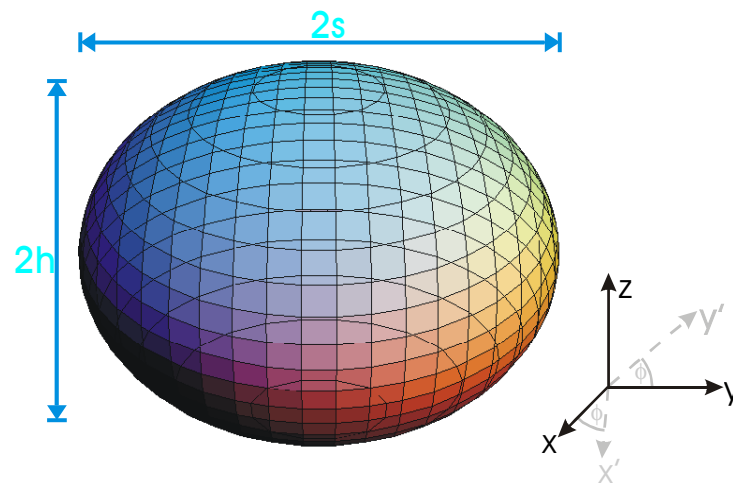


Abb. 27: Modell eines Ge-Nanokristallits als Rotationsellipsoid

Weiterhin wird von einer δ -förmigen Größen- und Orientierungsverteilung ausgegangen. Zusätzliche Verspannungen der Nanokristallite werden vorerst nicht berücksichtigt.

Aufgrund der Größe und Form der Nanokristallite kommt es zu einer Verbreiterung der reziproken Gitterpunkte. Wegen der kleinen Teilchenabmessungen kann die Intensitätsverteilung $I(\mathbf{Q}+\mathbf{q})$ mit Hilfe der kinematischen Theorie der Röntgenbeugung berechnet werden. Den Beitrag zur Intensitätsverteilung $I(\mathbf{Q}+\mathbf{q})$ im reziproken Raum, der an den Ge-Nanokristalliten gestreute Intensität, erhält man durch das Betragsquadrat der Fouriertransformierten der Formfunktion $g(\mathbf{r})$ der Nanokristallite. Wenn man das oben beschriebene Modell eines Rotationsellipsoiden verwendet, ergibt sich folgendes [INT. TABLES FOR X-RAY CRYST. VOL. II]:

$$g(\mathbf{r}) = a \quad \text{für} \quad \frac{x^2}{s^2} + \frac{y^2}{s^2} + \frac{z^2}{h^2} < 1$$

$$= 0 \quad \text{für} \quad \frac{x^2}{s^2} + \frac{y^2}{s^2} + \frac{z^2}{h^2} > 1$$

Fouriertransformation von $g(\mathbf{r})$:

(6.2.1)

$$G(\mathbf{q}) = \left(\frac{4}{3}\pi a s^2 h\right) \frac{3(\sin R - R \cos R)}{R^3} \quad \text{mit} \quad R = \sqrt{s^2 q_x^2 + s^2 q_y^2 + h^2 q_z^2}$$

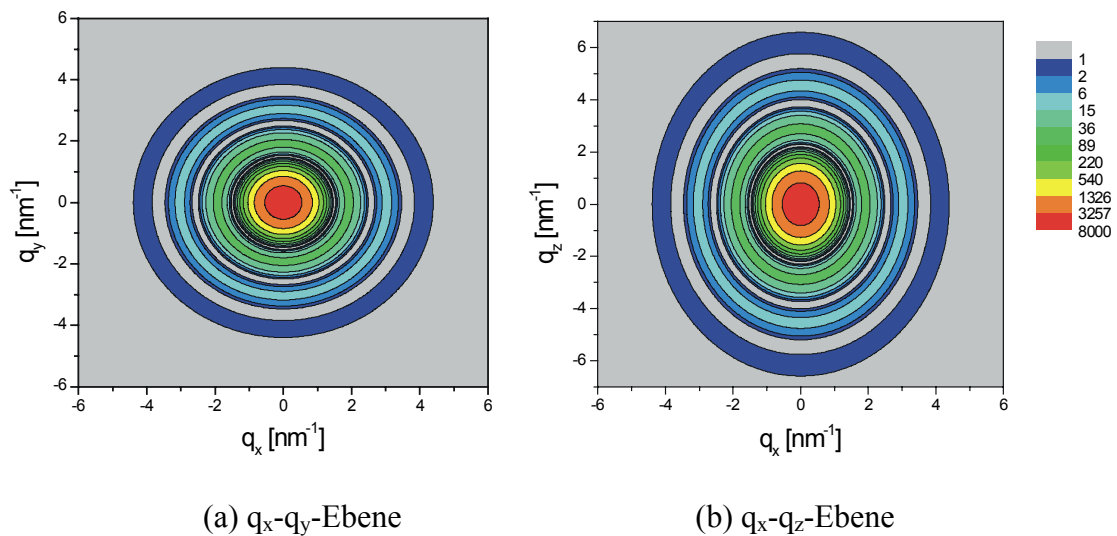


Abb. 28: Numerische Simulation der Intensitätsverteilung $I(\mathbf{Q}+\mathbf{q})$ im reziproken Raum eines Nanokristallellipsoiden mit $s = 3\text{nm}$ und $h = 2\text{nm}$ (Intensität in willkürlichen Einheiten)

Abbildung 28 zeigt die numerische Simulation des Beitrages der Teilchengröße der Ge-Nanokristallite zur Intensitätsverteilung $I(\mathbf{Q}+\mathbf{q})$ im reziproken Raum (Betragsquadrat von $G(\mathbf{q})$, Gl. 6.2.1) von einem Nanokristallellipsoid mit $s=3\text{nm}$ und $h=2\text{nm}$. Die Verteilung in der q_x - q_y -Ebene und in der q_x - q_z -Ebene zeigt charakteristische Nebenmaxima und ist in der q_x - q_y -Ebene radialsymmetrisch.

Aus der Intensitätsverteilung $I(\mathbf{Q}+\mathbf{q})$ im reziproken Raum ergibt sich die zu erwartende Intensitätsverteilung $I_{\text{Modell}}(q_x)$ für das Modell eines Ge-Nanokristallites mit der lateralen Halbachse s . Dazu betrachtet man die Schnittfläche der Intensitätsverteilung $I(\mathbf{Q}+\mathbf{q})$ für $q_y=Q_y=0$ und $q_z=Q_z$ (Maximalintensität in Richtung q_z) und bestimmt mit einer Kurvenanpassung mit Gaußprofil die integrale Breite des Hauptmaximums Δq_x .

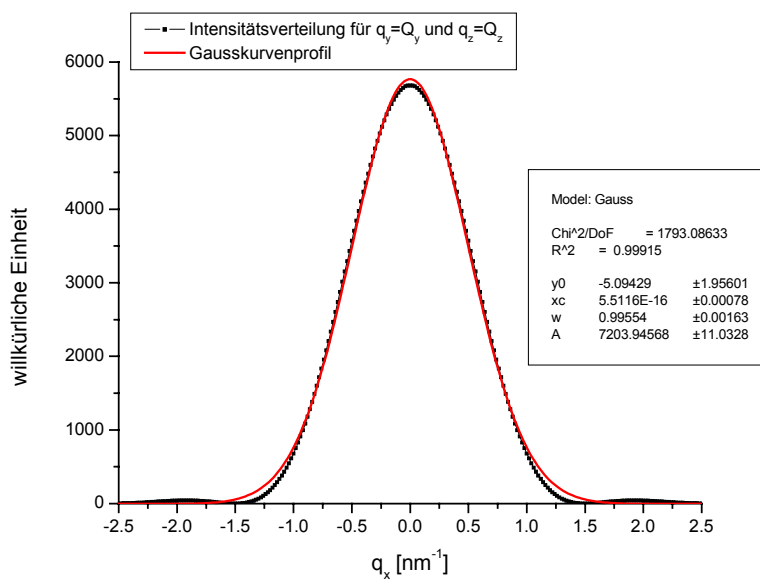


Abb. 29: Intensitätsverteilung $I_{\text{Modell}}(q_x)$ für das Modell eines Ge-Nanokristallites mit der lateralen Halbachse $s = 3\text{ nm}$

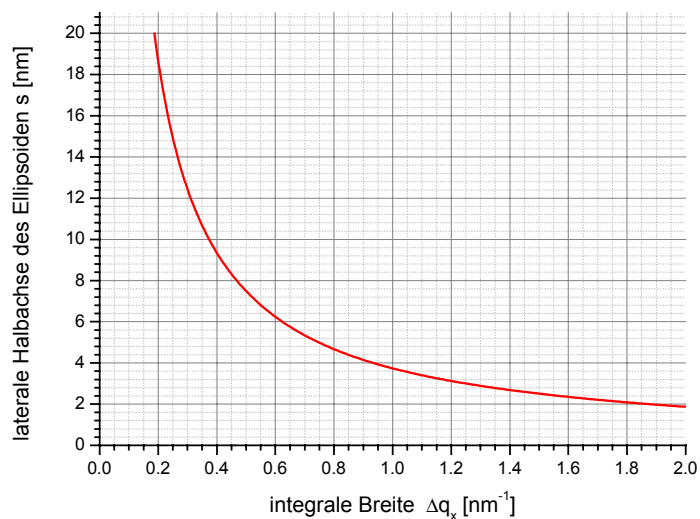


Abb. 30: Abhängigkeit der integralen Breite $I_{\text{Modell}}(q_x)$ von der Halbachse s des Ellipsoiden bei $h = \text{konst.}$

Abbildung 30 zeigt die Abhängigkeit der integralen Breite $I_{\text{Modell}}(q_x)$ von der Halbachse s des Ellipsoids bzw. des Radius R_{\perp} der Nanokristallite senkrecht zur Oberflächennormalen.

Durch den Vergleich der gemessenen Intensitätsverteilung $I_{\text{Experiment}}(\omega)$ umgerechnet in die q_x -Koordinaten des reziproken Raumes mit der simulierten Intensitätsverteilung $I_{\text{Modell}}(q_x)$ lässt sich die gemittelte Größe der Halbachse s des Rotationsellipsoids bzw. die entsprechende Nanokristallitgröße bestimmen. Die Bestimmung von $I_{\text{Modell}}(q_z)$ aus dem $\omega/2\theta$ -Scan ergibt sich analog aus der Schnittfläche der Intensitätsverteilung $I(\mathbf{Q}+\mathbf{q})$ für $q_y=0$ und $q_x=0$.

6.2.4. Bestimmung der Nanokristallitgröße bei verschiedenen Proben

Nachfolgend sind die Ergebnisse der Messungen einer Probenserie (Tabelle 4), bei der die einzelnen Proben unter gleichen Bedingungen implantiert aber anschließend einer unterschiedlichen Temperaturbehandlung unterzogen wurden, dargestellt. Die Messungen wurden im ω - bzw. $\omega/2\theta$ -Modus mit der intensitätsstarken Synchrotronstrahlung an BM 20 der ESRF in Grenoble aufgenommen, wobei die Wellenlänge aus einem weiten Spektralbereich ausgewählt werden kann und sehr genau bekannt ist (siehe Kap. 3.4.1.2.). Im November 2000 wurde die Wellenlänge $\lambda=0,15377\text{nm}$ und im Januar 2001 die Wellenlänge $\lambda=0,15468\text{nm}$ verwendet. Alle Proben wurden kurz nach ihrer Herstellung vermessen, um mögliche Einflüsse des Alterungsprozesses auszuschließen.

Tab. 4: Untersuchte Probenserie

Probe	Implantationsparameter	Temperung	Herstellungsdatum
45-2	$1 \cdot 10^{16} \text{cm}^{-2} \text{Ge}^+$ mit 250keV bei 700°C	30s bei 1600°C	19.01.2001
34-2	$1 \cdot 10^{16} \text{cm}^{-2} \text{Ge}^+$ mit 250keV bei 700°C	120s bei 1600°C	17.11.2000
46-1	$1 \cdot 10^{16} \text{cm}^{-2} \text{Ge}^+$ mit 250keV bei 700°C	360s bei 1600°C	19.01.2001

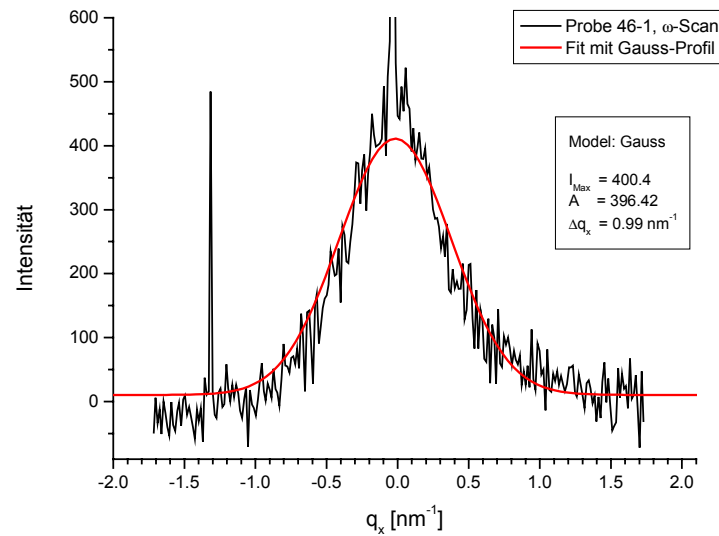


Abb. 31: ω -Scan der Probe 46-1 bei $2\theta = 28,28^\circ$ angefitet mit einem Gaußkurvenprofil

Abbildung 31 zeigt beispielhaft einen ω -Scan der Probe 46-1 beim Maximum $2\theta=28,28^\circ$ des Germanium-(111)-Reflexes der Nanokristallite. Die Ordinate wurde in die Koordinaten des reziproken Raumes umgerechnet, um einen Vergleich zwischen den einzelnen Messungen unabhängig von der verwendeten Wellenlänge zu ermöglichen. Der Zusammenhang zwischen dem Winkelraum und dem reziproken Raum ist wie folgt:

$$\begin{aligned} q_x &= \frac{2\pi}{\lambda} [\cos \omega - \cos(2\theta - \omega)] \\ q_z &= \frac{2\pi}{\lambda} [\sin \omega + \sin(2\theta - \omega)] \end{aligned} \quad (6.2.2)$$

Der gemessene *Peak* wurde mit einem Gaußprofil gefittet und die integrale Breite Δq_x bestimmt. Aus der integralen Breite Δq_x im reziproken Raum kann mit Hilfe des Diagramms „Abhängigkeit der integralen Breite der Intensitätsverteilung $I_{\text{Modell}}(q_x)$ von der Hallachse s des Nanokristallites“ (siehe Abb. 30) der Radius R_\perp der Nanokristallite senkrecht zur Oberflächennormalen ermittelt werden.

Analog wurde dieses Verfahren auch für die entsprechenden $\omega/2\theta$ -Scans angewendet. Tabelle 5 zeigt die Ergebnisse der Messungen an der Probenserie.

Tab. 5: Ergebnisse der Messungen an der Probenserie

Probe	45-2	34-2	46-1
Datum der Messungen	31.01.2001- 04.02.2001	22.11.2000- 27.11.2000	31.01.2001- 04.02.2001
integrale Breite $\beta(\omega)$ vom ω -Scan im Winkelraum	3,20°	2,58°	2,44°
integrale Breite $\beta(q)$ vom ω -Scan im reziproken Raum	1,10nm ⁻¹	0,89nm ⁻¹	0,84nm ⁻¹
Fehler $\delta(\beta(q))$	± 0,04nm ⁻¹	± 0,04nm ⁻¹	± 0,04nm ⁻¹
Mittlerer Radius R_{\perp} der Nanokristallite senkrecht zur Oberflächennormalen	3,40nm	4,20nm	4,45nm
Untere/obere Fehlergrenze von R_{\perp}	3,25nm/3,55nm	3,95nm/4,45nm	4,20nm/4,75nm
integrale Breite $\beta(2\theta)$ vom $\omega/2\theta$ -Scan im Winkelraum	2,12°	1,82°	1,11°
integrale Breite $\beta(q)$ vom $\omega/2\theta$ -Scan im reziproken Raum	1,45nm ⁻¹	1,25nm ⁻¹	0,76nm ⁻¹
Fehler $\delta(\beta(q))$	± 0,04nm ⁻¹	± 0,04nm ⁻¹	± 0,04nm ⁻¹
Mittlerer Radius R_{\parallel} der Nanokristallite parallel zur Oberflächennormalen	2,60nm	3,00nm	4,90nm
Untere/obere Fehlergrenze von R_{\parallel}	2,50nm/2,70nm	2,90nm/3,10nm	4,60nm/5,20nm

Die Fehler bei der Bestimmung der integralen Breite der Messkurven setzen sich aus zwei Anteilen zusammen. Zum einen aus einen Fehleranteil, der aufgrund der Messanordnung (z.B. Divergenz der Strahlung) verursacht wird und zum anderen aus der Unsicherheit, die durch das Anpassen der Messkurve mit einem Gauß-Profil entsteht.

Im Experiment musste wegen der geringen Intensität der Nanokristallit-Reflexe eine relativ breite Detektorblende in der Beugungsebene von 1,09mm verwendet werden. Der Proben-Detektor-Abstand betrug 700mm, somit ergibt sich eine Divergenz in der Beugungsebene

von $0,09^\circ$. Dies ruft einen Fehler von $\delta(\Delta q_x) = 0,03\text{nm}^{-1}$ hervor. Hinzu kommt noch die Unsicherheit aus der Kurvenanpassung bei der Bestimmung der integralen Breite von $\delta(\Delta q_x)=0,01\text{nm}^{-1}$. Die Verschiebung des Maximums $2\theta_0$ (fester Detektorwert) und ω_0 (Maximum der Rockingkurve) aufgrund der Divergenz der Strahlung hat fast keinen Einfluss auf die integrale Breite im reziproken Raum Δq_x .

6.2.5. Abhängigkeit der durchschnittlichen Nanokristallitgröße von der Temperaturzeit

Aus den Messungen an der im Kapitel 6.2.4. beschriebenen Probenserie zeigt sich eine Abhängigkeit der Ge-Nanokristallitgröße von der Temperatur-Nachbehandlung. Alle Proben dieser Serie wurden unter gleichen Bedingungen mit $1 \cdot 10^{16}\text{cm}^{-2}$ Ge⁺-Ionen bei 700°C mit 250keV implantiert, anschließend einer unterschiedlich langen Temperatur-Behandlung bei 1600°C unterzogen und einige Tage nach der Herstellung vermessen.

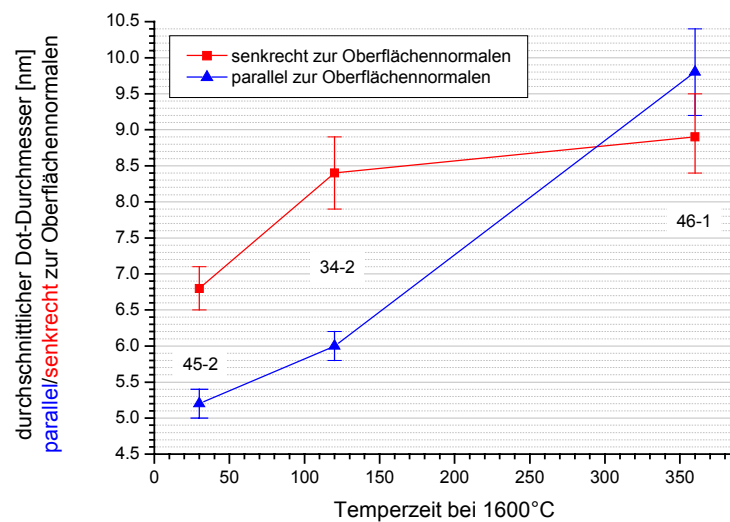


Abb. 32: Abhängigkeit der durchschnittlichen Ge-Nanokristallitgröße (Durchmesser) von der Temperaturzeit bei 1600°C

Abbildung 32 zeigt die Abhängigkeit der durchschnittlichen Ge-Nanokristallitgröße (Durchmesser) von der Dauer der Temperaturbehandlung bei 1600°C. Die kleinsten Ge-Nanokristallite, sowohl in lateraler als auch in normaler Richtung, bilden sich bei der kürzesten Temperaturbehandlung von 30s.

6.3. Alterung der Probe

Im folgenden wurde die zeitliche Stabilität der Ge-Nanokristallite untersucht. Im Hinblick auf spätere Anwendungen von eingebetteten Ge-Nanokristalliten ist diese Fragestellung von großem Interesse. Zur Untersuchung von Alterungsprozessen sollte ein zerstörungsfreies Messverfahren angewendet werden, um mögliche Einflüsse der Präparation auszuschließen. Bei einem zerstörungsfreiem Messverfahren bleibt die Probe intakt und es können an der selben Probe nach verschiedenen Zeiten analoge Messungen durchgeführt werden. Somit ist gewährleistet, dass zum Beispiel keine Spannungen innerhalb der Probe durch äußere Einflüsse abgebaut werden.

Während des Alterungsprozesses von Nanokristalliten kann unter anderen mit folgenden Erscheinungen gerechnet werden:

- Abnahme des gesamten streuenden kristallinen Volumens (kleinere Nanokristallite lösen sich auf)
- Zunahme des gesamten streuenden kristallinen Volumens (neue Nanokristallite bilden sich oder die vorhandenen Nanokristallite vergrößern ihr Volumen)
- Verteilungsfunktion der Nanokristallitgröße verschmälert sich (es existiert eine energetisch begünstigte Nanokristallitgröße)
- Verteilungsfunktion der Nanokristallitgröße verbreitert sich (durch Neubildung bzw. ungleichmäßiges Wachstum der Nanokristallite)
- Verteilungsfunktion der Nanokristallitgröße behält die Kurvenform bei aber das Maximum verschiebt sich zu anderen Werten

Nachfolgend wird die Auswirkung einiger dieser Erscheinungen auf die Integralintensität, Maximalintensität bzw. die integrale Breite der gesamten Intensitätsverteilung an ausgewählten Beispielen abgeschätzt. Dabei wurde angenommen, dass nur jeweils ein

Prozess stattfindet. In der Realität muss man aber mit der gleichzeitigen Änderung mehrerer Eigenschaften der Nanokristallite rechnen. Somit entsteht das resultierende Intensitätsprofil aus einer Überlagerung verschiedener Einflüsse. Anhand der Berechnungen für die ausgewählten Beispiele können die qualitativen Aussagen getroffen werden, die in Tabelle 6 dargestellt sind.

Tab. 6: Auswirkungen von einzelnen Alterungsprozessen auf die Eigenschaften der zu erwartenden Intensitätsverteilung

Alterungsprozess	Eigenschaften der Intensitätsverteilung		
	Integral-Intensität	Maximal-Intensität	Integrale Breite
Abnahme des gesamten streuenden kristallinen Volumen	nimmt ab	nimmt ab	bleibt gleich
Zunahme des gesamten streuenden kristallinen Volumen	nimmt zu	nimmt zu	bleibt gleich
Verteilungsfunktion verschmälert sich	nimmt ab	nimmt ab	nimmt zu
Verteilungsfunktion verbreitert sich	nimmt zu	nimmt zu	nimmt ab
Verteilungsfunktion behält die Kurvenform bei, aber Maximum verschiebt sich zu größeren Werten	nimmt zu	nimmt zu	nimmt ab
Verteilungsfunktion behält die Kurvenform bei, aber Maximum verschiebt sich zu kleineren Werten	nimmt ab	nimmt ab	nimmt zu

Die erste der hier vorgestellten Proben wurde am 19.01.2001 mit $1 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-2}$ Ge⁺-Ionen bei 700°C mit 250keV implantiert und am 24.01.2001 einer Temperatur-Behandlung bei 1600°C für 360s unterzogen. Sie wurde kurz nach ihrer Herstellung und nach 5 bzw. 20 Monaten vermessen.

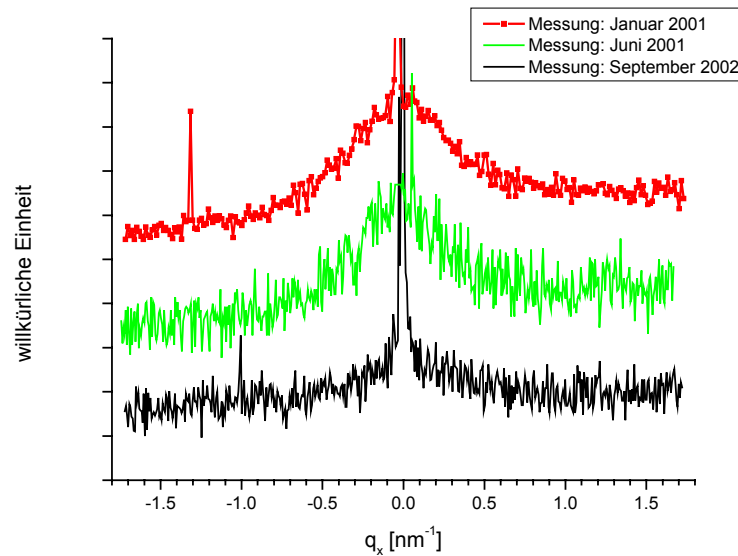


Abb. 33: ω -Scans der Probe 46-1 (in q_x -Koordinaten dargestellt) zu verschiedenen Messzeiten, die Intensität der Messkurven vom Januar 2001 und vom Juni 2002 wurden zur besseren Veranschaulichung mit einem *offset* von 200 bzw. 100 dargestellt

Aus Abbildung 33 erkennt man die Änderung der integralen Breite von Δq_x in Abhängigkeit des Probenalters. Die an den Ge-Nanokristalliten abgebeugte Intensität (Maximalintensität und Integralintensität) hat sich mit zunehmendem Alter der Probe stark verringert. Das Signal-Rausch-Verhältnis hat sich dementsprechend verschlechtert. Tabelle 7 zeigt die Ergebnisse der Messungen an der Probe 46-1 ($1 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-2} \text{ Ge}^+$ mit 250keV bei 700°C, getempert für 360s bei 1600°C) zu den verschiedenen Messperioden. Die im Juni 2002 und im September 2002 gemessenen $\omega/2\theta$ -Scans im Bereich des Ge-(111)-Nanokristallitreflexes waren nicht auswertbar. Die Intensität des Nanokristallitreflexes war so gering, dass er von der Intensität des Ausläufers des 4H-SiC-(0004)-Reflexes vollständig überdeckt wurde. Auch eine leichte Verstimmung (analog Abb. 20) des Substratreflexes ergab keinen auswertbaren Nanokristallitreflex im $\omega/2\theta$ -Scan.

Tab. 7: Abhängigkeit des Ge-Nanokristallit-Reflexes vom Alter der Probe

Probe	46-1	46-1	46-1
Datum der Messungen	31.01.2001- 04.02.2001	27.06.2001- 02.07.2001	01.09.2002- 06.09.2002
Wellenlänge λ	0,15468nm	0,12039nm	0,12039nm
Integrale Breite $\beta(\omega)$ vom ω-Scan im Winkelraum	2,44°	2,09°	1,60°
Integrale Breite $\beta(q)$ vom ω-Scan im reziproken Raum	0,84nm⁻¹	0,71m⁻¹	0,55nm⁻¹
Fehler $\delta(\Delta q_x)$	± 0,04nm⁻¹	± 0,04nm⁻¹	± 0,04nm⁻¹
Mittlerer Radius R_{\perp} der Nanokristallite senkrecht zur Oberflächennormalen	4,45nm	5,25nm	6,80nm
Untere/obere Fehlergrenze von R_{\perp}	4,25nm/4,75nm	4,90nm/5,60nm	6,20nm/7,50nm

Es zeigt sich mit zunehmendem Probenalter eine geringere Integralintensität, eine geringere Maximalintensität und eine geringere integrale Breite. Das könnte bei der Annahme einer δ -förmigen Größenverteilungsfunktion mit einer Zunahme der Größe der Ge-Nanokristallite senkrecht zur Oberflächennormalen erklärbar sein. Diese Abhängigkeit unter der Annahme der δ -förmigen Größenverteilungsfunktion ist in Abbildung 34 dargestellt.

Der Befund der Messungen könnte aber auch mit einer Kombination verschiedener Phänomene, die sich gegenseitig teilweise kompensieren und oben näher erläutert sind, erklärt werden. Zum Beispiel ist es denkbar, dass sich die Größenverteilungsfunktion der Nanokristallite mit zunehmendem Probenalter verbreitert und gleichzeitig das gesamte kristalline Volumen abgenommen hat. Oder die Größenverteilungsfunktion der Nanokristallite hat sich mit zunehmendem Probenalter verschmälert und zu größeren Nanokristallitgrößen verschoben. Zusätzliche Randbedingungen sind für das hier

untersuchte Probensystem nicht verfügbar. Somit kann die wahre Ursache für die Änderung der integralen Breite mit zunehmendem Probenalter hier nicht geklärt werden.

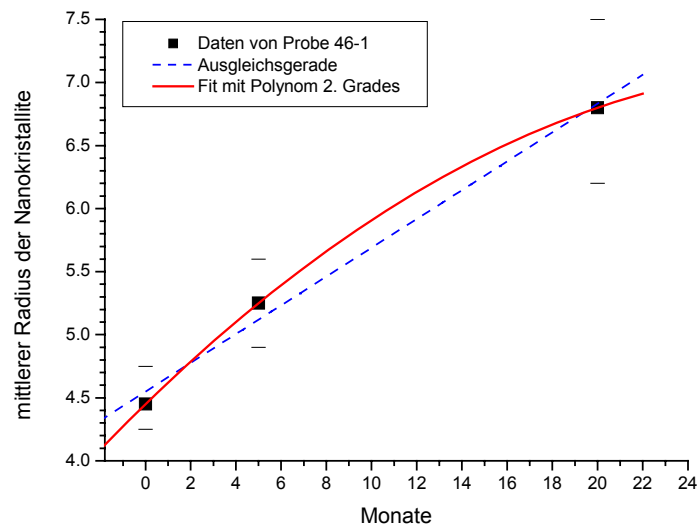


Abb. 34: Änderung der Ge-Nanokristallitgröße in lateraler Richtung in Abhängigkeit des Probenalters

Die Messungen an der Probe 46-1 zu den verschiedenen Zeitpunkten wurden alle am Synchrotron in Grenoble durchgeführt. Aufgrund der begrenzten Anzahl der Messzeiten in Grenoble, war es nicht möglich, noch zu weiteren Zeitpunkten die gleiche Probe zu vermessen. Bei nur drei Messpunkten lässt sich das zeitliche Verhalten der Änderung der Nanokristallitgröße unter der Annahme einer δ -förmigen Größenverteilungsfunktion nicht genau bestimmen.

Bei einer anderen Probe 34-2 ($1 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-2} \text{ Ge}^+$ mit 250keV bei 700°C, für 120s getempert bei 1600°C) konnte jeweils ein $\omega/2\theta$ -Scan im Bereich des Ge-(111)-Nanokristallitreflexes an der frisch hergestellten Probe (implantiert am 17.11.2000, getempert am 20.11.2000) und nach einem Probenalter von zwei Monaten gemessen werden (siehe Abb. 35).

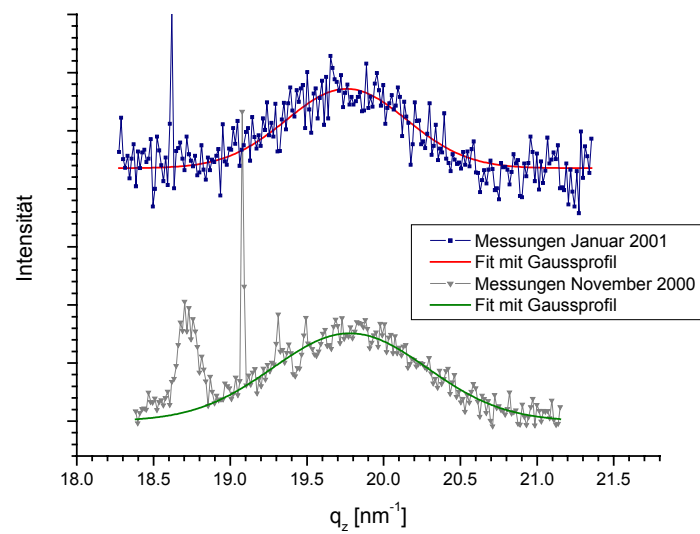


Abb. 35: $\omega/2\theta$ -Scans der Probe 34-2 (in q_z -Koordinaten dargestellt) zu verschiedenen Messzeiten, die Intensität der Messkurven ist in willkürlichen Einheiten dargestellt und die Intensitäten der einzelnen Kurven sind daher nicht miteinander vergleichbar

Bei beiden Messungen war das Signal-Rausch-Verhältnis relativ schlecht, deshalb ergab die Anpassung mit einem Gaußprofil eine mit einem großen Fehler behaftete integrale Breite. Unter der Annahme einer δ -förmigen Größenverteilungsfunktion kann auf ein nachträgliches Wachstum der Ge-Nanokristallite geschlossen werden. Auch hier kann die wahre Ursache für die Änderung der integralen Breite mit zunehmendem Probenalter nicht umfassend geklärt werden. Die Ergebnisse der Messungen sind in Tabelle 8 dargestellt.

Tab. 8: Abhängigkeit des Ge-Nanokristallit-Reflexes vom Alter der Probe

Probe	34-2	34-2
Datum der Messungen	22.11.2000- 27.11.2000	31.01.2001- 04.02.2001
Wellenlänge λ	0,15377nm	0,15468nm
Integrale Breite $\beta(2\theta)$ vom $\omega/2\theta$ -Scan im Winkelraum	1,82°	1,44°
Integrale Breite $\beta(q)$ vom $\omega/2\theta$ -Scan im reziproken Raum	1,25nm ⁻¹	0,99nm ⁻¹
Fehler $\delta(\Delta q_z)$	± 0,04nm ⁻¹	± 0,06nm ⁻¹
Mittlerer Radius R_{\perp} der Nanokristallite parallel zur Oberflächennormalen	3,00nm	3,80nm
Untere/obere Fehlergrenze von R_{\perp}	2,90nm/3,10nm	3,50nm/4,10nm

Beide Proben (46-1 und 34-2) sind unter gleichen Bedingungen implantiert und die Temperatur-Nachbehandlung bei 1600°C wurde für 360s bzw. 120s durchgeführt. Insgesamt ergibt sich aus den Messungen unter der Annahme einer δ -förmigen Größenverteilungsfunktion eine Zunahme der Nanokristallitgröße in beiden Richtungen lateral und normal zur Oberflächennormalen mit zunehmendem Probenalter.

6.4. Problem der Reflexverschiebung

6.4.1. Allgemein

Auffallend ist bei den Messungen eine Reflexverschiebung der Ge-Nanokristallit-Reflexe gegenüber der Winkelposition für reine Ge-Kristalle zu größeren Winkeln (z.B. $\omega/2\theta$ -Scan Abb.23). Diese Braggwinkerverschiebung wird durch die Änderung des Netzebenenabstandes bewirkt, was einer Gitterkonstantenänderung von $(\Delta a/a)_{\text{Ge}} = 3,1 \cdot 10^{-2}$ entspricht. Diese Veränderung könnte durch hydrostatischen Druck, der von der umgebenen SiC-Matrix während des Abkühlens nach dem Anlassen auf die Ge-Nanokristallite kompressiv

wirkt, verursacht werden. Andererseits ist es auch denkbar, dass sich keine reinen Ge-Nanokristallite sondern $\text{Ge}_{1-x}\text{Si}_x$ -Mischkristallite gebildet haben und die Braggwinkelverschiebung mit der Vegardschen Regel erklärbar wäre.

Den Einfluss der stöchiometrischen Zusammensetzung und den auftretenden Spannungen an den Grenzflächen zum Substrat zu trennen, ist bei dünnen kristallinen Schichten relativ einfach. Bei diesen Schichten, die verspannt auf einem Substrat aufwachsen, ändern sich die Gitterkonstanten in normaler und lateraler Richtung nicht unabhängig von einander. Ein übliches Verfahren zur Bestimmung der stöchiometrischen Zusammensetzung bei kristallinen Schichten mit kubischer bzw. hexagonaler Kristallstruktur ist die hochauflösende Messung entlang des reziproken Gittervektors von symmetrischen und asymmetrischen Reflexen. Aus diesen Messungen können die Gitterkonstanten der Schicht parallel und senkrecht zur Oberflächennormalen bestimmt werden. Mit der Kenntnis der Abhängigkeit der Gitterkonstante von der Änderung der Konzentration eines Bestandteiles des Mischkristalls (z.B. Abhängigkeit entsprechend der Vegard'schen Regel) und unter Verwendung des Poisson-Verhältnisses kann die gesuchte Konzentration des Bestandteiles der Schicht bestimmt werden. In [GÖRGENS 2000, SRINIVASAN 2001] wurde dies für InGaN-Schichten auf Saphir-Substraten durchgeführt. Andere Verfahrensweisen zur Bestimmung von Verspannungen in dünnen Schichten und Nanokristalliten sind in [ANGERER 1997, PEREIRA 2001, SHILO 2001, KÖGLER 2003] beschrieben.

Hydrostatischer Druck, der allseitig kompressiv auf die Ge-Nanokristallite wirkt, verursacht eine gleichförmige Verringerung der Gitterkonstanten in normaler und lateraler Richtung bezüglich der Oberflächennormale. Daraus resultiert eine homogene Deformation der Nanokristallite (siehe Modellvorstellung Kap. 4.1.). Deshalb ist das oben beschriebene Verfahren nicht auf das zu untersuchende Probensystem anwendbar.

Eventuell auftretende Spannungen innerhalb der Ge-Nanokristallite würden beispielsweise die gewünschte Photolumineszenz der Quantendots erheblich beeinflussen (Kap. 4.1.). Deshalb zeigen die Probenhersteller und andere Diagnostiker großes Interesse an der Ursache für die Braggwinkelverschiebung. Zur Klärung dieser Fragestellung gibt es zwei verschiedene Wege. Einerseits kann man versuchen, die Spannungen in der SiC-Matrix, die die Ge-Nanokristallite umgibt, zu bestimmen. Daraus kann auf die Spannungen, unter denen die Nanokristallite stehen, geschlossen werden. Andererseits könnte man die Stöchiometrie der Ge-Nanokristallite direkt bestimmen. Beide Wege wurden in dieser

Arbeit verfolgt. Im Kapitel 6.4.3. wird die Bestimmung der Spannungen in der SiC-Matrix erläutert und im folgendem wird der Frage nach der stöchiometrischen Zusammensetzung der Ge-Nanokristallite nachgegangen.

6.4.2. Stöchiometrische Zusammensetzung der Ge-Nanokristallite

Zur Bestimmung der stöchiometrischen Zusammensetzung der Ge-Nanokristallite wurden Diffraktionsexperimente mit Strahlung in der Nähe der Ge-Absorptionskante unter Ausnutzung der anomalen Absorption an Ge durchgeführt.

6.4.2.1. Änderung des Streuvermögens an der Ge-Absorptionskante

Bei der Ge-Absorptionskante ändert sich das durch den Atomformfaktor beschriebene Streuvermögen von Germanium sprunghaft und das von Silizium nur minimal. Deshalb kann man die Streubeiträge im Diffraktogramm von Ge bzw. Si unterscheiden. Die Dispersionskorrektur des Atomformfaktor f ist gegeben durch den Realteil Δf_1 und den Imaginärteil Δf_2 [AUTHIER 2001]:

$$f\left(\frac{\sin \theta}{\lambda}\right) = f_0\left(\frac{\sin \theta}{\lambda}\right) + \Delta f_1\left(\frac{\sin \theta}{\lambda}\right) + i * \Delta f_2\left(\frac{\sin \theta}{\lambda}\right) \quad (6.4.1)$$

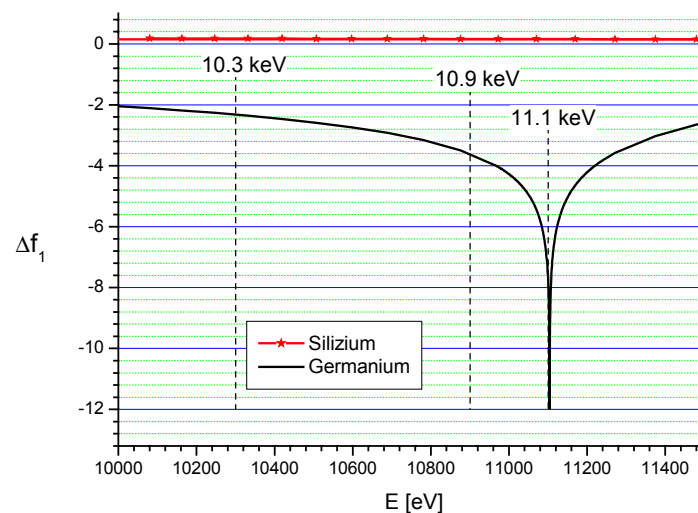


Abb. 36: Realteil der Dispersionskorrektur Δf_1 des Atomformfaktors von Germanium und Silizium als Funktion der Energie in der Nähe der Ge-K-Absorptionskante ($E = 11,103\text{keV}$)

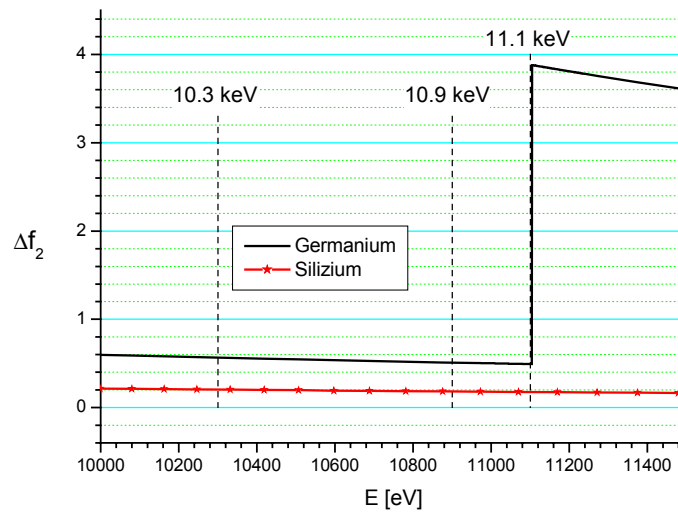


Abb. 37: Imaginärteil der Dispersionskorrektur Δf_2 des Atomformfaktors von Germanium und Silizium als Funktion der Energie in der Nähe der Ge-K-Absorptionskante ($E = 11,103\text{keV}$)

Die Größe der Nanokristallite ist geringer als die Extinktionslänge, deshalb kann die kinematische Näherung verwendet werden. In dieser Näherung ist die reflektierte Integralintensität I proportional zum Strukturfaktorquadrat $|F_{hkl}|^2$. Es gilt:

$$I = \frac{\lambda^3 R_e^2}{\sin 2\theta_B} \times \frac{\Delta V}{V_{EZ}^2} \times \frac{(1 + \cos^2 2\theta_B)}{2} \times |F_{hkl}|^2 \quad (6.4.2)$$

wobei λ die Wellenlänge, R_e der klassische Elektronenradius, θ_B der Braggwinkel, ΔV das bestrahlte Probenvolumen, V_{EZ} das Volumen der Elementarzelle, $(1 + \cos^2 2\theta_B)$ der Polarisationsfaktor und F_{hkl} der Strukturfaktor sei.

Für die Diamantstruktur von Ge gilt:

$$F_{hkl} = \sum_{j=1}^8 f_j \left(\frac{\sin \theta}{\lambda} \right) e^{2\pi i(x_j h + y_j k + z_j l)}$$

$$F_{hkl} \left(\frac{\sin \theta}{\lambda} \right) = 8 * f \left(\frac{\sin \theta}{\lambda} \right) \quad \text{für } h + k + l = 4n \quad (6.4.3)$$

$$F_{hkl} \left(\frac{\sin \theta}{\lambda} \right) = 4 * f \left(\frac{\sin \theta}{\lambda} \right) (1 + i) \quad \text{für } h + k + l = 4n + 1$$

$$|F_{hkl}|^2 = 64 \left[(f_0 + f_1)^2 + (f_2)^2 \right] \quad \text{für } h + k + l = 4n \quad (6.4.4a)$$

$$|F_{hkl}|^2 = 32 \left[(f_0 + f_1)^2 + (f_2)^2 \right] \quad \text{für } h + k + l = 4n + 1 \quad (6.4.4b)$$

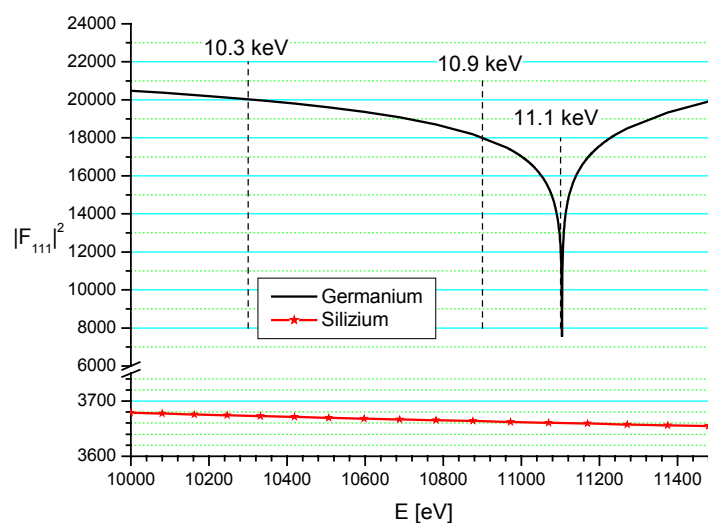


Abb. 38: Betragquadrat des Strukturfaktors $|F_{111}|^2$ von Germanium (siehe Gl. (6.4.4b)) und Silizium in der Nähe der Ge-K-Absorptionskante ($E = 11,103\text{keV}$)

Zur Bestimmung des Germaniumanteils in den Nanokristalliten führt man Messungen an einer Probe und beim gleichen Reflex mit zwei verschiedenen Wellenlängen durch. Die Differenz zwischen den Strukturfaktoren $|F_{hkl}|$ bei den jeweiligen Wellenlängen sollte möglichst groß sein (z.B. 10,3keV und 11,1keV). Aus der Änderung der abgebeugten Intensität des Ge-Reflexes wird das Verhältnis der Strukturfaktorquadrate bestimmt und damit kann auf den Germaniumanteil in den Nanokristalliten geschlossen werden.

Die Intensität der Reflexe der vergrabenen Ge-Nanokristallite ist trotz Synchrotronstrahlung sehr gering. Deshalb wurde dieses Verfahren zuerst an Ge-Nanokristalliten, die sich auf der Oberfläche eines 6H-SiC-Wafers befinden, getestet (siehe Kapitel 6.4.2.3.).

6.4.2.2. Kalibrierung der Wellenlänge und I_0 -Intensität

Für Diffraktionsexperimente mit Strahlung in der Nähe von Absorptionskanten muss die Energie der Strahlung auf wenige Elektronenvolt genau einstellbar und auch entsprechend kalibrierbar sein. Diese Anforderungen erfüllt unter anderem die ROBL-Beamline an der ESRF. An dieser Beamline können z.B. Röntgen-Absorptions-Feinstruktur-Messungen

(XAFS) durchgeführt werden. Die Energieauflösung mit dem Si-(111)-Kristall als Doppelkristallmonochromator beträgt $1,5-2,5 \cdot 10^{-4}$ [MATZ 1999].

Zur Feinabstimmung der Wellenlänge wird eine standardisierte Absorptionsfolie (z.B. Ge-Folie) in den Strahlengang vor den Detektor eingebracht und die Transmission der Strahlung gemessen, während der Einfallswinkel am Monochromatorkristall leicht variiert wird. Anschließend wird das Maximum der 1. Ableitung der Transmission bestimmt. Der Einfallswinkel am Monochromatorkristall wird so eingestellt, dass das Maximum der 1. Ableitung der Transmission bei der Energie der entsprechenden Absorptionskante der verwendeten Folie liegt (z.B. bei der Ge-Folie: 11,103keV). Somit ist die Energie der Strahlung kalibriert.

Bei kleinen Energieänderungen in Bereich von ca. 1keV geht die Zuordnung zwischen dem Einfallswinkel am Monochromatorkristall und der entsprechenden Energie nicht verloren. Somit kann man in einem kleinen Energiebereich (1-2keV) Messungen mit verschiedenen relativ genau bekannten Wellenlängen bzw. Energien der Strahlung ohne Neukalibrierung durchführen.

Die Intensität der einfallenden Strahlung wird am Monitor-Detektor bestimmt. Dazu wurden verschiedene Streufolien in den Strahlengang nach der Strahlformierung aber noch vor der Probe eingebracht. Die an diesen Streufolien gestreute Intensität wird mit einem Detektor registriert und als Vergleichswert für die I_0 -Strahlung bei verschiedenen Messungen genutzt. Da sich das Streuverhalten der Folien in Abhängigkeit von der Wellenlänge ändert, muss die Intensität der einfallenden Strahlung für jede verwendete Wellenlänge kalibriert werden. Die einfachste Methode zur Kalibrierung der Intensität der einfallenden Strahlung ist das Messen eines Reflexes einer entsprechenden Eichprobe. Die Verhältnisse der gestreuten Intensitäten bei den verschiedenen Wellenlängen können berechnet werden. Es wird eine Bezugswellenlänge gewählt und die I_0 -Intensität der Strahlung bei der verwendeten Wellenlänge mit einem Faktor multipliziert. Zur Berechnung des Korrekturfaktors wird angenommen, dass sich die Intensitätsänderung bei einer anderen Wellenlänge durch eine Änderung des Strukturfaktors multipliziert mit einem Korrekturfaktor, der alle apparativen Einflüsse enthält, ergibt.

Für die hier gezeigten Messungen wurde als Eichprobe eine Probe mit einer ca. 200nm dicken reinen Germanium-Schicht verwendet. Auf ein Glassubstrat wurde reines

Germanium aufgesputtert und anschließend getempert. Diffraktometrische Messungen zeigen Reflexe von polykristallinen Germanium, analog einem Pulverdiffraktogramm. Aufgrund der geringen Schichtdicke ist die Verwendung der kinematischen Näherung bei der Bestimmung des Korrekturfaktors gerechtfertigt.

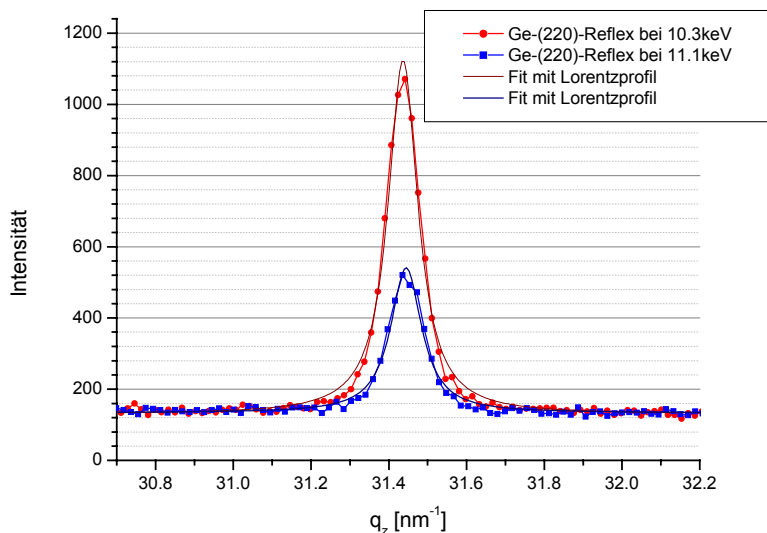


Abb. 39: Ge-(220)-Reflex bei 10,3keV und 11,1keV mit entsprechendem Lorentzfit (Intensität über q_z) schon mit Korrekturfaktor

Abbildung 39 zeigt den Ge-(220)-Reflex der Eichprobe gemessen bei der Wellenlänge $\lambda=0,12039\text{nm}$ (entspricht 10,3keV) und der Wellenlänge $\lambda=0,11169\text{nm}$ (entspricht 11,1keV). Als Bezugswellenlänge wurde $\lambda=0,12039\text{nm}$ (entspricht 10,3keV) gewählt. Bei einer Ge-Konzentration von 100% muss die Maximalintensität des Reflexes, gemessen mit der Wellenlänge $\lambda=0,11169\text{nm}$ (entspricht 11,1keV) das 0,477-fache der Maximalintensität des Reflexes, gemessen mit der Wellenlänge $\lambda=0,12039\text{nm}$ betragen. Aus dieser Forderung ergibt sich der Korrekturfaktor $1,250\pm 0,004$ für die I_0 -Intensität bei Messungen mit der Wellenlänge $\lambda=0,11169\text{nm}$. Der mit der Eichprobe bestimmte Korrekturfaktor für die Intensität bei der Wellenlänge $\lambda=0,11169\text{nm}$ wurde bei allen folgenden Messungen berücksichtigt.

6.4.2.3. Bestimmung des Ge-Gehaltes von OF-Nanokristalliten

Die Reflexe der Ge-Nanokristallite, die mittels MBE auf der 6H-SiC-Substratoberfläche aufgewachsen sind, zeigen nur eine sehr geringe Reflexverschiebung. Bei der verwendeten Wellenlänge von $\lambda=0,12039\text{nm}$ liegt die theoretische Lage eines reinen Germanium-Reflexes bei $2\theta=21,239^\circ$. Die Messungen an den aufgewachsenen Ge-Nanokristalliten ergaben eine Reflexposition von $2\theta=21,270^\circ$. Die geringe Verschiebung ist vermutlich auf eine geringe Beimischung von Silizium (ca. 3,5%) im Nanokristallit zurückzuführen. Bei der Herstellung der Nanokristallite wird auf das Substrat zuerst ein *Wettinglayer* aus SiO_2 mit einer Dicke von ca. einer Monolage aufgebracht und dann mit dem Wachstum der Ge-Nanokristallite begonnen. Während des Wachstums der Ge-Nanokristallite können vereinzelte Si-Atome aus dem *Wettinglayer* in das Ge-Gitter eingebaut werden und es entstehen $\text{Ge}_x\text{Si}_{1-x}$ -Mischkristallite. Die Ge-Nanokristallite wachsen frei auf der SiC-Oberfläche, somit können nur Spannungen an der Grenzfläche Nanokristallit-Matrix auftreten.

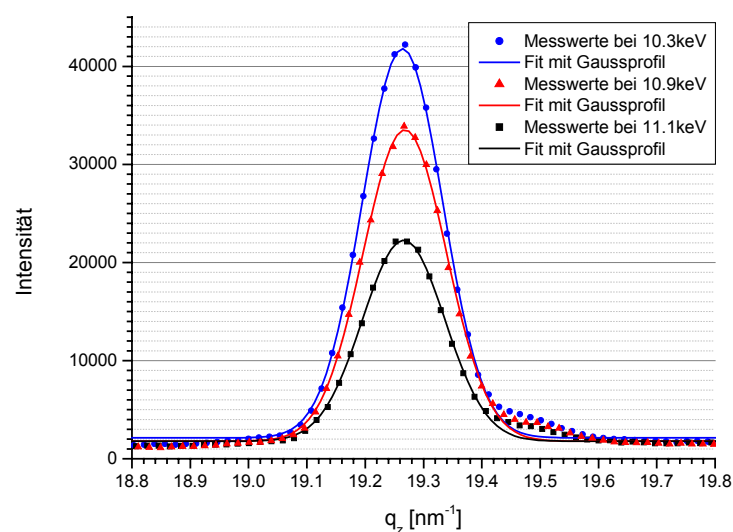


Abb. 40: $\omega/2\theta$ -Scans (aufgetragen über dem reziproken Gittervektor q_z) des Ge-(111)-Reflexes gemessen bei verschiedenen Wellenlängen bzw. Energien der Strahlung; untere schwarze Kurve mit Quadraten – Messung bei der Ge-K-Absorptionskante ($E_A=11,103\text{keV}$), obere graue Kurve mit Kreisen – Messung entfernt von der Ge-K-Absorptionskante, mittlere Kurve – Messung in der Nähe der Ge-K-Absorptionskante

Abbildung 40 zeigt die Änderung der abgelenkten Intensität des Ge-Reflexes bei verschiedenen Wellenlängen. In der unmittelbaren Nähe der Ge-K-Absorptionskante sinkt die Intensität des Reflexes erwartungsgemäß drastisch. Aus dem Intensitätsverhältnis gemessen bei der Bezugswellenlänge und einer der beiden anderen Wellenlängen wird das Verhältnis der Strukturfaktorquadrate wie folgt bestimmt.

$$\frac{|F_{111}|^2}{|F_{111}^*|^2} = \frac{I(10,3keV)}{I^*(11,1keV)} \times \frac{\lambda^{*3}}{\lambda^3} \times \frac{\sin 2\theta_B}{\sin 2\theta_B^*}$$

$$\Delta \left(\frac{|F_{111}|^2}{|F_{111}^*|^2} \right) = \frac{I(10,3keV)}{I^*(11,1keV)^2} \times \frac{\lambda^{*3}}{\lambda^3} \times \frac{\sin 2\theta_B}{\sin 2\theta_B^*} \times \Delta I^*(11,1keV) + \frac{1}{I^*(11,1keV)} \times \frac{\lambda^{*3}}{\lambda^3} \times \frac{\sin 2\theta_B}{\sin 2\theta_B^*} \times \Delta I(10,3keV) \quad (6.4.5)$$

die mit * gekennzeichneten Größen beziehen sich jeweils auf die Wellenlänge in der Nähe der Ge-K-Absorptionskante (E=10,9keV bzw. E=11,1keV), $I(10,3keV)$ - Bezugswellenlänge $\Delta I^*(11,1keV) = \Delta I^*$ (Korrekturfaktor) + ΔI^* (Max.-Best. beim Fit)

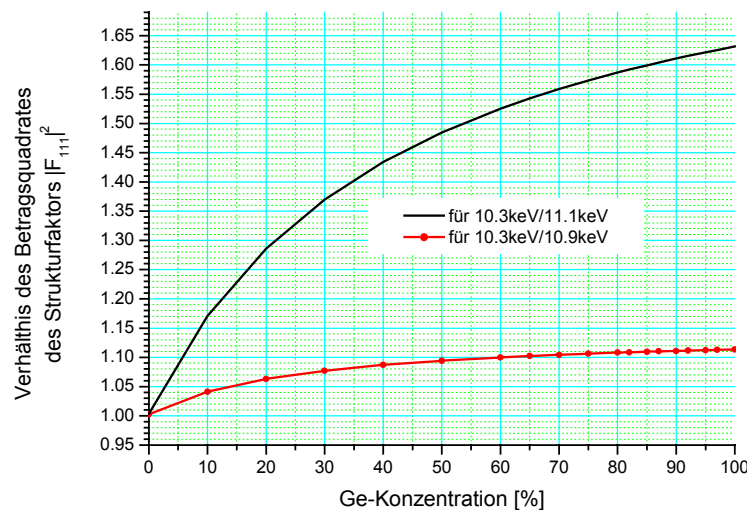


Abb. 41: Verhältnis der Strukturfaktorquadrate $|F_{111}|^2$ bei den hier verwendeten Wellenlängen für Ge_xSi_{1-x} -Mischkristallite in Abhängigkeit der Germaniumkonzentration x

Abbildung 41 zeigt die Änderung des Verhältnisses der Strukturfaktorquadrate in Abhängigkeit des Germaniumgehaltes von $\text{Ge}_x\text{Si}_{1-x}$ -Mischkristalliten. Die Werte beziehen sich auf den (111)-Reflex der Kristallite. Die untere Kurve stellt die Änderung für die Wellenlängenkombination $\lambda=0,12039\text{nm}$ ($E=10,3\text{keV}$) und $\lambda=0,11376\text{nm}$ ($E=10,9\text{keV}$) dar und die obere Kurve gilt für die Kombination $\lambda=0,12039\text{nm}$ ($E=10,3\text{keV}$) und $\lambda=0,11169\text{nm}$ ($E=11,1\text{keV}$). Mit der Energiekombination $10,3\text{keV}$ und $11,1\text{keV}$ erreicht man eine größere Genauigkeit bei der Bestimmung des Germaniumanteils in den Nanokristalliten, da die Differenz der Dispersionskorrekturen für Germanium relativ groß ist (siehe Abb. 36 und 37) und somit die entsprechende Kurve steiler im Bereich der hohen Ge-Konzentrationen ansteigt. Aus dem ermittelten Verhältnis der Strukturfaktorquadrate bestimmt man mit Hilfe der Abbildung 41 den Germaniumanteil in den Nanokristalliten. Die Ergebnisse sind in der folgenden Tabelle dargestellt.

Tab. 9: Bestimmung der stöchiometrischen Zusammensetzung der aufgewachsenen Ge-Nanokristallite auf 6H-SiC-Substraten

Energie der Röntgenstrahlung E	10,3keV	10,9keV	11,1keV
Wellenlänge λ	0,12039nm	0,11376nm	0,11169nm
Intensität im Maximum I	41800cps	33600cps	22300cps
Fehler der Intensitätsbestimmung*	$\pm 167\text{cps}^{**}$	$\pm 340\text{cps}$	$\pm 220\text{cps}$
Doppelter Braggwinkel $2\theta_B$	$21,239^\circ$	$20,057^\circ$	$19,688^\circ$
Verhältnis der Strukturfaktorquad. $ F_{111} ^2$ bei 10,3keV zu $ F_{111}^* ^2$	1	1,1087	1,6094
Fehler des Verhältnisses der Strukturfaktorquadrate	-	$\pm 0,0156$	$\pm 0,0223$
Germaniumanteil in den Nanokristalliten	-	82,5%	89,0%
Untere/obere Fehlergrenze vom Germaniumanteil	-	48,5% / 100%	80,0% 100,0%

*inklusive des Fehlers bei der Korrektur der Intensität (in Abhängigkeit des veränderten Streuvermögens vom Monitor – siehe Kap. 6.3.2.) bei den verschiedenen Wellenlängen, **Bezugswellenlänge

6.4.2.4. Bestimmung des Ge-Gehaltes von implantierten Nanokristalliten

Die Reflexe der Ge-Nanokristallite, die nach der Implantation und der anschließenden Temperaturbehandlung im 4H-SiC-Substrat entstanden sind, zeigen eine sehr große Reflexverschiebung zu größeren Winkeln. Im folgenden wird untersucht, ob es sich um reine Ge-Nanokristallite oder $\text{Ge}_{1-x}\text{Si}_x$ -Mischkristallite handelt und die Braggwinkelverschiebung mit der Vegardschen Regel erklärbar wäre. Dazu wurden Messungen mit Strahlungsenergien in der Nähe der Ge-K-Absorptionskante ($E_A = 11,103\text{keV}$) und entfernt davon durchgeführt. Die dazu nötige Energie- und Intensitätskalibrierung wurde im Kapitel 6.4.2.2. beschrieben. Die folgenden Messungen wurden an der Probe 46-1 (Implantation mit $1 \cdot 10^{16}\text{cm}^{-2}$ Ge^+ mit 250keV bei 700°C und anschließender Temperaturbehandlung bei 1600°C für 360s) durchgeführt.

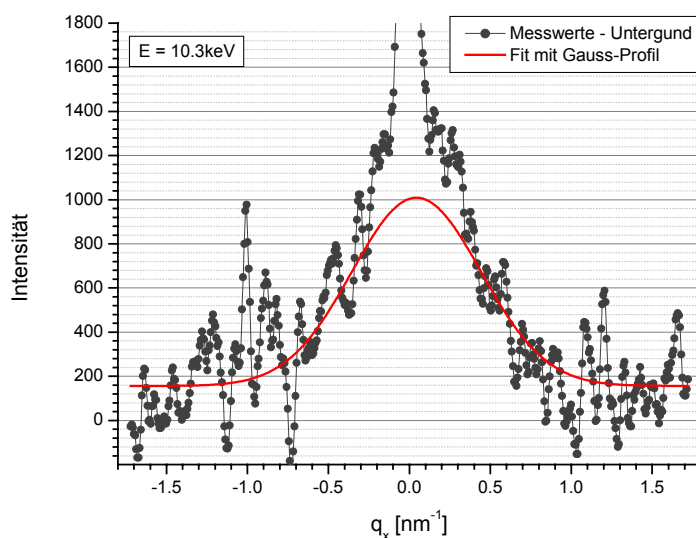


Abb. 42: ω -Scan bei $2\theta = 21,8^\circ$ (aufgetragen über dem reziproken Gittervektor q_x) des Ge-(111)-Reflexes gemessen bei der Energie der Strahlung entfernt von der Ge-K-Absorptionskante ($E = 10,3\text{keV}$); graue Kurve – Fit mit Gauß-Profil des Reflexes der Ge-Nanokristallite

Abbildung 42 zeigt die Messung des ω -Scans bei der Winkelposition des Maximums des Ge-(111)-Reflexes bei $2\theta = 21,8^\circ$. Die Intensität des Ge-(111)-Reflexes ist sehr gering und wird noch von dem Ausläufer des 4H-SiC-(0004)-Reflexes (*'crystal truncation rod'* der perfekten Matrix) überlagert. Die gemessene Kurve wurde mit einem Gauß-Profil für den

Ge-Reflex und einem Lorentz-Profil für den 4H-SiC-Ausläufer gefittet und so die Intensität im Maximum des Ge-(111)-Reflexes, bei der Energie der Strahlung entfernt von der Ge-K-Absorptionskante ($E = 10,3\text{keV}$) bestimmt.

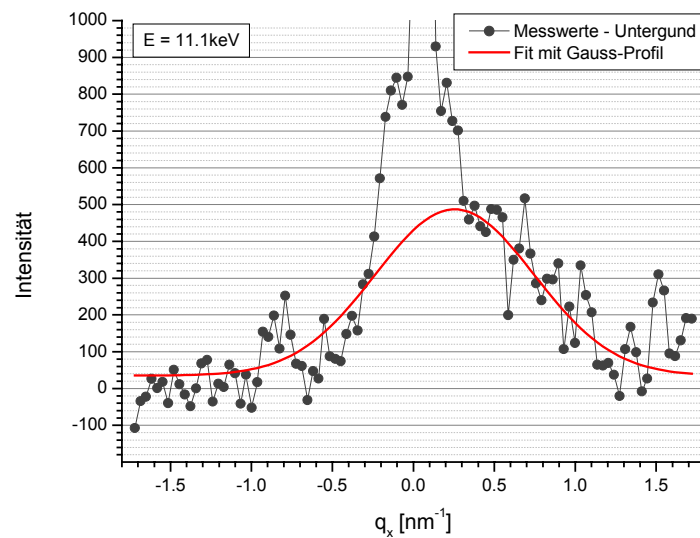


Abb. 43: ω -Scan bei $2\theta = 20,2^\circ$ (aufgetragen über dem reziproken Gittervektor q_x) des Ge-(111)-Reflexes gemessen bei der Energie der Strahlung in der Nähe der Ge-K-Absorptionskante ($E = 11,1\text{keV}$); graue Kurve – Fit mit Gauß-Profil des Reflexes der Ge-Nanokristallite

Abbildung 43 zeigt die Messung des ω -Scans, gemessen bei der Energie der Strahlung in der Nähe der Ge-K-Absorptionskante ($E = 11,1\text{keV}$). Der Detektor wurde auf die Winkelposition $2\theta = 20,2^\circ$ gestellt, dies entspricht der gleichen Position des reziproken Gittervektors in Richtung q_z wie bei der Messung des ω -Scans entfernt von der Ge-K-Absorptionskante. Somit wird bei dieser Detektorposition die maximal reflektierte Intensität im ω -Scan gemessen. Die gemessene Intensität bei $E = 11,1\text{keV}$ wurde entsprechend dem in Kapitel 6.4.2.2. beschriebenen Verfahren kalibriert, somit sind die reflektierten Intensitäten beider Diagramme (Abb. 42 und Abb. 43) miteinander vergleichbar. Die gemessene Kurve wurde mit einem Gauß-Profil für den Ge-Reflex und einem Lorentz-Profil für den 4H-SiC-Ausläufer gefittet und somit die Maximalintensität des Ge-(111)-Reflexes, bei der Energie der Strahlung in der Nähe von der

Ge-K-Absorptionskante ($E = 11,1\text{keV}$) bestimmt. Die Intensität des Ge-(111)-Reflexes sinkt erwartungsgemäß drastisch ab, wogegen die Intensität des Ausläufers des 4H-SiC-(0004)-Reflexes nahezu konstant bleibt. Aufgrund der sehr geringen Peakintensität des Ge-Reflexes und des starken Einflusses des 4H-SiC-Ausläufers ist die Bestimmung der Maximalintensität des Ge-(111)-Reflexes mit großen Fehlern behaftet. Dies führt zu einem entsprechend großen Fehler bei der Bestimmung der Ge-Konzentration der Nanokristallite. Die Ergebnisse der Messungen bei beiden Wellenlängen sind in Tabelle 10 angegeben. Die Berechnung des Verhältnisses der Strukturfaktorquadrate und die Bestimmung des Germaniumanteils in den Nanokristalliten sind analog denen im Kapitel 6.4.2.3. durchgeführt.

Tab. 10: Bestimmung der stöchiometrischen Zusammensetzung der implantierten Ge-Nanokristallite in 4H-SiC-Substraten

Energie der Röntgenstrahlung E	10,3keV	11,1keV
Wellenlänge λ	0,12039nm	0,11169nm
Intensität im Maximum I	853cps	452cps
Fehler der Intensitätsbestimmung*	$\pm 3\text{cps}^{**}$	$\pm 20\text{cps}$
Doppelter Braggwinkel $2\theta_B$	21,8°	20,2°
Verhältnis der Strukturfaktorquadrate $ F_{111} ^2$ bei 10,3keV zu $ F_{111}^* ^2$ bei 11,1keV	1	1,621
Fehler des Verhältnisses der Strukturfaktorquadrate	-	$\pm 0,077$
Germaniumanteil in den Nanokristalliten	-	94,5%
Untere/obere Fehlergrenze vom Germaniumanteil	-	68,0% / 100%

Die relativ große Unsicherheit bei der Bestimmung der Ge-Konzentration der implantierten Nanokristallite ist auf die sehr geringe Maximalintensität des Ge-Nanokristallit-Reflexes

zurückzuführen. Bei besseren Signal-Untergrund-Verhältnissen ist eine weitaus höhere Genauigkeit mit dieser Messmethode zu erzielen (siehe Kap. 6.4.2.3.).

Eine unter ähnlichen Bedingungen hergestellte Probe (Implantation mit $2 \cdot 10^{16} \text{cm}^{-2}$ Ge^+ -Ionen mit 800keV bei 700°C und anschließender Temperaturbehandlung bei 1600°C) wurde mit hochauflösender und analytischer Elektronen-Mikroskopie-Technik analysiert. Die energiedispersive Röntgen-Punkt-Analyse („EDX-point analyses“) an ausgewählten einzelnen Ge-Nanokristalliten ergab eine Ge-Konzentration von 70-100% Germanium innerhalb der jeweiligen Kristallite. Dabei wurde angenommen, dass die Höhe des jeweiligen Nanokristallits gleich seiner Breite ist [KAISER 2001].

6.4.3. Bestimmung der Spannung der umgebenden SiC-Matrix

6.4.3.1. Abschätzung der maximalen Verspannung der Ge-Nanokristallite durch Druck der umgebenden Matrix

Die Verschiebung des Braggwinkels des Ge-Nanokristallit-Reflexes zu größeren Winkeln könnte durch den Druck, den die umgebende Matrix auf die Ge-Nanokristallite ausübt, verursacht werden. Zwischen den eingebetteten Nanokristalliten und der umgebenden SiC-Matrix muss ein Spannungsgleichgewicht herrschen. Wird die Verspannung der umgebenden Matrix bestimmt, kann demzufolge auf die Spannungen, unter denen die Ge-Nanokristallite stehen, geschlossen werden. Eine Methode hierzu könnte die Untersuchung der diffusen Streuung am Matrix-Gitter sein, in dem die Ge-Nanokristallite als Defekte wirken.

Unter der Annahme, dass die Ge-Nanokristallite zu 100% aus Germanium bestehen und die SiC-Matrix vor dem Einbringen der Nanokristallite unverspannt ist, kann aus der Braggwinkelverschiebung der Ge-Reflexe die maximal mögliche Defektstärke ϵ bestimmt werden. Die Defektstärke ϵ ist ein Maß für die Spannungen, die auf die Ge-Nanokristallite bzw. auf deren unmittelbare Umgebung wirken. Sie ist proportional zu der Volumenänderung δV , die durch das Einbringen des Defektes bzw. des Nanokristallits in den Matrixkristall bewirkt wird [HOLY 1988]. Zur Vereinfachung wird der Defekt bzw. Nanokristallit als Kugel mit Radius R angenommen. Es gilt:

$$\varepsilon \cdot R^3 = \frac{\delta V}{4\pi} \left(1 + \frac{4\mu}{3\lambda^* + 2\mu^*} \right)^{-1} \quad [\text{HOLY 1988}] \quad (6.4.6)$$

ε - Defektstärke μ - Lamé Koeffizient der umgebenen Matrix (hier: SiC)
 R - Radius des Nanokristallits λ^* - Lamé Koeffizient des Nanokristallits (hier: Ge)
 δV - Volumenänderung μ^* - Lamé Koeffizient des Nanokristallits (hier: Ge)

Aus der Gitterkonstantenänderung von $(\Delta a/a)_{\text{Ge}} = 3,1 \cdot 10^{-2}$ ergibt sich die Volumenänderung δV zu:

$$\delta V = 3 \cdot V \cdot \frac{\Delta a}{a} \quad \text{mit} \quad V = \frac{4\pi}{3} R^3 \quad (6.4.7)$$

somit ergibt sich aus Gleichung (6.4.6) und (6.4.7):

$$\varepsilon = \frac{\Delta a}{a} \left(1 + \frac{4\mu}{3\lambda^* + 2\mu^*} \right)^{-1} \quad (6.4.8)$$

Für diese Abschätzung der Defektstärke ε wird angenommen, dass die Matrix und die eingebrachte Kugel aus elastischen isotropen Material bestehen. Die Lamé Koeffizienten für isotrope Festkörper bestimmen sich wie folgt:

$$\lambda = c_{12} \quad \text{und} \quad \mu = \frac{1}{2}(c_{11} - c_{12}) \quad (6.4.9)$$

Die hier betrachtete Matrix aus 4H-SiC hat aber eine hexagonale Struktur und lässt sich somit mit 5 unabhängige E-Moduli beschreiben. Der eingebrachte Ge-Kristallit mit seiner kubischen Symmetrie hat entsprechend 3 unabhängige E-Moduli. Für die Abschätzung der Defektstärke ε wurden die Lamé Koeffizienten für Germanium und für 4H-SiC und aus den E-Moduli c_{11} und c_{12} bestimmt (siehe Tab. 11).

Tab. 11: E-Moduli von Ge und 6H-SiC

E-Moduli	C ₁₁ [GPa]	C ₁₂ [GPa]	C ₁₃ [GPa]	C ₃₃ [GPa]	C ₄₄ [GPa]	λ [GPa]	μ [GPa]
Ge	129	48	-	-	67	48	40,5
4H-SiC	501	111	52	553	163	111	195

Werte übernommen aus: [WORTMAN 1965] für Ge und [KAMITANI 1997] für 4H-SiC

Setzt man die Werte aus Tabelle 11 jetzt in Gleichung (6.4.8) ein, ergibt sich eine Defektstärke von $\varepsilon = 7 \cdot 10^{-3}$.

6.4.3.2. Beitrag zur diffusen Streuung verursacht durch Defekte in der Matrix

In der Literatur [DEDERICHS 1971, KRIVOGLAZ 1996] finden sich Abhandlungen zur diffusen Streuung an kleinen kugelförmigen Clustern in einer perfekten Matrix. NESTERETS und andere (2000) benutzen unter anderen das Modell zufällig verteilter, kugelförmiger, symmetrischer Cluster mit einem Radius R_d . Das Verschiebungsfeld $u(r) = \langle u(r) \rangle + \delta u(r)$ außerhalb der Cluster fällt coulombförmig ab und ist in einem Abstand R_v vom Cluster gleich Null. Die Verschiebungsfunktion hängt nur vom Abstand des Zentrums des Clusters ab.

Mit diesem Modell lassen sich die Verhältnisse in den untersuchten Proben gut beschreiben. Für das Auftreten der diffusen Streuung an den Fehlstellen in der SiC-Matrix spielt die innere Struktur der Fehlstellen (Kristallit oder Hohlraum) keine Rolle. Somit können in diesem Modell die Ge-Nanokristallite durch die kugelförmigen Cluster beschrieben werden.

Modell: Verschiebungsfeld $u(r) = \langle u(r) \rangle + \delta u(r)$ mit coulombförmigen Abfall außerhalb der Cluster mit Radius R_d

$$\delta u(\mathbf{r}) = \begin{cases} a & |r| < R_d \\ \left(\frac{B\mathbf{r}}{r^3}\right) - F\mathbf{r} & R_d \leq |r| \leq R_v \\ 0 & |r| > R_v \end{cases} \quad (6.4.10)$$

mit $B = \varepsilon R_d^3 R_v^3 / (R_v^3 - R_d^3)$, $F = \varepsilon R_d^3 / (R_v^3 - R_d^3)$, $\varepsilon \rightarrow$ Defektstärke

Durch die Erweiterung mit der Funktion $F\mathbf{r}$ und der Annahme, dass das Deformationsfeld bei einem Radius $R_v > R_d$ verschwindet, wird erreicht, dass die Singularität in der Gleichung (6.4.12) beim Punkt $\mathbf{q} = 0$ eliminiert wird. Diese Annahme ist sinnvoll, da sich die Verschiebungsfelder der einzelnen Cluster überlappen [NESTERETS 2000]. Weiterhin wird vorausgesetzt, dass die lineare Größe des Defektes klein ist im Vergleich mit der

Distanz, innerhalb der die Wellenfunktion signifikante Änderungen zeigt. Für den Fall einer geringen Konzentration der Cluster C ($CV_{EZ} \ll 1$, V_{EZ} – Volumen der Elementarzelle) und einer zufälligen Verteilung der Cluster kann man den Beitrag der Cluster zur diffusen Streuung wie folgt angeben:

$$I_h^d(\mathbf{q}) \sim |D(\mathbf{q})|^2 \quad (6.4.11)$$

$$D(\mathbf{q}) = 4\pi R_d^3 \frac{\sin(qR_d) - qR_d \cos(qR_d)}{(qR_d)^3} + \frac{4\pi B(\mathbf{h} \cdot \mathbf{q})}{q^2} \left(\frac{\sin(qR_d)}{qR_d} - \frac{\sin(qR_v)}{qR_v} \right) + \frac{4\pi F(\mathbf{h} \cdot \mathbf{q})}{q^5} \left\{ \begin{array}{l} (qR_v)^2 \sin(qR_v) - 3[\sin(qR_v) - qR_v \cos(qR_v)] \\ -(qR_d)^2 \sin(qR_d) + 3[\sin(qR_d) - qR_d \cos(qR_d)] \end{array} \right\} \quad (6.4.12)$$

Der Beitrag der diffusen Streuung im reziproken Raum $I_h^d(\mathbf{q})$ ist proportional dem Betragsquadrat der Funktion $D(\mathbf{q})$. In der Funktion $D(\mathbf{q})$ (siehe Gl. (6.4.12)) beschreibt der erste Term den Einfluss der Defekt- bzw. Teilchengröße auf die Verteilung von $I_h^d(\mathbf{q})$ im reziproken Raum (vgl. Gl. (4.2.1)). Im Kapitel 6.2.3. ist der Ausdruck $|D(\mathbf{q})|^2$ für eine Intensitätsverteilung im reziproken Raum verursacht durch eine reine Teilchenverbreiterung für kugelförmige Teilchen in Gleichung (6.2.1) bereits angegeben. Im Vergleich dazu, treten bei Gleichung (6.4.12) noch zusätzliche Terme auf, die den Einfluss der verspannten Matrixbereiche um den Defekt herum beschreiben (siehe zweiten und dritten Term von $D(\mathbf{q})$). In diesen beiden Termen steht das Produkt $(\mathbf{h} \cdot \mathbf{q})$, das heißt mit zunehmender Ordnung (\mathbf{h}) wird der Beitrag zur diffusen Streuung, der durch die verspannten Matrixbereiche um den Defekt verursacht wird, größer.

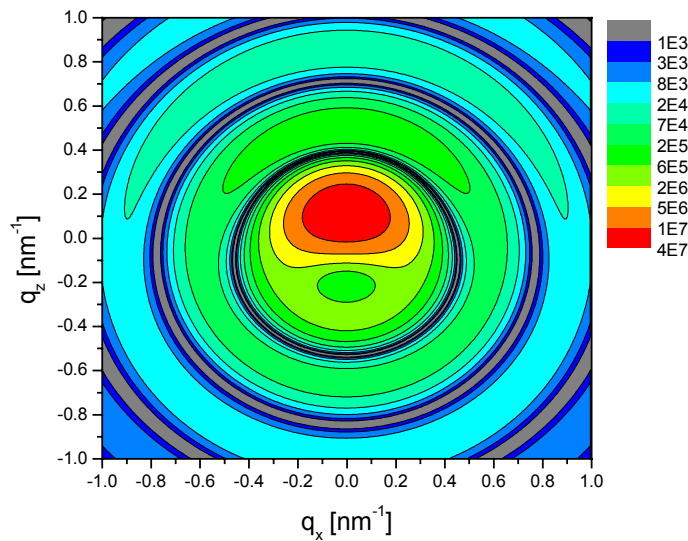


Abb. 44: Simulation des Intensitätsbeitrages der diffusen Streuung im reziproken Raum für einen Defekt mit Radius $R_d=10\text{nm}$, einem coulombförmigen Verschiebungsfeld mit Radius $R_v=20\text{nm}$, eine relativ große Defektstärke von $\epsilon=10^{-2}$ für den Reflex (00.8)-4H-SiC, $q_y=0$

Abbildung 44 zeigt die Simulation des Intensitätsbeitrages der diffusen Streuung im reziproken Raum, der durch Defekte bzw. Fehlstellen in der perfekten Matrix verursacht wird. Die Berechnungen wurden für einen Defekt mit Radius $R_d=10\text{nm}$, einem coulombförmigen Verschiebungsfeld mit Radius $R_v=20\text{nm}$ und für die 2. Ordnung des Reflexes und eine Defektstärke $\epsilon=10^{-2}$ durchgeführt. Dabei entspricht ein Schnitt entlang der q_z -Achse bei $q_x=0$ einer Abtastung der gestreuten Intensität im $\omega/2\theta$ -Modus, d.h. 2:1 gekoppelte Proben-Detektor-Drehung. Ein Schnitt entlang der q_x -Achse bei $q_z=0$ kommt einer Abtastung der gestreuten Intensität im ω -Scan gleich, d.h. Drehung der Probe bei feststehendem Detektor. Die gesamte Intensitätsverteilung kann nur in einem *reciprocal space mapping* erfasst werden.

Der Einfluss der Teilchengröße auf die diffuse Streuung ist unabhängig von den auftretenden Spannungen um die Defekte und von der Ordnung des Reflexes.

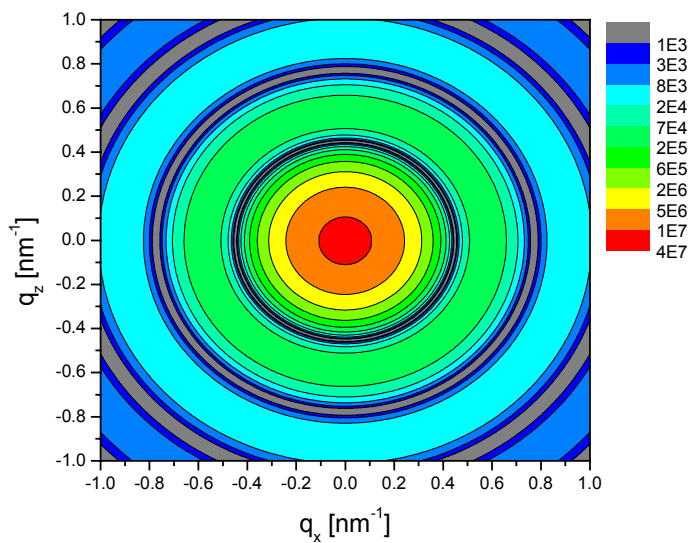


Abb. 45: Beitrag der diffusen Streuung im reziproken Raum (Betragsquadrat der Funktion $D(\mathbf{q})$, siehe Gl. (6.4.12)) für kugelförmige Defekte mit Radius $R_d=10\text{nm}$ ohne Verschiebungsfeld - nur Einfluss der Defektgröße, $q_y=0$

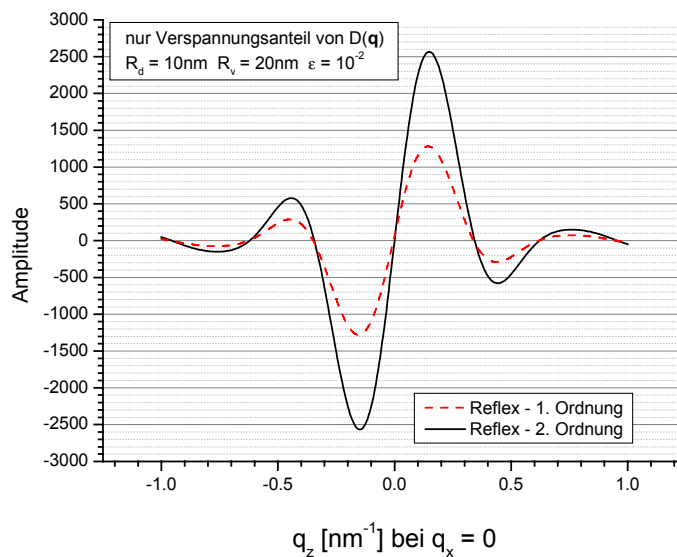


Abb. 46: Summe des zweiten und dritten Terms der Funktion $D(\mathbf{q})$ in Abhängigkeit von der Ordnung des symmetrischen 4H-SiC-Reflexes, siehe Gleichung (6.4.12)

Der Beitrag zur diffusen Streuung, der durch die verspannten Matrixbereiche verursacht wird, nimmt mit steigender Ordnung des Reflexes zu. Abbildung 46 zeigt die Abhängigkeit der Summe des zweiten und dritten Terms der Funktion $D(\mathbf{q})$ (siehe Gl. (6.4.12)) von der Ordnung des symmetrischen 4H-SiC-(00.4)-Reflexes. Es ist der Schnitt durch die Intensitätsverteilung entlang der q_z -Achse bei $q_x, q_y=0$ dargestellt. Die Amplitude im Maximum verdoppelt sich bei der 2. Ordnung. Entlang der q_x -Achse für $q_z=0$ ist die Amplitude der Summe des zweiten und dritten Terms der Funktion $D(\mathbf{q})$ gleich null. Deshalb kann die Deformation um die Defekte nur aus der Messung eines $\omega/2\theta$ -Scans oder aus dem *reciprocal space mapping* bestimmt werden.

Zur Berechnung der Intensität der gesamten diffusen Streuung wird das Betragsquadrat der Funktion $D(\mathbf{q})$ gebildet. Dominiert der Einfluss der verspannten Matrixbereiche um den Defekt (große Defektstärken $\varepsilon \geq 10^{-3}$) gegenüber dem Beitrag aufgrund der Defektgröße, steigt der Anteil der Intensität der diffusen Streuung im Vergleich zu der abgebeugten Intensität am perfekten Kristall mit zunehmender Ordnung.

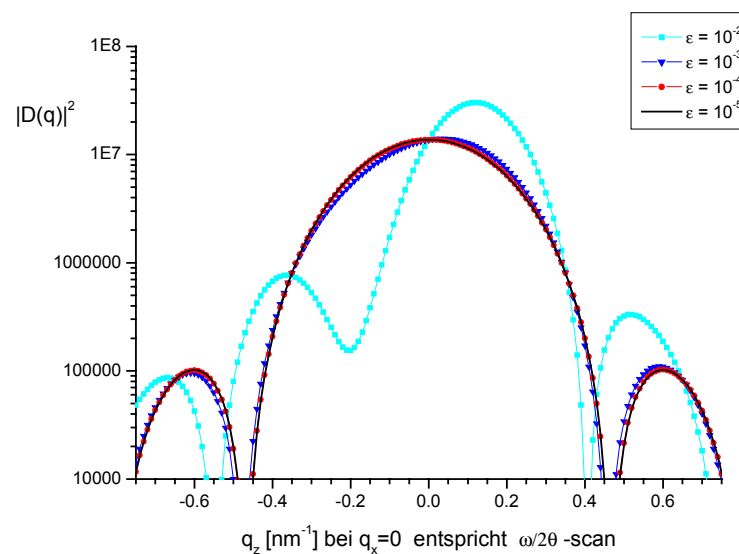


Abb. 47: Schnitt durch die simulierten Intensitätsverteilungen entlang der q_z -Achse bei $q_x=0$ für einen Defekt mit verschiedenen Defektstärke ε , einem Radius $R_d=9,6\text{nm}$ und einen coulombförmigen Verschiebungsfeld mit Radius $R_v=20\text{nm}$

Für geringe Defektstärken ε in der Größenordnung von $\varepsilon \leq 10^{-3} \dots 10^{-5}$ überwiegt der Beitrag der diffusen Streuung aufgrund der Teilchengröße. Mit zunehmender Defektstärke ε tritt eine Verschiebung der Reflexe, verursacht durch die diffuse Streuung an den Defekten, zu größeren q_z -Werten und eine asymmetrische Kurvenform im Hauptmaximum der Intensitätsverteilung auf (siehe Abb. 47).

6.4.3.3. Messungen

Abbildung 48 zeigt einen $\omega/2\theta$ -Scan eines symmetrischen 4H-SiC-Reflexes in 1. und 2. Ordnung. In den Ausläufern auf der Großwinkelseite treten jeweils zusätzlich Reflexe auf, die durch diffuse Streuung an Defekten bzw. Fehlstellen in der SiC-Matrix verursacht werden. Im weiteren wird untersucht, ob es sich hierbei um die Fehlstellen, in denen sich die Ge-Nanokristallite befinden, handelt.

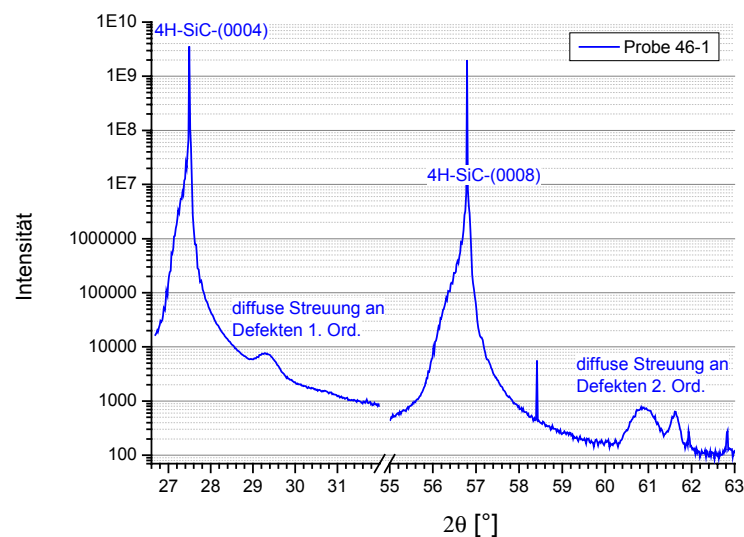


Abb. 48: $\omega/2\theta$ -Scan eines symmetrischen 4H-SiC-Reflexes in 1. und 2. Ordnung, gemessen an der ROBL-Beamline mit der Wellenlänge $\lambda=0,12039\text{nm}$

Auffallend ist der relativ große Abstand von einigen Grad in der 2θ -Abtastung, den diese Maxima vom Beugungsmaximum des perfekten 4H-SiC-Kristalls haben. Eine solche Winkeldifferenz ist zu erwarten, wenn sich die Defekte im Unterschied zu den Annahmen unter 6.4.3.1. und 6.4.3.2. nicht in perfekten, sondern komprimierten Matrixbereichen

befinden. Durch die Implantation der Ge^+ -Ionen ist der obere Bereich des 4H-SiC-Kristalls komprimiert [vgl. auch KATULKA 1999]. Der Netzebenenabstand ändert sich in diesem Bereich kontinuierlich, was man an dem Sattel auf der Großwinkelseite der Matrixreflexe erkennt (Abb. 49). Bei TEM-Untersuchungen hat sich gezeigt [KAISER 2002], dass sich die Ge-Nanokristallite an den Rändern des Bereiches mit maximaler Ge-Konzentration und damit im komprimierten Matrixbereich bilden.

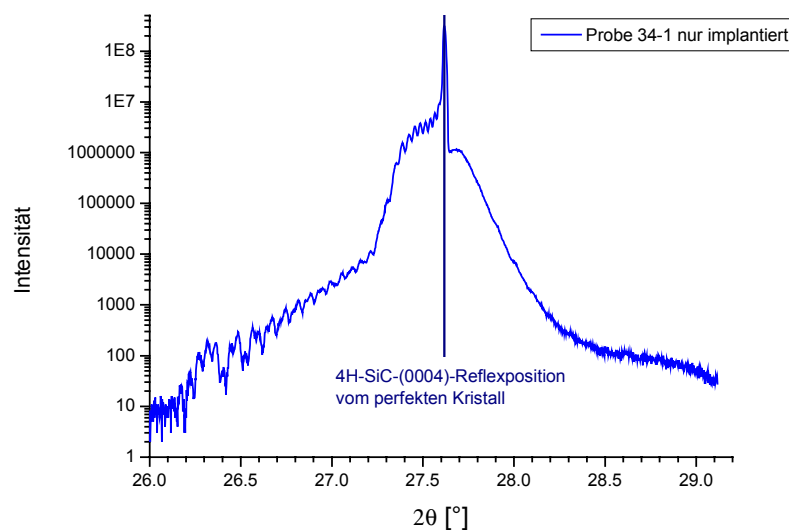


Abb. 49: $\omega/2\theta$ -Scans des 4H-SiC-(0004)-Reflexes, Probe 34-1 (implantiert mit $1 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-2} \text{ Ge}^+$ bei 700°C , nicht getempert)

Als Näherung kann man sich den Kristall in homogene Lamellen zerlegt vorstellen, wobei jeder Lamelle ein lokaler reziproker Gittervektor zugeordnet werden kann. Die Defekte bzw. Fehlstellen, in denen die Nanokristallite sitzen, befinden sich im komprimierten Bereich der SiC-Matrix. Somit tritt die diffuse Streuung an diesen Defekten bei einem größeren lokalen reziproken Gittervektor in q_z -Richtung auf, als der Reflex des perfekten SiC-Kristalls. Aus der Reflexlage der diffusen Streuung kann auf die Gitterkonstante der Lamelle geschlossen werden. Durch den Vergleich mit der Gitterkonstante des perfekten Kristalls ergibt sich die Kompression der Lamelle in der die Defekte eingelagert sind. Aus der Reflexform der diffusen Streuung kann die Defektstärke der Defekte bestimmt werden (vgl. Abb. 47, Kap. 6.4.3.2.), die zusätzlich zu der Kompression der Lamelle auftritt.

Bei den Reflexen in 2. Ordnung, verursacht durch die diffuse Streuung, wurde die Intensität des Ausläufers des 4H-SiC-(0008)-Reflexes abgezogen und die Kurve mit mehreren Gauß-Profilen gefittet. Aus den integralen Breiten dieser Kurven kann auf die Größe der Defekte in normaler Richtung geschlossen werden. Dabei muss der Einfluss der verspannten Matrixgebiete auf die Kurvenform gegenüber dem Beitrag der Defektgröße abgeschätzt werden.

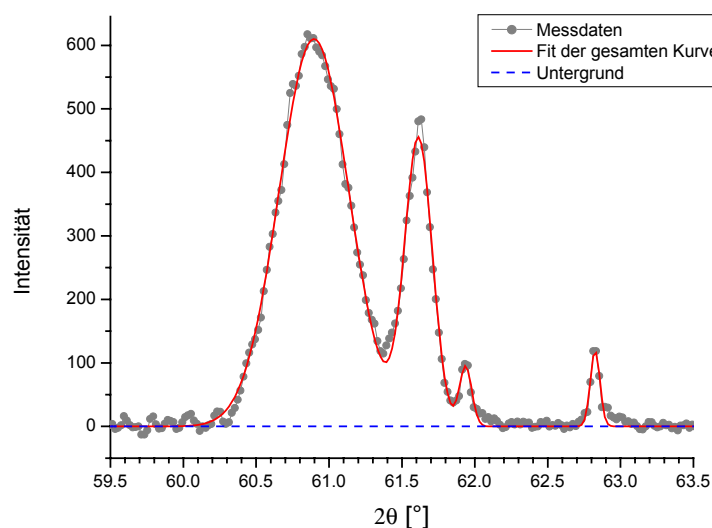


Abb. 50: 2. Ordnung der diffusen Streuung der Defekte, die Intensität des Ausläufers des 4H-SiC-(0008)-Reflexes wurde abgezogen und die Reflexe mit vier Gauss-Profilen gefittet (Ausschnitt aus Abb. 48)

Tab. 12: Parameter der Kurvenanalyse aus Abb. 50

Gauß-Profil	Maximum bei	Intensität im Max.	$\beta(2\theta)$	$\beta(q)$
<i>Peak 1</i>	60,897°	610cps	0,600°	0,476nm ⁻¹
<i>Peak 2</i>	61.614°	450cps	0,238°	0,188nm ⁻¹
<i>Peak 3</i>	61,937°	95cps	0,107°	0,088nm ⁻¹
<i>Peak 4</i>	62,825°	120cps	0,083°	0,063nm ⁻¹

Mit zunehmender Defektstärke tritt eine Verschiebung der Reflexe zu größeren q_z -Werten und eine asymmetrische Kurvenform im Hauptmaximum der Intensitätsverteilung auf

(siehe Kap. 6.4.3.2. Abb. 47). Die Verschiebung des Hauptmaximums zu größeren q_z -Werten kann bei den hier untersuchten Probensystem nicht bestimmt werden, da sich die Defekte in einem homogenen aber stark komprimierten Matrixbereich befinden. Diese homogene Verspannung bedingt eine Verschiebung der Reflexe der diffusen Streuung um ca. 4° bzw. 5° in 2θ , was einer Änderung des Netzebenenabstandes von $\Delta d/d = (6-7) \cdot 10^{-2}$ entspricht. Die Änderung des Netzebenenabstandes der SiC-Matrix verläuft kontinuierlich. Der exakte Netzebenenabstand im Bereich der Defekte ist nicht bekannt. Somit kann eine zusätzlich auftretende Verschiebung aufgrund der Verspannung, die durch die Defekte induziert wird, nicht nachgewiesen werden.

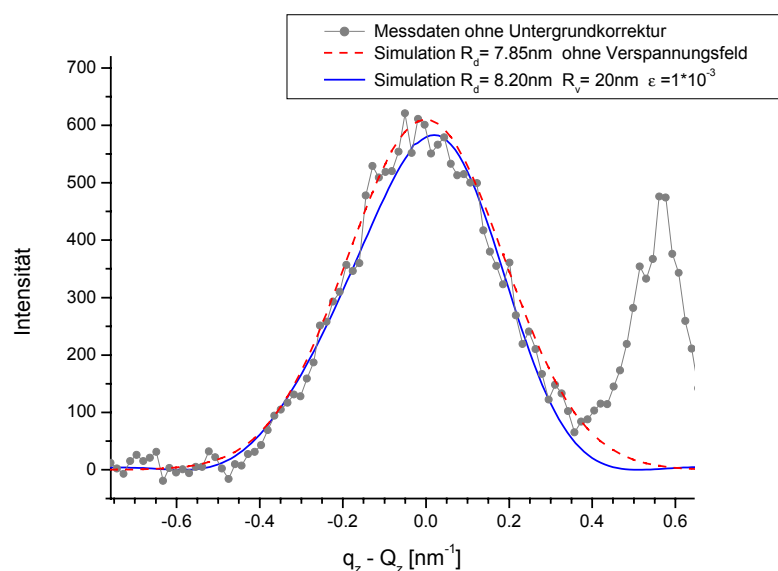


Abb. 51: 2. Ordnung der diffusen Streuung der Defekte (graue Punkte); Simulation der Intensitätsverteilung für Defekte ohne Spannungsfeld mit Radius $R_d=7,95\text{nm}$ (gestrichelte Kurve); Simulation für Defekte mit einer Defektstärke $\epsilon = 1 \cdot 10^{-3}$, einem Radius $R_d=8,20\text{nm}$ und einem coulombförmig abfallenden Verschiebungsfeld mit Radius $R_v=20\text{nm}$ (durchgezogene Kurve)

Im Kurvenverlauf für eine angenommenen Verspannung von $\epsilon=1 \cdot 10^{-3}$ ist das Hauptmaximum leicht asymmetrisch und es würden sich unterschiedlich hohe Nebenmaxima 1. Ordnung herausbilden (siehe Kap. 6.4.3.2. Abb. 47). Die gemessene Kurve der diffusen Streuung der Defekte ist relativ symmetrisch (Abb. 51). Dabei ist zu beachten, dass die

Kurve nur über einen Dynamikbereich von $6 \cdot 10^2$ (in der 2. Ordnung) vermessen werden konnte und eventuell auftretende Nebenmaxima im Rauschen untertauchen würden. Somit kann aus der Messung nur eine Obergrenze der Verspannungen hervorgerufen durch die Defekte mit $\varepsilon \leq 1 \cdot 10^{-3}$ bestimmt werden.

Tab. 13: Größe der Defekte in normaler Richtung

	Erster Peak*	Zweiter Peak*	Ge-Nano-kristallite zum Vergleich**
Position in 2θ	60,90°	61,62°	-
Integrale Breite $\beta(q)$ bestimmt in normaler Richtung aus $\omega/2\theta$-Scan	0,48nm ⁻¹	0,19nm ⁻¹	0,76nm ⁻¹
Fehler der integralen Breite	$\pm 0,04\text{nm}^{-1}$	$\pm 0,04\text{nm}^{-1}$	$\pm 0,04\text{nm}^{-1}$
Radius D_{\parallel} der Defekte in Richtung der Oberflächennormalen (ohne Berücksichtigung von Verspannung)	7,80nm	19,80nm	4,90nm
Radius D_{\parallel} der Defekte parallel zur Oberflächennormalen (mit Verspannung $\varepsilon = 10^{-3}$)	8,20nm	22,00nm	-
Untere/obere Fehlergrenze von D_{\parallel}	7,20nm 8,50nm	16,20nm 24,50nm	4,60nm 5,20nm

*Messung im Juni 2001 ** Messung im Januar 2001

Tabelle 13 zeigt die mittlere Größe in normaler Richtung der Defekte und im Vergleich die entsprechende Größe der Ge-Nanokristallite, jeweils an der Probe 46-1 gemessen. Die mittlere Größe der Defekte ändert sich nur minimal in Abhängigkeit einer angenommenen Deformation ε . Für beide Extremfälle ($\varepsilon = 0$ und $\varepsilon = 1 \cdot 10^{-3}$) liegen die Defektgrößen in der gleichen Größenordnung. Vermutlich wird der 1. Reflex bei $2\theta = 60,90^\circ$ durch diffuse Streuung an den Fehlstellen, in denen sich Ge-Nanokristallite befinden, verursacht.

Die Verspannung von $\varepsilon = 1 \cdot 10^{-3}$ ist kleiner als die abgeschätzte Verspannung, die aus der Berechnung des 2-Phasen-Modells ($\varepsilon_{2\text{-Phasen}} = 7 \cdot 10^{-3}$, siehe Kapitel 6.4.3.1) für einen reinen Ge-Nanokristallit eingebettet in eine perfekte unverspannte SiC-Matrix folgt. Dieses Modell stellt eine sehr starke Vereinfachung dar. Es wurden im wesentlichen zwei Annahmen

gemacht, die sich als nicht zutreffend herausgestellt haben, zum einen ist die Matrix vor der Defektentstehung komprimiert und zum anderen existiert in der Realität keine scharfe Grenzfläche zwischen den Ge-Nanokristalliten und der umgebenen SiC-Matrix, sondern vielmehr ein relativ großer Übergangsbereich. Aus Tabelle 13 ist ersichtlich, dass die Ausdehnungen der Defekte im SiC-Gitter wesentlich größer sind als die Ge-Nanokristallite. Dies ist auch auf den Abbildungen der TEM-Messungen an den Ge-Nanokristalliten zu erkennen (siehe z.B. Abb. 6 im Kap. 3.3. und [KAISER 2001]). Zur besseren Beschreibung des Sachverhaltes muss man zu einem 3-Phasen-Modell übergehen: der Ge-Nanokristallit wird von einem nicht kristallinen Bereich umgeben, an dem sich die perfekte, homogen verspannte SiC-Matrix anschließt. Dieser Übergangsbereich, der röntgenographisch nicht erfassbar ist, nimmt wahrscheinlich einen großen Teil der Spannungen auf und besteht vermutlich aus Ge-, Si- und C-Atomen oder Atomgruppen ohne Fernordnung. Diese Annahme ergibt sich auch aus der zeitlichen Entwicklung der Probe. Mit zunehmendem Probenalter wachsen die Ge-Nanokristallite (siehe Kapitel 6.3.) und die Größe der Fehlstellen in der SiC-Matrix (betrifft nur Reflex bei $2\theta = 60,90^\circ$) nimmt ab. Über die stöchiometrische Zusammensetzung und die Struktur des Übergangsbereiches können keine weiteren Angaben gemacht werden.

Um sicher zu gehen, dass die analysierten Peaks der diffusen Streuung von den durch die Ge-Nanokristallite erzeugten Defekte in der SiC-Matrix verursacht werden, wurden zusätzlich zu dem $\omega/2\theta$ -Scan noch ω -Scans jeweils bei den Maximal-Positionen der diffusen Streuung in 2θ durchgeführt (siehe Abb. 52 und Abb. 53). Die Messungen erfolgten mit einer Detektorblende, die in der Beugungsebene wirkt, von 1,09mm. Im Gegensatz zu den Scans in Richtung der reziproken q_z -Achse (entspricht einem $\omega/2\theta$ -Scan) hat die Verspannung der Matrixbereiche um die Defekte bei der Messung entlang der q_x -Achse (ω -Scan beim lokalen Maximum in 2θ) keinen Einfluss auf die Form und die integrale Breite der Kurve. Somit kann direkt aus der gemessenen integralen Breite die durchschnittliche Größe der jeweiligen Defekte in lateraler Richtung bestimmt werden.

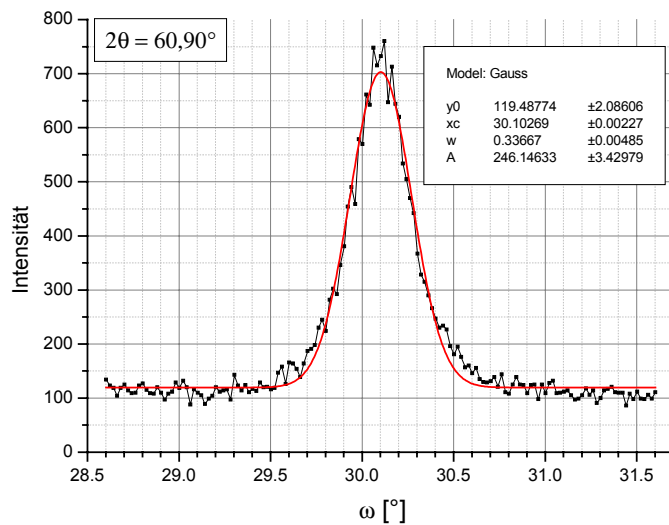


Abb. 52: ω -Scan bei $2\theta = 60,90^\circ$, erster *Peak* der 2. Ordnung der diffusen Streuung der Defekte

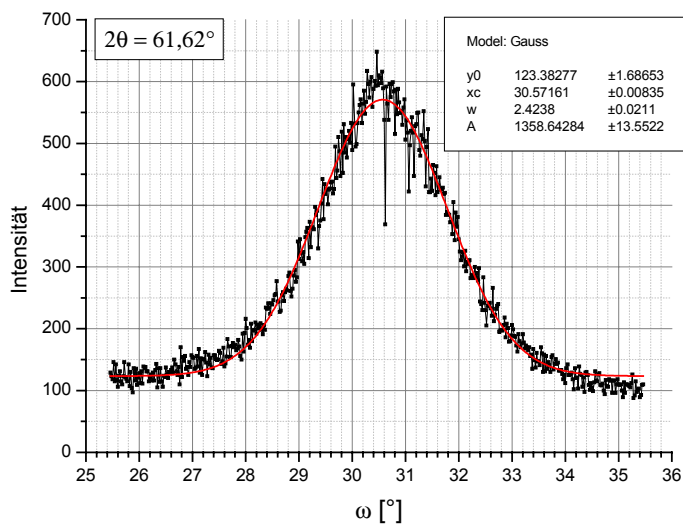


Abb. 53: ω -Scan bei $2\theta = 61,62^\circ$, zweiter *Peak* der 2. Ordnung der diffusen Streuung der Defekte

Tab. 14: Größe der Defekte in lateraler Richtung

	Erster Peak*	Zweiter Peak*	Ge-Nano-kristallite zum Vergleich**
Position in 2θ	60,90°	61,62°	-
Integrale Breite $\beta(\omega)$ ω-Scan	0,43°	3,03°	2,46°
Integrale Breite $\beta(q)$ bestimmt in lateraler Richtung aus ω-Scan	0,39nm ⁻¹	2,83nm ⁻¹	0,84nm ⁻¹
Fehler der integralen Breite	$\pm 0,04\text{nm}^{-1}$	$\pm 0,04\text{nm}^{-1}$	$\pm 0,04\text{nm}^{-1}$
Mittlerer Radius D_{\perp} der Defekte in lateraler Richtung	9,60nm	1,31nm	4,45nm
Untere/obere Fehlergrenze von D_{\parallel}	8,70nm 10,70nm	1,29nm 1,34nm	4,20nm 4,75nm

*Messung im Juni 2001 ** Messung im Januar 2001

Tabelle 14 zeigt die Ergebnisse der Bestimmung der Defektgröße in lateraler Richtung im Vergleich zu der ermittelten Ge-Nanokristallitgröße aus Kapitel 6.2.4. (siehe Tab. 5). Auch hier zeigt sich, dass die Ausdehnungen der Defekte im SiC-Gitter, deren diffuse Streuung bei $2\theta=60,90^{\circ}$ auftritt, wesentlich größer sind als die Ge-Nanokristallite.

Aus den Messungen in lateraler und normaler Richtung ergibt sich, dass nur beim Reflex bei $2\theta = 60,90^{\circ}$ die Defektgrößen in beiden Richtungen in der gleichen Größenordnung liegen und größer sind als die Größe der Ge-Nanokristallite. Somit handelt es sich bei diesem Reflex sehr wahrscheinlich um den gesuchten Reflex der diffusen Streuung verursacht durch die Fehlstellen in der SiC-Matrix, in denen die Ge-Nanokristallite sind. Diese Annahme wird durch die folgende Messung noch bestärkt.

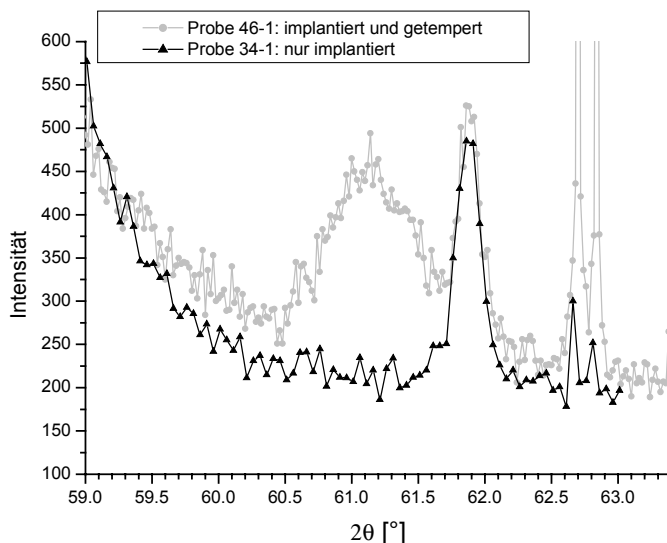


Abb. 54: Messung eines $\omega/2\theta$ -Scans des Ausläufers eines symmetrischen 4H-SiC-Reflexes in 2. Ordnung an einer implantierten und getemperten Probe (graue Kurve) und an einer implantierten Probe ohne nachträgliche Temperaturbehandlung (schwarze Kurve)

Abbildung 54 zeigt die Messung eines $\omega/2\theta$ -Scans des Ausläufers eines symmetrischen 4H-SiC-Reflexes in 2. Ordnung an einer implantierten und getemperten Probe im Vergleich zu der Messung an einer implantierten Probe ohne nachträgliche Temperaturbehandlung. Beide Proben wurden unter gleichen Bedingungen mit $1 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-2} \text{ Ge}^+$ -Ionen bei 700°C implantiert. In dem Ausläufer auf der Großwinkelseite treten jeweils zusätzlich Reflexe auf, die durch diffuse Streuung an Defekten bzw. Fehlstellen in der SiC-Matrix verursacht werden. Bei der Probe ohne Temperaturbehandlung tritt nur der Reflex bei $2\theta = 61,62^\circ$ auf. Dieser wird durch Defekte, die während der Implantation entstehen, verursacht. Während der Temperaturbehandlung bilden sich erst die Ge-Nanokristallite und es ist ein zusätzlicher Reflex der diffusen Streuung verursacht durch die Fehlstellen in der SiC-Matrix, in denen die Ge-Nanokristallite sind, messbar.

Die anderen Defekte, die den Reflex bei $2\theta = 61,62^\circ$ verursachen, haben eine geringe Ausdehnung in lateraler Richtung und eine relativ große in normaler Richtung, d.h. in $[0001]$ -Richtung der SiC-Matrix. Der Reflex liegt annähernd in der gleichen Tiefe der homogen verspannten SiC-Matrix wie die Ge-Nanokristallite bzw. die Fehlstellen, in

denen die Ge-Nanokristallite sind (ähnlicher lokaler reziproker Gittervektor in q_z). TEM-Messungen zeigen zahlreiche Stapelfehler parallel zu der [0001]-Wachstumsrichtung der 4H-SiC Matrix im Bereich der Ge-Nanokristallite (siehe Kap. 3.3.). Aufgrund ihrer Form und Lage können die Defekte mit den Stapelfehlern, die in den TEM-Messungen sichtbar sind, in Verbindung gebracht werden. Auch andere Gruppen haben die Bildung von Stapelfehlern nach Ionenimplantationen beobachtet [BECK 2000, PERSSON 2002, SZTUCHI 2002].

Zusammenfassend ergibt sich, dass die beobachtete Braggwinkelverschiebung des Ge-Nanokristallitreflexes (entspricht $\Delta a/a=3,1 \cdot 10^{-2}$) mit einer gleichgerichteten Überlagerung von drei verschiedenen Effekten erklärbar ist. Zum einen bedingt ein Siliziumanteil in den Ge-Nanokristalliten, der aufgrund des relativ großen Fehlers bei der Bestimmung der stöchiometrischen Zusammensetzung in Kapitel 6.4.2.4 nicht ausgeschlossen werden kann, eine Verschiebung des Reflexes zu größeren Winkeln. Aus einer Beimischung von 20% Si würde sich ein $\Delta a/a=0,8 \cdot 10^{-2}$ ergeben. Zum anderen lässt sich aus der Lage des Reflexes der diffusen Streuung verursacht durch die Fehlstellen in der SiC-Matrix, in denen sich die Ge-Nanokristallite befinden, auf eine Kompression in der Matrix im Bereich der Nanokristallite schließen. Diese Kompression der umgebenden Matrix wirkt auch auf die Ge-Nanokristallite, was auch zu einer Verschiebung des Ge-Reflexes zu größeren Winkeln führt (entspricht $\Delta a/a \leq 6 \cdot 10^{-2}$, siehe Kap. 6.4.3.3.). Weiterhin kann noch eine zusätzliche Kompression der Ge-Nanokristallite durch ihren gegenüber der Matrix erhöhten Volumenbedarf (siehe Kap. 6.4.3.1 und 6.4.3.2.) auftreten, was aus der Reflexform der Reflexes der diffusen Streuung (siehe Abb. 51 im Kap. 6.4.3.3.) folgt. Auch dies führt zu einer Verschiebung des Ge-Reflexes zu größeren Winkeln.

7. Zusammenfassung und Ausblick

Ziel dieser Arbeit war die umfassende röntgenographische Charakterisierung von Germanium-Nanokristalliten auf und in Siliziumkarbid-Substraten. Die erforderlichen Messungen wurden an einem Synchrotron der dritten Generation, der ESRF in Grenoble durchgeführt.

Auf einem 6H-SiC-Wafer wurden mittels MBE-Technik Ge-Nanoteilchen aufgewachsen. Bei der untersuchten Probe wurden Kristallite in zwei Orientierungen nachgewiesen, die bezüglich der c-Achse des 6H-SiC-Substrates $\langle 111 \rangle$ - und $\langle 110 \rangle$ -orientiert sind. Beide Ge-Nanokristallit-Typen zeigen lateral eine 6-zählige Symmetrie entsprechend der Symmetrie der Matrix. Aus den integralen Breiten der Reflexionskurven ergeben sich die Mittelwerte der Teilchenabmessungen. Sie betragen in der Höhe 30nm und in der Breite 68nm.

Mit Hilfe der anormalen Dispersion wurde ein Ge-Gehalt in den Ge-Nanokristallite von 89,0% mit einem Fehlerbereich von 80,0%-100% bestimmt.

Vergrabene Ge-Nanokristallite haben sich nach der Implantation von Ge^+ -Ionen mit 250keV in einen 4H-SiC-Wafer bei 700°C und anschließender Temperaturbehandlung bei 1600°C gebildet. Es wurden Ge-Nanokristallite mit zwei verschiedenen Orientierungen bezüglich der 4H-SiC-Matrix ($\langle 111 \rangle$ - und $\langle 110 \rangle$ -orientiert zur c-Achse von 4H-SiC) nachgewiesen. Die Ge-Nanokristallite besitzen eine laterale Rotationssymmetrie und haben sich in einer Tiefe von etwa 100nm gebildet. Die mittlere Größe in lateraler und normaler Richtung ist von der Dauer der Temperaturbehandlung bei 1600°C abhängig und liegt zwischen 5nm und 10nm. Die Ge-Nanokristallite sind zeitlich nicht stabil (Untersuchungszeitraum 20 Monate). Eine Größenzunahme in allen Richtungen auf Kosten einer Übergangszone ist wahrscheinlich. Weiterhin wurde eine Verschiebung des Braggwinkels der Ge-Nanokristallitreflexe zu größeren Winkeln festgestellt, was auf eine Kompression der Nanokristallite zurückzuführen ist. Die stöchiometrische Zusammensetzung der Ge-Nanokristallite wurde mit Hilfe der anormalen Dispersion bestimmt. Es ergibt sich ein

Ge-Anteil von 94,6% mit einem Fehlerbereich von 68%-100%. Zusätzlich wurde die durch die Implantation verursachte Schädigung der Matrix untersucht. In Übereinstimmung mit den TEM-Ergebnissen wurden Stapelfehler innerhalb der 4H-SiC-Matrix im Gebiet der Nanokristallite nachgewiesen.

Zur weiteren Charakterisierung der Ge-Nanokristallite bieten sich Messungen mit Röntgenbeugung unter streifendem Einfall an. So könnten die *in-plan* Gitterparameter der Nanokristallite direkt bestimmt werden. Es wären genauere Abschätzungen der Deformationen in lateraler und normaler Richtung innerhalb der Nanokristallite möglich.

Literaturverzeichnis

- ANGERER, H., BRUNNER, D., FREUDENBERG, F., AMBACHER, O., STUTZMANN, M., HÖPLER, R., METZGER, T., BORN, E., DOLLINGER, G., BERGMAIER, A., KARSCH, S., KÖRNER, H.-J.:** Appl. Phys. Lett. 71 (11), 1504-1506, (1997)
- AUTHIER, A.:** “Dynamical Theory of X-Ray Diffraction”, Oxford Science Publications, (2001)
- BECK, U., METZGER, T. H., PEISL, J., PATEL, J. R.:** Appl. Phys. Lett. 76 (19), 2698-2700, (2000)
- BOWEN, D. K., TANNER, B. K.:** “High Resolution X-ray Diffractometry and Topography”, Taylor & Francis Ltd London, (1998)
- DEDERICHS, P. H.:** Phys. Rev. B 4 (4), 1041-1050, (1971)
- FEWSTER, P. F., HOLY, V., ANDREW, N. L.:** Mater. Sci. Semicond. Proc. 4, 475-481, (2001)
- GOERIGK, G., WILLIAMSON, D. L.:** J. Appl. Phys. 90 (11), 5808-5811, (2001)
- GOERIGK, G., WILLIAMSON, D. L.:** J. Non-Cryst. Solids 281, 181-188, (2001)
- GORELIK, T.:** Dissertation „Transmission Electron Microscopy Studies of the Si-Ge-C System in Non-Equilibrium Conditions“, Friedrich-Schiller-Universität Jena, (2002)
- GÖRGENS, L., AMBACHER, O., STUTZMANN, M., MISKYS, C., SCHOLZ, F., OFF, J.:** Appl. Phys. Lett. 76 (5), 577-579, (2000)
- HOLY, V., DARHUBER, A. A., STANGL, J., ZERLAUTH, S., SCHÄFFLER, F., BAUER, G., DAROWSKI, N., LÜBBERT, D., PIETSCH, U., VAVRA, I.:** Phys. Rev. B 58 (12), 7934-7943, (1998)
- HOLY, V., HÄRTWIG, J.:** Phys. Status Solidi B 145, 363-372, (1988)
- HOLY, V., PIETSCH, U., BAUMBACH, T.:** “High Resolution X-Ray Scattering from Thin Films and Multilayers”, Springer Berlin Heidelberg, (1999)
- HOLY, V., STANGL, J., SPRINGHOLZ, G., PINCZOLITS, M., BAUER, G.:** J. Phys. D: Appl. Phys. 34, A1-A5, (2001)

- INTERNATIONAL TABLES FOR X-RAY CRYSTALLOGRAPHY VOL. II:** 72 Table 2.5.3D (3.3), the kynoch press Birmingham, (1959)
- KAISER, U., BISKUPEK, J., MULLER, D.A., GÄRTNER, K., SCHUBERT, CH.:** Cryst. Res. Technol. 37 (4), 391-406, (2002)
- KAISER, U.:** J. Electron Microsc. 50 (3), 251-263, (2001)
- KAMITANI, K., GRIMSDITCH, M., NIPKO, J. C., LOONG, C.-K., OKADA, M., KIMURA, I.:** J. Appl. Phys. 82 (6), 3152-3154, (1997)
- KANZAWA, Y., KAGEYAMA, T., TAKEOKA, S., FUJII, M., HAYASHI, S., YAMAMOTO, K.:** Solid State Commun. 102 (7), 533-537, (1997)
- KATULKA, G., GUEDJ, C., KOLODZEY, J., WILSON, R. G., SWANN, C., TSAO, M. W., RABOLT, J.:** Appl. Phys. Lett. 74 (4), 540-542, (1999)
- KLEBER, W.:** "Einführung in die Kristallographie" Verlag Technik, Berlin, 1998
- KÖGLER, R., EICHHORN, F., KASCHNY, J. R., MÜCKLICH, A., REUTHER, H., SKORUPA, W., SERRE, C., PEREZ-RODRIGUEZ, A.:** Appl. Phys. A 76, 827-835, (2003)
- KRILL, C.E., BIRNINGER, R.:** Phil. Mag. A 77 (3), 621-640, (1998)
- KRIVOGLAZ, M. A.:** "X-Ray and Neutron Diffraction in Nonideal Crystals", Springer Berlin Heidelberg, (1996)
- LANDOLT-BÖRNSTEIN:** "Zahlenwerte und Funktionen aus Naturwissenschaft und Technik", Neue Serie, Springer Verlag Berlin-Heidelberg-New York, (1979)
- LAUE, M. v.:** „Röntgenstrahlinterferenzen“, 3. Aufl., Akademische Verlagsgesellschaft, Frankfurt am Main, (1960)
- LIANG, J., CHIK, H., YIN, A., XU, J.:** J. Appl. Phys. 91 (4), 2544-2546, (2002)
- LYON, O., GUILLON, I., SERVANT, C.:** J. Appl. Cryst. 34, 484-492, (2001)
- MAEDA, Y.:** Phys. Rev. B 51 (3), 1658-1670, (1995)
- MAGALHAES-PANIAGO, R., MEDEIROS-RIBEIRO, G., MALACHIAS, A., KYCIA, S., KAMINS, T. I., STAN WILLIAMS, R.:** Phys. Rev. B 66, 245312, (2002)
- MATZ W., SCHELL N., BERNHARD G., PROKERT F., REICH T., CLAUSSNER J., OEHME W., SCHLENK R., DIENEL S., FUNKE H., EICHHORN F., BETZL M., PRÖHL D., STRAUCH U., HÜTTIG G., KRUG H., NEUMANN W., BRENDLER V., REICHEL P., DENEKE M. A. & NITSCHKE H.:** *Journal of Synchrotron Radiation*, 6, 1076-1085, (1999)
- METZGER, T. H., KEGEL, I., PANIAGO, R., PEISL, J.:** J. Phys. D: Appl. Phys. 32, A202-A207, (1999)

- MORIARTY, P.:** Rep. Prog. Phys. 64, 297-381, (2001)
- NESTERETS, Y. I., PUNEGOV, V. I.:** Foundations of Cryst. 56 (6), 540-548, (2000)
- PEREIRA, S., CORREIA, M. R., MONTEIRO, T., PEREIRA, E., ALVES, E., SEQUEIRA, A. D., FRANCO, N.:** Appl. Phys. Lett. 78 (15), 2137-2139, (2001)
- PEREIRA, S., CORREIA, M. R., PEREIRA, E., O'DONNELL, K. P., TRAGER-COWAN, C., SWEENEY, F., ALVES, E., SEQUEIRA, A. D., FRANCO, N., WATSON, I. M.:** phys. stat. sol. (b) 228 (1), 59-64, (2001)
- PERSSON, P. O. Å., HULTMAN, L., JANSON, M. S., HALLÉN, A., PANKNIN, D., SKORUPA, W.:** J. Appl. Phys. 92 (5), 2501-2505, (2002)
- RENAUD, G., LAZZARI, R., REVENANT, CH., BARBIER, A., NOBLET, M., ULRICH, O., LEROY, F., JUPILLE, J., BORENSZTEIN, Y., HENRY, C. R., DEVILLE J.-P., SCHEURER, F., MANE-MANE, J., FRUCHART, O.:** Science 300, 1416-1419, (2003)
- ROCH, T., HOLY, V., HESSE, A., STANGL, J., FROMHERZ, T., BAUER, G., METZGER, T. H., WIEBACH, FERRER, S.:** Phys. Rev. B 65, 245324, (2002)
- SCHMIDBAUER, M., WIEBACH, TH., RAIDT, H., HANKE, M., KÖHLER, R., WAWRA, H.:** J. Phys. D: Appl. Phys. 32, A230-A233, (1999)
- SCHROETER, B., KOMLEV, K., KAISER, U., HEB, G., KIPSHIDZE, G., RICHTER, W.:** Mater. Sci. Forum 353-356, 247-250, (2001)
- SCHROETER, B., KOMLEV, K., RICHTER, W.:** Mater. Sci. Eng. B88, 259-263, (2002)
- SCHROETER, B.:** persönliche Mitteilung (2003)
- SCHUBER, CH.:** Dissertation „Ionenstrahlinduzierte Synthese von Gruppe IV-Nano-kristallen in Siliziumkarbid“, Friedrich-Schiller-Universität Jena, (2003)
- SCHUBERT, CH., KAISER, U., HEDLER, A., WESCH, W., GORELIK, T., GLATZEL, U., KRÄUBLICH, J., WUNDERLICH, B., HEB, G., GOETZ, K.:** J. Appl. Phys. 91 (3), 1520-1524, (2002)
- SCHÜLLI, T. U., STANGL, J., ZHONG, Z., LECHNER, R. T., SZTUCKI, M., METZGER, T. H., BAUER, G.:** Phys. Rev. Lett. 90 (6), 066105, (2003)
- SCHUPPLER, S., FRIEDMAN, S. L., MARCUS, M. A., ADLER, D. L., XIE, Y.-H., ROSS, F. M., CHABAL, Y. J., HARRIS, T. D., BRUS, L. E., BROWN, W. L., CHABAN, E. E., SZAJOWSKI, P. F., CHRISTMAN, S. B., CITRIN, P. H.:** Phys. Rev. B 52, 4910-4925, (1995)
- SHILO, D., LAKIN, E., ZOLOTAYABKO, E.:** Phys. Rev. B 63, 205420, (2001)

- SPRINGHOLZ, G., HOLY, V., PINCZOLITS, M., BAUER, G.:** Science 282, 734-737, (1998)
- SPRINGHOLZ, G., PINCZOLITS, M., HOLY, ZERLAUTH, S., VAVRA, I., BAUER, G.:** Physica E. 9, 149-163, (2001)
- SRINIVASAN, S., LIU, R., BERTRAM, F., PONCE, F. A., TANAKA, S., OMIYA, H., NAKAGAWA, Y.:** Phys. Status Solidi B 228 (1), 41-44, (2001)
- STANGL, J., DANIEL, A., HOLY, V., ROCH, T., BAUER, G., KEGEL, I., METZGER, T. H., WIEBACH, TH., SCHMIDT, O. G., EBERL, K.:** Appl. Phys. Lett. 79 (10), 1474-1476, (2001)
- SZTUCHI, M., METZGER, T. H., KEGEL, I., TILKE, A., ROUVIÈRE, J. L., LÜBBERT, D., ARTHUR, J., PATEL, J. R.:** J. Appl. Phys. 92 (7), 3694-3703, (2002)
- TAKAGI, H., OGAWA, H., YAMAZAKI, Y., ISHIZAKI, A., NAKAGIRI, T.:** Appl. Phys. Lett. 56 (24), 2379-2380, (1990)
- TERSOFF, J., TEICHERT, C., LAGALLY, M. G.:** Phys. Rev. Lett. 76 (10), 1675-1678, (1996)
- WARREN, B. E.:** „X-Ray Diffraction“, Dover Publications, New York, (1990)
- WEISSKER, H.-CH., FURTHMÜLLER, J., BECHSTEDT F.:** Phys. Rev. B 65, 155328, (2002)
- WEISSKER, H.-CH., FURTHMÜLLER, J., BECHSTEDT F.:** Phys. Rev. B 67, 165322, (2003)
- WORTMAN, J. J., EVANS, R. A.:** J. Appl. Phys. 36 (1), 153-156, (1965)
- WUNDERLICH, B.:** Diplomarbeit „Hochauflösende Röntgendiffraktometrie von SiC-Schichten auf SiC-Substraten“, Friedrich-Schiller-Universität Jena, (1998)
- ZHUANG, Y., HOLY, V., STANGL, J., DARHUBER, A. A., MIKULIK, P., ZERLAUTH, S., SCHÄFFLER, F., BAUER, G., DAROWSKI, N., LÜBBERT, D., PIETSCH, U.:** J. Phys. D: Appl. Phys. 32, A224-A229, (1999)

Anhang A

Einfluss der Orientierungsverteilung auf die integrale Breite der Reflexionskurve im $\omega/2\theta$ -Scan

Eine allgemeinen Formfunktion $g(x,y,z)$ wird zur Beschreibung der Gestalt der Nanokristallite definiert:

$$g(x, y, z) = \begin{cases} 1 & \text{innerhalb des Nanokristallits} \\ 0 & \text{außerhalb des Nanokristallits} \end{cases}$$

Berechnung der Integralintensität und Maximalintensität (z-Achse parallel zur Netzebenennormalen):

1. Nanokristallite ohne Vorzugsorientierung – analog kristallinem Pulver

$$I_{\text{int egral}} \sim |F|^2 \frac{V_{\text{gesamt}}}{V_{\text{EZ}}} \iiint dx dy dz g(x, y, z) \quad I_{\text{max}} \sim |F|^2 \frac{V_{\text{gesamt}}}{V_{\text{EZ}}} \iint dx dy \left| \int dz g(x, y, z) \right|^2$$

2. Nanokristallite mit δ -förmiger Orientierungsverteilung – analog Einkristall

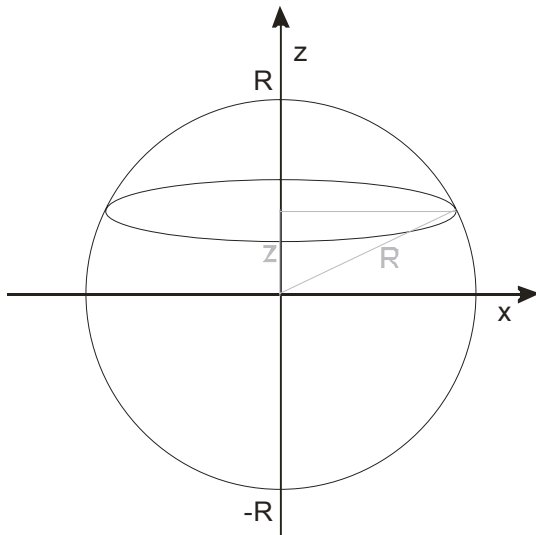
$$I_{\text{int egral}} \sim |F|^2 \frac{V_{\text{gesamt}}}{V_{\text{EZ}}} \int dz \left| \iint dx dy g(x, y, z) \right|^2 \quad I_{\text{max}} \sim |F|^2 \frac{V_{\text{gesamt}}}{V_{\text{EZ}}} \left| \iiint dx dy dz g(x, y, z) \right|^2$$

- V_{gesamt} - gesamte Volumen der Ge-Nanokristallite
- V_{EZ} - Volumen der Elementarzelle von Germanium
- F - Strukturfaktor von Germanium

Für Nanokristallite mit δ -förmiger Orientierungsverteilung ergibt sich die integrale Breite $\beta(q)$ zu:

$$\beta(q) = \frac{I_{\text{int egral}}}{I_{\text{max}}} = \frac{\int dz \left| \iint dx dy g(x, y, z) \right|^2}{\left| \iiint dx dy dz g(x, y, z) \right|^2}$$

Unter der Annahme von kugelförmigen Teilchen beschreibt die Formfunktion $g(x,y,z)$ eine Kugel mit dem Radius R . Mehrere Nanokristallite mit gleicher Gestalt aber mit anderen Durchmessern R werden durch die Größenverteilungsfunktion $h(R)$ erfasst.



Die Maximalintensität I_{\max} errechnet sich aus dem Betragsquadrat des Kugelvolumens. Für die Berechnung der Integralintensität I_{integral} werden die Betragsquadrate der Kreisflächen mit dem Radius $\sqrt{(R^2 - z^2)}$ über alle z integriert von $-R$ bis R . Somit ergibt sich:

$$\beta(q) = \frac{\int_0^{\infty} h(R) \int_{-R}^R dz \left| \pi (R^2 - z^2) \right|^2 dR}{\int_0^{\infty} h(R) \left| \frac{4\pi}{3} R^3 \right|^2 dR} = \frac{2\pi^2 \frac{8}{15} \int_0^{\infty} R^5 h(R) dR}{\frac{16\pi^2}{9} \int_0^{\infty} R^6 h(R) dR}$$

Umrechnung bezüglich des Durchmessers:

$$\beta(q) = \frac{9 \int_0^{\infty} R^5 h(R) dR}{15 \int_0^{\infty} R^6 h(R) dR} = \frac{18 \int_0^{\infty} D^5 h(D) dD}{15 \int_0^{\infty} D^6 h(D) dD}$$

Aus der integralen Breite kann für Nanokristallite mit δ -förmiger Orientierungsverteilung eine Teilchengröße D^* (Durchmesser bei kugelförmigen Kristalliten) berechnet werden, die sich aus einer Mittelung von 5. und 6. Moment der Größenverteilungsfunktion ergibt.

$$\beta(q) = \frac{1}{0,83} \frac{1}{D^*}$$

Anhang B

Die Faltung zweier Lorentzkurven ergibt wieder eine Lorentzkurve, wobei die Addition der Halbwertsbreiten der Ausgangskurven die Halbwertsbreite der resultierenden Lorentzkurve ergibt.

$$f(x) = \frac{1}{\omega^2 + x^2} \Rightarrow FT : F(h) = \frac{\pi}{\omega} \cdot e^{-\omega h}$$

$$g(x) = \frac{1}{\sigma^2 + x^2} \Rightarrow FT : G(h) = \frac{\pi}{\sigma} \cdot e^{-\sigma h}$$

$$k(x) = f(x) \otimes g(x) \Rightarrow K(h) = F(h) \cdot G(h) = \frac{\pi^2}{\omega\sigma} \cdot e^{-(\omega+\sigma)h} = \frac{\pi^2}{\omega\sigma} \cdot e^{-\varepsilon h}$$

$$k(x) = C \frac{1}{\varepsilon^2 + x^2} \Rightarrow FT : K(h) = C \cdot \frac{\pi}{\varepsilon} \cdot e^{-\varepsilon h}$$

$$\Rightarrow \varepsilon = \omega + \sigma \quad C = \frac{\pi \cdot \varepsilon}{\omega \sigma}$$

$2\omega, 2\sigma$ - Halbwertsbreiten der Ausgangskurven

2ε - Halbwertsbreite der resultierenden Lorentzkurve

Somit kann man für die integralen Breiten der gemessene Reflexionskurven beider Ordnungen des Ge-Reflexes (Ge-(111)- und Ge-(333)-Reflex) folgende Beziehungen für den ω -Scan formulieren:

$$\beta_{111}(\omega) = \beta^O(\omega) + \beta_{111}^T(\omega)$$

$$\beta_{333}(\omega) = \beta^O(\omega) + \beta_{333}^T(\omega)$$

$\beta_{111}(\omega)$ - integrale Breite der gemessenen Reflexionskurve

$\beta^O(\omega)$ - integrale Breite der Orientierungsverteilung

$\beta_{hkl}^T(\omega)$ - integrale Breite der Kurve hervorgerufen durch die Kristallitgröße

Aus den obigen Gleichungen ergeben sich die Gleichungen 5.1.3 im Kapitel 5.1..

$$\beta^O = \beta_{111} - \frac{\beta_{333} - \beta_{111}}{\left(\frac{\sin \theta_{111}}{\sin \theta_{333}}\right) - 1}$$

$$\beta_{111}^T = \frac{\beta_{333} - \beta_{111}}{\left(\frac{\sin \theta_{111}}{\sin \theta_{333}}\right) - 1}$$

Danksagung

Abschließend möchte ich die Gelegenheit nutzen, mich bei all denen zu bedanken, die direkt oder indirekt zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben.

Herrn Prof. Dr. K. Goetz danke ich für die Möglichkeit, diese Arbeit am Institut für Optik und Quantenelektronik durchführen zu können. Unsere vielen wissenschaftlichen Diskussionen haben erheblich zu meiner Motivation beigetragen. Besonders sein Verständnis für familiäre Randbedingungen gaben mir immer wieder Energie und Zuversicht meine wissenschaftlichen Arbeiten, trotz Kindererziehung, fortzusetzen.

Herrn Dr. J. Kräußlich danke für seine stete Diskussionsfreudigkeit, seine Hilfsbereitschaft, seine vielfältigen Anregungen zu dieser Arbeit und ganz besonders für seine Unterstützung bei den Messreisen nach Grenoble.

Mein Dank gilt allen Mitarbeiterinnen und Mitarbeitern der Arbeitsgruppe Röntgenphysik für das sehr angenehme Arbeitsklima, für fachliche, technische und moralische Unterstützung sowie anregende Diskussionen. Besonderer Dank gilt Frau R. Neitzel für ihre stete Hilfsbereitschaft.

Für die ausgesprochen unproblematische Zusammenarbeit mit dem Institut für Festkörperphysik möchte ich Herrn Prof. Dr. W. Witthuhn und Herrn Prof. Dr. W. Wesch danken. Besonders danke ich hierbei Herrn Dr. Ch. Schubert für die Herstellung der implantierten Proben und die Charakterisierung der Proben mittels RBS.

Herrn Dr. B. Schröter vom Institut für Festkörperphysik danke ich für die Bereitstellung von Siliziumkarbidproben mit aufgewachsenen Ge-Nanokristalliten und die Durchführung der AFM-Messungen.

Ich danke Herrn Dr. G. Hess für seine Hilfe bei der Durchführung der Messungen an der ESRF in Grenoble.

Herrn Dr. N. Schell, Herrn Dr. F. Eichhorn vom Forschungszentrum Rossendorf danke ich für die Bereitstellung von Messzeit an der ROBL *Beamline* an der ESRF und zusammen mit Herrn Dr. A. Bauer und Herrn U. Strauch für die Unterstützung bei der Durchführung von Messungen an dieser *Beamline*.

Ich danke der Deutschen Forschungsgemeinschaft, die im Rahmen des Sonderforschungsbereiches „Physik und Chemie optischer Schichten“ Teile dieser Arbeit finanziell unterstützt hat.

Ich danke meinem Mann Frank für unsere vielen wissenschaftlichen Diskussionen auch am Frühstückstisch.

Schließlich danke ich noch meinen Söhnen Markus und Lukas dafür, dass sie mir durch ihre unkomplizierte Art die Zeit und Ruhe gegeben haben, diese Arbeit zu vollenden.

Ehrenwörtliche Erklärung

Ich erkläre hiermit ehrenwörtlich, dass ich die vorliegende Arbeit selbständig, ohne unzulässige Hilfe Dritter und ohne Benutzung anderer als der angegebenen Hilfsmittel und Literatur angefertigt habe. Die aus anderen Quellen direkt oder indirekt übernommenen Daten und Konzepte sind unter Angabe der Quelle gekennzeichnet.

Weitere Personen waren an der inhaltlich-materiellen Erstellung der vorliegenden Arbeit nicht beteiligt. Insbesondere habe ich hierfür nicht die entgeltliche Hilfe von Vermittlungs- bzw. Beratungsdiensten (Promotionsberater oder andere Personen) in Anspruch genommen.

Niemand hat von mir unmittelbar oder mittelbar geldwerte Leistungen für Arbeiten erhalten, die im Zusammenhang mit dem Inhalt der vorgelegten Dissertation stehen.

Die Arbeit wurde bisher weder im In- noch im Ausland in gleicher oder ähnlicher Form einer anderen Prüfungsbehörde vorgelegt.

Die geltende Promotionsordnung der Physikalisch-Astronomischen Fakultät ist mir bekannt.

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

Jena, 15. April 2004

Lebenslauf

Vor- und Zuname: Bettina Wunderlich
geb. Köcher

Geburtsdatum: 09. 07. 1973

Geburtsort: Gotha

Familienstand: verheiratet, zwei Kinder

Schulbildung: 1980-1990 POS „Theodor Neubauer“ in Gotha
Abschluß: mittlere Reife
1990-1992 Gymnasium „Arnoldschule Gotha“
Abschluß: allgemeine Hochschulreife

Studium: 1992-1998 Friedrich-Schiller-Universität Jena
Abschluß am 29. Januar 1998: Diplomphysikerin

Nebenfächer: Philosophie / Logik und Wissenschaftstheorie
Chemie

Mitglied des
Fakultätsrates: April 1995 bis März 1997

Tätigkeit: wissenschaftliche Mitarbeiterin an der Friedrich-Schiller-Universität Jena
vom 15.02.1998 bis 31.12.1999, vom 1.8.2000 bis 7.1.2004 und
seit 1.4.2004

Eigene Veröffentlichungen

- BAUER, A., KRÄUBLICH, J., KÖCHER, B., GOETZ, K., FISSEL, A., RICHTER, W.:** „X-ray investigations of MBE-grown heteroepitaxial SiC layers on 6H-SiC substrates“, Materials Science & Engineering **B61-62**, 179-182, (1999)
- KRÄUBLICH, J., BAUER, A., WUNDERLICH, B., GOETZ, K.:** „Lattice Parameter Measurements of 3C-SiC Thin Films Grown on 6H-SiC(0001) Substrate Crystals“, Materials Science Forum **353-356**, 319-322, (2001)
- SCHUBERT, CH., KAISER, U., HEDLER, A., WESCH, W., GORELIK, T., GLATZEL, U., KRÄUBLICH, J., WUNDERLICH, B., HEB, G., GOETZ, K.:** „Nanocrystal formation in SiC by Ge ion implantation and subsequent thermal annealing“, J. Appl. Phys. 91 (3), 1520-1524, (2002)
- KÖCHER, B.:** „Hochauflösende Röntgendiffraktometrie von SiC-Schichten auf SiC-Substraten“, Friedrich-Schiller-Universität Jena, Diplomarbeit 1998
- KRÄUBLICH, J., WUNDERLICH, B., HEB, G., SCHRÖTER, B., GOETZ, K.:** „Ge-Nanocrystallites grown on SiC“, Friedrich-Schiller-Universität Jena, Annual Report 2001
- WUNDERLICH, B., KRÄUBLICH, J., SCHRÖTER, B., RICHTER, W., BAUER, A., SCHELL, N., MATZ, W., GOETZ, K.:** „Characterization of Ge-Nanocrystallites by X-ray Diffraction using different Wavelengths“, Friedrich-Schiller-Universität Jena, Annual Report 2001

Konferenzbeiträge

- KÖCHER, B., KRÄUBLICH, J., WUNDERLICH, F., DRESSLER, L., GOETZ, K.:** „X-ray Characterization of SiC Crystals and Thin Films“, 3rd Autumn School on X-ray Scattering from Surfaces and Thin Layers, Smolenice, Slovakia 1997
- KRÄUBLICH, J., BAUER, A., KÖCHER, B., WUNDERLICH, F., GOETZ, K.:** „Röntgendiffraktometrische Charakterisierung von SiC-Einkristallen und -Schichten“, axs-Anwendertreffen Röntgendiffraktometrie, Dresden 1997

KRÄUBLICH, J., KÖCHER, B., WUNDERLICH, F., GOETZ, K.: „X-ray Characterization of SiC Crystals and Thin Films”, 6. Jahrestagung DGK, Karlsruhe 1998

BAUER, A., KRÄUBLICH, J., KÖCHER, B., GOETZ, K., FISSEL, A., RICHTER, W.: „X-ray investigations of MBE-grown heteroepitaxial SiC layers on 6H-SiC substrates“, 2nd European Conference on SiC and Related Materials, Montpellier, Frankreich 1998

KRÄUBLICH, J., BAUER, A., WUNDERLICH, B., GOETZ, K.: „Lattice Parameter Measurements of 3C-SiC Thin Films Grown on 6H-SiC(0001) Substrate Crystals”, 3th European Conference on Silicon Carbide and Related Materials (ECSCRM 2000), Erlangen / Kloster Banz

WUNDERLICH, B., HEB, G., WUNDERLICH, F., KRÄUBLICH, J., GOETZ, K., SCHUBERT, CH., WESCH, W., KAISER, U.: „Hochauflösende Röntgenbeugung an Ge-implantierten 4H-SiC“, 65. Physikertagung und Frühjahrstagung des Arbeitskreises Festkörperphysik der DPG, Hamburg 2001

WUNDERLICH, B., KRÄUBLICH, J., GOETZ, K.: „Ge-Nanocrystals Characterization by X-Ray Diffraction with different Wavelengths”, 6th Biennial Conference on High Resolution X-Ray Diffraction and Imaging (X-TOP), Grenoble/Aussois 2002

WUNDERLICH, B., KRÄUBLICH, J., GOETZ, K.: „Ge-Nanocrystals Characterization by X-Ray Diffraction with different Wavelengths”, 6. Deutsche Physikerinnentagung (DPT), Tübingen 2002

Reports – ESRF Grenoble, Frankreich

HEB, G., BAUER, A., SCHELL, N., WUNDERLICH, B., KRÄUBLICH, J., GOETZ, K.: „X-ray investigation of Silicon/Germanium nanocrystals“ Messzeit Januar 2001

KRÄUBLICH, J., WUNDERLICH, B., WUNDERLICH, F., HEB, G.: „Strain in Si/Ge-nanocrystals“ Messzeit Juni 2001

HEB, G., KRÄUBLICH, J., WUNDERLICH, B., WUNDERLICH, F.: „X-ray investigation of Ge-nanocrystallites implanted in SiC“ Messzeit Februar 2002

WUNDERLICH, B., KRÄUBLICH, J., WUNDERLICH, F.: „XRD of modified Ge-nanocrystals“ Messzeit September 2002