

## Abschließender Sachbericht

# **„Effizienter Züchtungsprozess für GaAs im kombinierten Heizer-Magnet-Modul“**

Leibniz-Einrichtung: Leibniz-Institut für Kristallzüchtung  
Aktenzeichen: SAW-2011-IKZ-2  
Projektlaufzeit: 01.05.2011-30.04.2014  
Ansprechpartner: Dr. Christiane Frank-Rotsch

## Zielsetzung

Ziel des Vorhabens war die Entwicklung eines industriell anwendbaren Prozesses für die VGF-Züchtung von GaAs-Kristallen unter Verwendung eines kombinierten Heizer-Magnet-Moduls. Hierfür stand am IKZ ein Modulprototyp zur Verfügung, dessen Wirkprinzip, die Beeinflussung der Konvektion durch die Anwendung von Magnetfeldern während der Kristallzüchtung, an Germanium als Modellsubstanz gezeigt werden konnte. Die Entwicklung eines industrierelevanten Prozesses stand jedoch noch aus. Es sollte eine Methode entwickelt werden, mit der die Schmelzkonvektion und die damit verbundene Form der Phasengrenze während der Züchtung kontrolliert werden können. Dadurch sollten Versetzungen und Inhomogenitäten reduziert und die Kristallqualität verbessert werden.

## Vorgehensweise

Die Untersuchungen zur Züchtung von GaAs-Kristallen im Heizer-Magnet-Modul begannen mit der Durchführung von Simulationsrechnungen. In enger Zusammenarbeit zwischen den beteiligten Mitarbeitern in der Arbeitsgruppen der Konstruktion, Numerik und Kristallzüchtung wurde eine Anlage zur Züchtung von GaAs unter Magnetfeldeinfluss konzipiert und modifiziert. Diese neuartige Anordnung wurde während des Projektes erfolgreich zum Patent angemeldet. Die Prozessentwicklung wurde dabei kontinuierlich durch die numerische Simulation unterstützt. Während der Projektbearbeitung stand die Steigerung der Effizienz des VGF-GaAs-Prozesses durch Verringerung der Herstellungskosten ohne Verlust der Kristallqualität im Fokus der Untersuchungen. Zur Lösung dieser technologischen und wissenschaftlichen Herausforderung wurden drei unterschiedliche Strategien verfolgt:

- Vergrößerung der Kristalllänge
- simultane Kristallisation in mehreren Tiegeln
- Erhöhung der Kristallisationsgeschwindigkeit

## Ergebnisse

Es konnte die positive Magnetfeldwirkung für die Züchtung von GaAs, insbesondere die Reduzierung der Durchbiegung der fest/flüssigen Phasengrenze nachgewiesen werden. Die gezüchteten GaAs-Kristalle zeigten eine hohe Qualität (Versetzungsdichte  $< 100 \text{ cm}^{-2}$ ) und eine reduzierte Mikroinhomogenität. Es konnte in ersten Versuchen die Möglichkeit der Erhöhung der Züchtungsgeschwindigkeit, durch konvektiv bedingten Abtransport der Kristallisationswärme gezeigt werden. Es erfolgte der Bau und Funktionsnachweis eines neuartigen Multitiegel-Heizer-Magnet-Moduls (4 Tiegel á 4" Durchmesser).

Die formulierten Projektziele wurden erreicht und bilden die Grundlage für weiterführende Forschungsaktivitäten.

Im Rahmen der Projektbearbeitung sind zahlreiche Publikationen entstanden, die nachfolgend mit Ihren bibliographischen Daten zusammengestellt sind. Weiterhin fanden die erzielten Ergebnisse Interesse bei den Fachkollegen, so dass auch einige eingeladene Vorträge auf Fachtagungen gehalten wurden. Auch diese sind in der nachfolgenden aufgelistet.

Die Projektergebnisse, insbesondere Simulationsstudien, zeigten auch mögliche Ansätze z.B. für die Kristallisation von Silizium auf, die gleichfalls publiziert wurden.

Die Konstruktion und das Verfahren des entwickelten Heizer-Magnet-Modul-Aufbaus für mehrere Tiegel ist während der Projektlaufzeit zum Patent angemeldet und erteilt worden. Eine weitere Patentschrift zum Verfahren und Aufbau ist eingereicht worden.

Die erzielten Ergebnisse wurden zum Teil im Rahmen einer Doktorarbeit bearbeitet. Diese wurde im September 2014 sehr erfolgreich verteidigt.

## Publikationen

### Zeitschriften

N. Dropka, A. Glacki, Ch. Frank-Rotsch; **GaAs Vertical Gradient Freeze Process Intensification**; Crystal Growth & Design 14 (2014), 5122-5130.

A. Glacki, N. Dropka, Ch. Frank-Rotsch, U. Juda, M. Naumann; **Characterization of 4 inch VGF-GaAs single crystals grown in a heater-magnet module**; Journal of Crystal Growth 397 (2014) 6 – 12.

N. Dropka, Ch. Frank-Rotsch ; **Enhanced VGF-GaAs growth using pulsed unidirectional TMF**; Journal of Crystal Growth 386 (2014) 146 – 153.

Ch. Frank-Rotsch, N. Dropka, A. Glacki; U. Juda; **VGF growth of GaAs utilizing heater-magnet module**; Journal of Crystal Growth 401 (2014) 702 – 707.

N. Dropka, Ch. Frank-Rotsch; **Accelerated VGF-crystal growth of GaAs under travelling magnetic fields**; Journal of Crystal Growth 367 (2013) 1 – 7.

N. Dropka, Ch. Frank-Rotsch, P. Rudolph; **Comparison of stirring efficiency of various non-steady magnetic fields during unidirectional solidification of large silicon melts**; Journal of Crystal Growth 365 (2013) 64 – 72.

N. Dropka, Ch. Frank-Rotsch, W. Miller, P. Rudolph; **Influence of travelling magnetic fields on S-L interface shapes of materials with different electrical conductivities**; Journal of Crystal Growth 338 (2012) 208 – 213.

### Eingeladene Vorträge

Ch. Frank-Rotsch, N. Dropka, A. Glacki; **Enhancement of GaAs VGF process by using traveling magnetic fields**; E-MRS Spring Meeting 2014 (Lille, France, 26.05.-30.05.2014)

Ch. Frank-Rotsch, N. Dropka, U. Juda, A. Glacki, O. Root; **Vertical gradient freeze growth of GaAs using a heater magnet module (HMM)** ; 17th Int. Conf. on Crystal Growth and Epitaxy (ICCGE-17) (Warschau, Polen, 11.08.-16.08.2013)

Ch. Frank-Rotsch, N. Dropka, U. Juda, A. Glacki, O. Root; **Enhanced VGF-growth of GaAs using a heater magnet module** ; 19th American Conf. on Crystal Growth and Epitaxy (ACCGE-19) (Keystone, Colorado, USA, 21.07.-25.07.2013)

Ch. Frank-Rotsch; **Enhancement of semiconductor single crystal growth process by using magnetic & ultrasonic fields**; International Summer School on Crystal Growth (Brasov, Romania, 27.08-01.09.2012)

Ch. Frank-Rotsch, N. Dropka, A. Glacki, U. Juda ; **Vertical gradient freeze of 4-inch gallium arsenide in a heater-magnet module**; Romanian Conf. on Advanced Materials (ROCAM) (Brasov, Romania, 28.08-31.08.2012)

N. Dropka; **Improved mixing in silicon melts by Travelling and Carousel magnetic fields**; The Norwegian Research Centre for Solar Cell Technology-Annual Meeting 2012 (Trondheim, Norway, 22.05-23.05.2012)

N. Dropka; **Analysis for crystal growth mechanism**; Workshop on crystal growth of Si, SiC (Fukuoka, Japan, 17.01.-18.01.2012)

### Vorträge

N. Dropka, Ch. Frank-Rotsch; **Enhanced VGF-GaAs growth using pulsed unidirectional MF**; DKT 2014 - DGKK Jahrestagung (Halle, Germany, 12.03.-14.03.2014)

Ch. Frank-Rotsch, N. Dropka, A. Glacki, U. Juda ; **Effiziente VGF-GaAs-Züchtung unter TMF-Einfluss**; DGKK-Arbeitskreis Herstellung und Charakterisierung von massiven Halbleitern (Erlangen, Germany, 16.10.-17.10.2013)

N. Dropka, Ch. Frank-Rotsch; **Numerical comparison of scale-up and numbering-up concepts for VGF-GaAs growth under TMF**; 19th American Conf. on Crystal Growth and Epitaxy (ACCGE-19) (Keystone, Colorado, USA, 21.07.-25.07.2013)

N. Dropka, Ch. Frank-Rotsch; **Enhanced VGF-crystal growth of GaAs under travelling magnetic fields**; International Symposium on Electromagnetic Flow Control in Metallurgy, Crystal Growth and Electrochemistry (Dresden, Germany, 25.03.-27.03.2013)

Ch. Frank-Rotsch, N. Dropka, U. Juda, A. Glacki; **Optimierung des GaAs-VGF-Züchtungsprozesses unter Nutzung eines Heizer-Magnet-Moduls** ; DKT 2013 - DGKK Jahrestagung (Erlangen, Germany, 06.03.-08.03.2013)

N. Dropka, Ch. Frank-Rotsch, P. Rudolph; **Comparison of stirring efficiency of different unsteady magnetic fields during unidirectional solidification of large silicon ingots**; 12. Kinetikseminar & 8. Workshop Angewandte Simulation in der Kristallzüchtung (Griebnitzsee bei Berlin, Germany, 18.11.-21.11.2012)

Ch. Frank-Rotsch, N. Dropka, U. Juda, A. Glacki ; **Enhancement of gallium arsenide VGF process by using a heater-magnet module HMM**; 7th Int. Workshop on Modeling in Crystal growth (IWMCG-7) (Taipei, Taiwan, 28.10.-31.10.2012)

A. Glacki, Ch. Frank-Rotsch, U. Juda, M. Naumann, N. Dropka; **Züchtung und Charakterisierung von 4"-VGF-GaAs im Heizer-Magnet-Modul**; DGKK-Arbeitskreis Herstellung und Charakterisierung von massiven Halbleitern (Freiberg, Germany, 04.10.-05.10.2012)

Ch. Frank-Rotsch, N. Dropka, A. Glacki, U. Juda ; **VGF single crystal growth in a heater magnet module**; European Conference on Crystal Growth (ECCG-4) (Glasgow, UK, 17.06-201.06.2012)

### Poster

A. Glacki, Ch. Frank-Rotsch, M. Naumann, U. Juda; **Improvement of VGF growth of 4" GaAs single crystals with traveling magnetic fields**; World Materials Summit/Forum for Next Generation Researchers (Strasbourg, Frankreich, 12.10.-15.10.2013)

A. Glacki, Ch. Frank-Rotsch, U. Juda, M. Naumann; **Influence of a traveling magnetic field on micro- and macrosegregation during VGF growth of 4"-GaAs**; DKT 2013 - DGKK Jahrestagung (Erlangen, Germany, 06.03.-08.03.2013)

A. Glacki, Ch. Frank-Rotsch, U. Juda, O. Root; **Erste Züchtungsergebnisse von 4"-VGF-GaAs-Kristallen mit kombiniertem Heizer-Magnet-Modul**; Deutsche Kristallzüchtungstagung 2012 (Freiberg, Germany, 07.03.-09.03.2012)

Ch. Frank-Rotsch, N. Dropka, A. Glacki, U. Juda ; **VGF-Einkristallzüchtung von Halbleitermaterialien im Heizer-Magnet-Modul**; Deutsche Kristallzüchtungstagung 2012 (Freiberg, Germany, 07.03.-09.03.2012)

### Patente

N.Dropka, Ch.Frank-Rotsch, M.Ziem, P.Lange; **Verfahren und Vorrichtung zur gerichteten Kristallisation von Kristallen aus elektrisch leitenden Schmelzen**; Deutsches Patent- und Markenamt, 10 2012 204 313 B3, 2013-06-13 erteilt

N. Dropka, Ch. Frank-Rotsch, P. Lange, P. Krause; **Kristallisationsanlage und Kristallisationsverfahren zur Kristallisation aus elektrisch leitenden Schmelzen sowie über das Verfahren erhältliche Ingots**; Deutsches Patent- und Markenamt, DE 10 2013 211 769.8, 2013-06-21 angemeldet

### Promotion

Dipl.-Phys. Alexander Glacki: „**VGF growth of 4" GaAs single crystals with traveling magnetic fields**“; eingereicht am: 15.05.2014; Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät der Humboldt-Universität zu Berlin

## Arbeits- und Ergebnisbericht

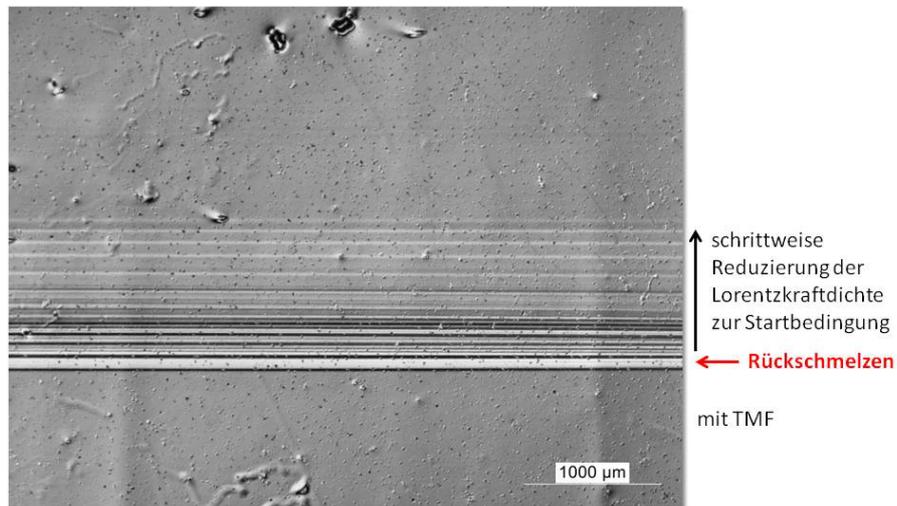
Das im Antrag formulierte Projektziel konnte in der gesamten Projektlaufzeit verfolgt werden und es waren keine Abweichungen vom ursprünglichen Konzept notwendig.

Nachfolgend sollen ausgewählte wesentliche Projektergebnisse im Detail dargestellt werden.

Vor Beginn der GaAs-Züchtungsversuche im Heizer-Magnet-Modul (HMM) wurden vorbereitend umfangreiche Simulationsrechnungen zu möglichen Anpassungen der thermischen Isolation für die am Institut vorhandene VGF-Kristallzüchtungsanlage, die zuvor für Germanium-Modellversuche eingesetzt wurde, durchgeführt. Hierbei zeigte sich, dass zur Realisierung der für die Züchtung von GaAs notwendigen Temperaturen ( $\sim 1300^\circ\text{C}$ ) die vorhandenen Originaleinbauten einer Modifikation bedurften. Auf Basis der spezifischen Eigenschaften von GaAs waren noch weitere Anpassungen an der Züchtungsanlage notwendig. Nach Abschluss der Umbauarbeiten erfolgte eine umfassende thermische Charakterisierung. Hierzu wurden axiale Temperaturprofile für unterschiedliche Zeitpunkte des Züchtungsprozess in der Anlage aufgenommen, die zur Ermittlung der notwendigen Prozessparameter führten. Im August 2011 begannen die GaAs-Züchtungsversuche in der modifizierten VGF-Anlage unter Nutzung einer Einwaage von zunächst ca. 5 kg. Der Schwerpunkt der Untersuchungen lag auf der möglichen Beeinflussung der Form der fest/flüssigen (s/l) Phasengrenze während der Kristallisation, um diese nach der Züchtung untersuchen zu können, wurde Silizium (Si) gezielt als Dotierstoff zugegeben, um den ätztechnischen Nachweis der Wachstumsstreifen, der auf geringfügige Schwankungen der Ladungsträger beruht, zu ermöglichen. Zunächst wurde ein Vergleichskristall im reinen Gleichstromfeld (ohne Wandermagnetfeld) gezüchtet. In diesem Kristall konnten typische ausgeprägter Wachstumsstreifen nachgewiesen werden. Der Verlauf der s/l Phasengrenze in diesem Vergleichskristall war leicht konkav.

Im ersten Kristall der unter Verwendung eines Wandermagnetfeldes (TMF) ( $B < 1 \text{ mT}$ ) mit einer Geschwindigkeit von ca. 1,5 mm/h gezüchtet wurde, konnten nur partiell am Kristallende die s/l Wachstumsgrenze sichtbar gemacht werden. In diesem Bereich wurde in der Kristallmitte eine fast ebene Phasengrenze dargestellt, im Randbereich war keine Phasengrenze sichtbar. Dies lieferte bereits einen ersten Hinweis auf eine Reduzierung der Mikroinhomogenität im GaAs unter Magnetfeldanwendung. Auch eine Erhöhung der Si-Dotierung in der Größenordnung von  $1\text{-}4 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$  ermöglichte keinen Nachweis der Phasengrenze. Daher war es notwendig weitere Methoden zu untersuchen, die eine Visualisierung der Form der Phasengrenze ermöglichen. Dies gelang im weiteren Verlauf der Untersuchungen, durch eine schlagartige Erhöhung der abwärts in Richtung der Phasengrenze gerichteten Lorentzkraftdichte. Diese Lorentzkraftdichte beeinflusste die Schmelzkonvektion in der Form, dass die s/l Phasengrenze zurückgeschmolzen wurde wodurch sich diese nach dem Versuch in Form einer Markierung im gewachsenen Kristall nachweisen ließ. Die Erhöhung des TMF-Feldes wurde dann schrittweise zurückgenommen und am Mikroskop an geätzten Längsschnitten der Kristalle analysiert. Dabei war sehr deutlich zu erkennen, dass die Schmelze sehr sensibel auf kleinste Änderungen des Magnetfelds reagiert und jede Magnetfeldreduzierung zeichnet sich im Ätzbild ab.

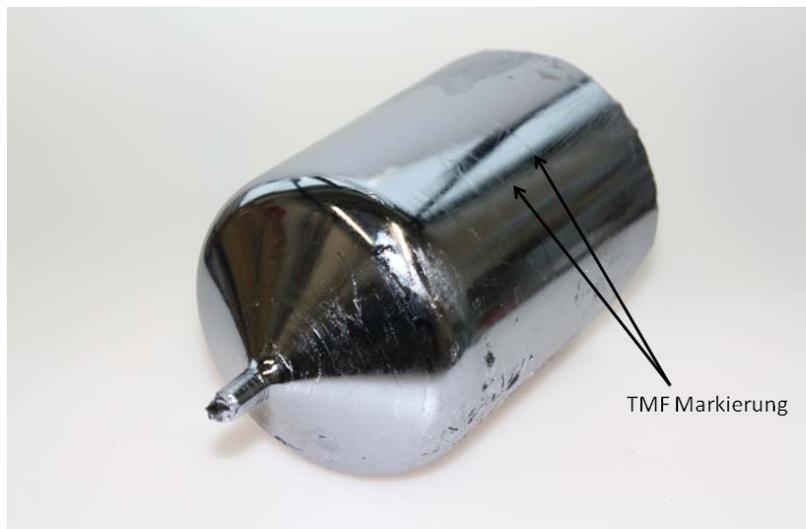
In Abbildung 1 wird eine mittels optischen Mikroskops aufgenommene Abbildung im Bereich der markierten Phasengrenze gezeigt. Zunächst waren unter Einfluss von TMF keine Wachstumsstreifen erkennbar. Nach dem Rückschmelzen wurden die Lorentzkräfte schrittweise auf deren ursprüngliche Werte zurückgeführt, welches ein dichtes Paket von Wach-



**Abb. 1:** Mikroskopische Aufnahme einer geätzten GaAs-Probe im Bereich der TMF-Markierung

tumsstreifen entlang der gesamten Phasengrenze erzeugte. Unter konstanten TMF in ursprünglicher Stärke verschwanden die Wachstumsstreifen erneut vollständig.

Durch das gezielte Erhöhen des Magnetfeldes („TMF-Markierung“) sind experimentelle Voraussetzungen geschaffen worden, die systematische Untersuchungen des Magnetfeldeinflusses auf die Form der Phasengrenze in Abhängigkeit von den gewählten Parametern (Frequenz, Stromstärke und Phasenverschiebung) ermöglichten. Die Form der Phasengrenze wurde anhand von zwei Parametern ausgewertet: die relative Durchbiegung  $\Delta z/R$  des Markers und der Anstiegswinkel  $\beta$  der Phasengrenze am Kristallrand. Dies stellte die Voraussetzung für die Optimierung des Züchtungsprozesses dar. Die Markierungen waren bereits äußerlich auf den Kristallen zu erkennen, welches unmittelbar nach Züchtung erste Aussagen zu den erzielten Wachstumsgeschwindigkeiten sowie zu Symmetrie der Phasengrenzform ermöglichte. Durch diese gezielten Markierungen wurde eine definierte Analysemöglichkeit der Kristalle etabliert.



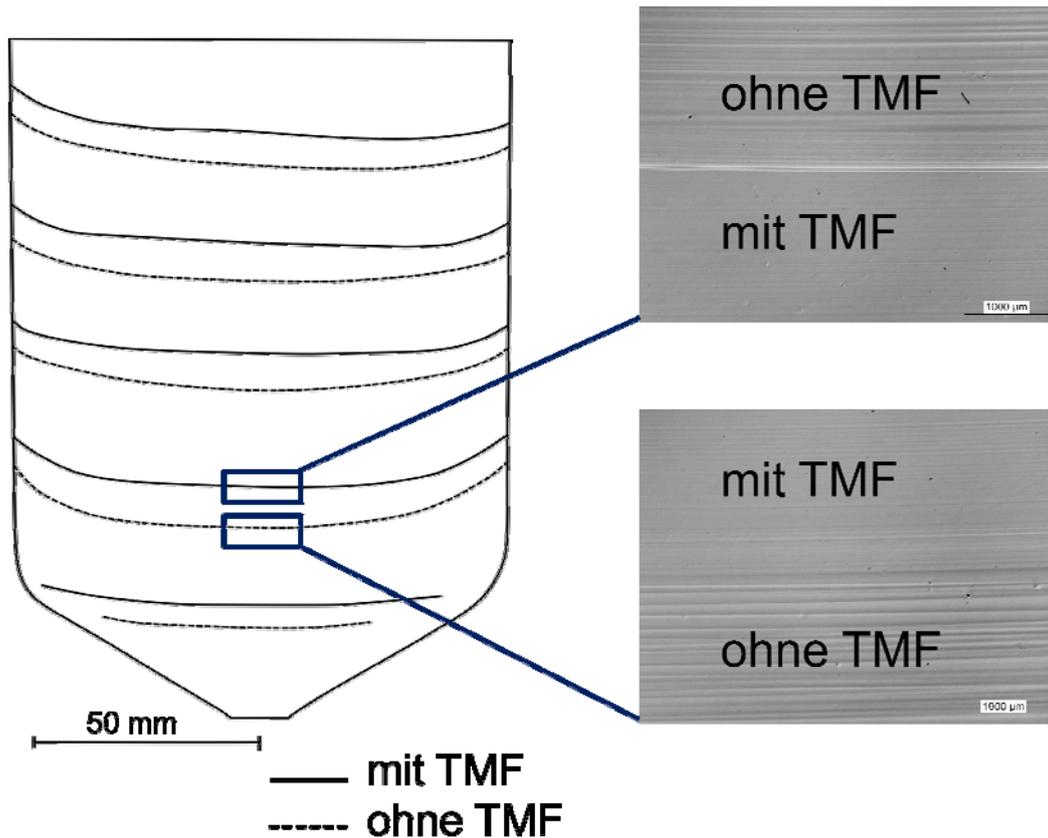
**Abb. 2:** Foto GaAs-Einkristall, gezüchtet im HMM,  $d = 4$  Zoll,  $m = 7$  kg

Abbildung 2 zeigt einen Kristall mit deutlich erkennbaren TMF-Markierungen an der Oberfläche.

Für den genutzten Züchtungsaufbau wurde eine magnetische Flussdichte im Bereich von  $B_0 \sim 2$  mT ermittelt, die im Vergleich zu den Referenzversuchen ohne Magnetfeldeinfluss mit einer Kristallisationsgeschwindigkeit von 2-2,5 mm/h eine deutlich reduzierte konkave Durchbiegung während der Kristallzüchtung hervorrief. Es gelang dadurch der eindeutige Beweis, dass es durch den Einfluss des Magnetfeldes möglich ist, trotz der ungünstigen spezifischen Eigenschaften des GaAs, die Konvektionsbedingungen in der GaAs-Schmelze positiv zu beeinflussen.

Zur Optimierung der TMF-Parameter in Bezug auf die Einebnung der Form der Phasengrenze wurden verschiedene TMF-Parameterstudien für GaAs durchgeführt, so wurde insbesondere der Einfluss des Phasenwinkels auf die Richtung und Stärke der Lorentzkraft untersucht. Weiterhin erfolgten Untersuchungen zur Wirkung einer zweiten Frequenz (Doppelfrequenz-TMF), welche sowohl die Richtung, Intensität und Eindringtiefe des wirkenden Magnetfeldes bestimmt. Die Stromstärke des Wechselstromanteils in den Versuchen angepasst, dieser Parameter hat nur Einfluss auf den Stärke der Lorentzkraft und nicht auf die Richtung.

Die Wirkung des Magnetfeldes ist dabei besonders gut auswertbar, wenn während des Versuchs das Magnetfeld ein- und ausgeschaltet wird. Ein direkter Vergleich der Phasengrenzform mit und ohne TMF-Wirkung war damit möglich. In Abbildung 3 sind beispielsweise die mittels Ätztechnik ermittelten Phasengrenzverläufe mit und ohne TMF gezeigt. Bei diesem Kristall ist während des Versuches das Magnetfeld temporär ein und ausgeschaltet worden.



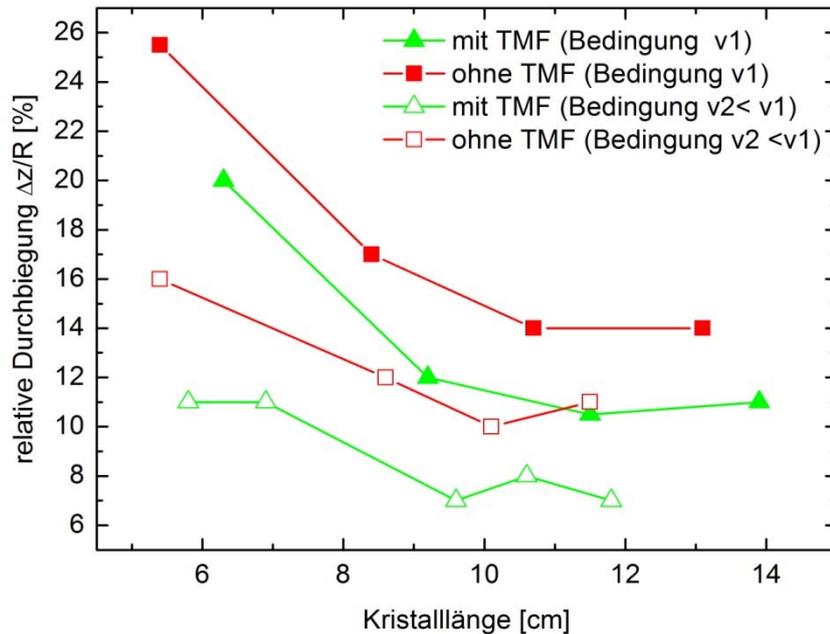
**Abb. 3:** Vergleich der ermittelten s/l Phasengrenzform mit und ohne Einfluss des TMF ( $B_0 \sim 1,5 \text{ mT}$ ), Si-dotierter GaAs-Einkristall  $n \sim 10^{18} \text{ cm}^{-3}$

Zunächst konnte reproduzierbar gezeigt werden, dass die Wachstumsstreifen unter Magnetfeldeinfluss nahezu unterdrückt werden und diese ohne Einfluss des TMF innerhalb eines Prozesses schlagartig wieder auftreten. Dieser Effekt konnte während des Prozesses mehrfach gezeigt werden. Dies ist ein Beleg für eine deutliche Reduzierung von Mikroinhomogenitäten im GaAs-Kristall. Die im Antrag formulierte Hypothese, dass das TMF einen positiven Einfluss auf die Mikrohomogenität des Materials hat, konnte damit eindeutig bewiesen werden. Dies ist ein wichtigstes Ergebnis.

Anhand der Untersuchung der geätzten Längsschnitte im Bereich des Kristallkonus konnte auch gezeigt werden, dass unter Magnetfeldeinfluss geringere Fluktuationen der Facetten auftraten. Es wird postuliert, dass dies auf der TMF-bedingten Stabilisierung der Strömung zurückzuführen ist.

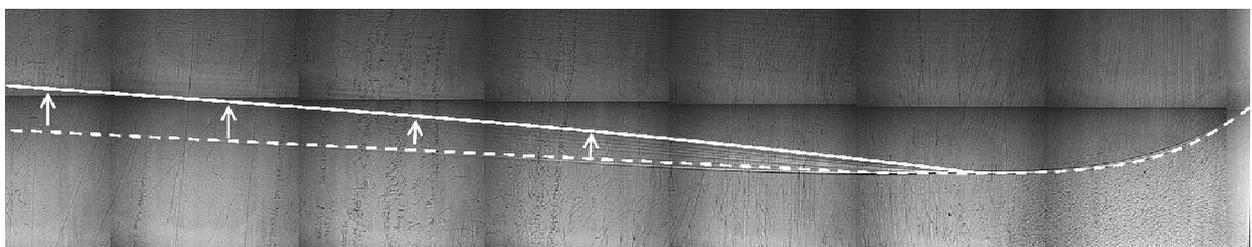
Die quantitative Auswertung der relativen Durchbiegungen der Phasengrenze ergab eine Reduzierung dieser um durchschnittlich 30 % unter TMF-Einfluss. Diese Reduzierung der Konkavität der Phasengrenze konnte bei mehreren Versuchen bei unterschiedlichen Bedingungen ermittelt und bestätigt werden. Dies ist in Abbildung 4 illustriert. Hierbei ist der örtliche Verlauf der gemessenen relativen Durchbiegung von zwei Kristallen, die mit unterschiedlichen Züchtungsgeschwindigkeiten gezüchtet wurden, gezeigt. Mit verringerter Züchtungsgeschwindigkeit (Bedingung v2) ist die gemessene Durchbiegung auch ohne Wirkung des TMF geringer als bei der Bedingung v1, es kann aber gezeigt werden, dass durch den Einsatz des Wandermagnetfeldes eine zusätzliche Verringerung der Durchbiegung erzielt werden kann. Somit steht durch den Einsatz von TMF bei der GaAs-Züchtung ein zusätzlicher

Parameter zur Verfügung, der die Eigenschaften der Kristalle beeinflussen kann und auch die Grundlage zur Effizienzsteigerung von Kristallzüchtungsprozessen sein kann.



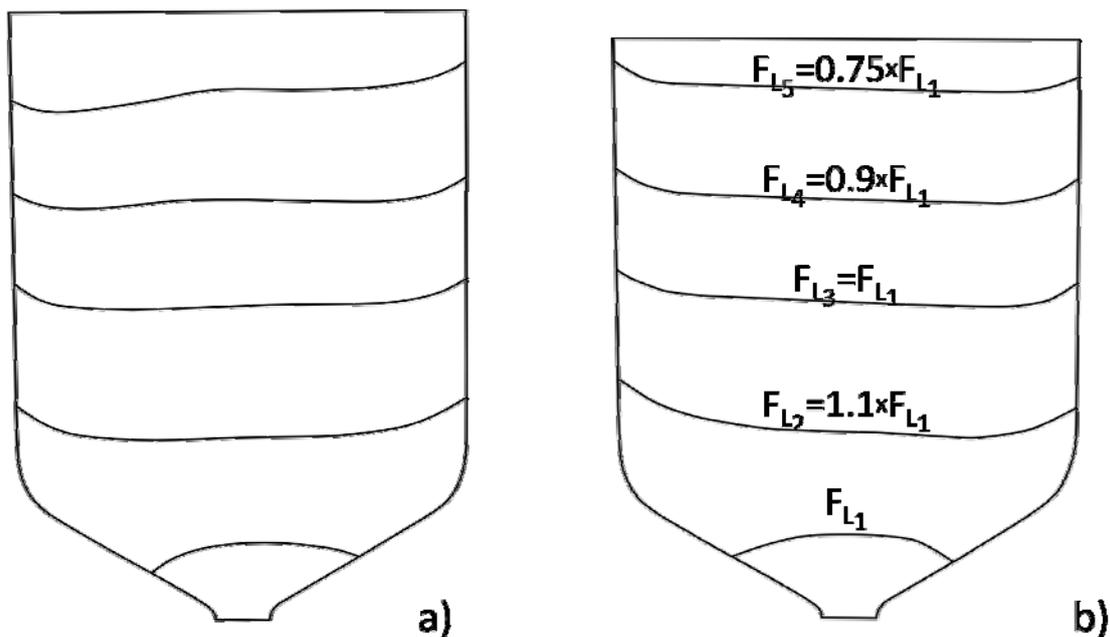
**Abb. 4:** Vergleich des axialen Verlaufs der ermittelten relativen Durchbiegung der s/l Phasengrenze mit und ohne TMF-Einfluss

Weiterhin konnte der positive Einfluss der Realisierung eines Doppelfrequenz-TMF belegt werden, so wirkt das Magnetfeld unter Nutzung einer zweiten höheren Frequenz  $f_2$  ( $f_2 \sim 10f_1$ ) insbesondere in der Nähe des Tiegelrandes. Der auf der geringen Frequenz  $f_1$  basierende Anteil des resultierenden Magnetfeldes mit der höheren Eindringtiefe formt die Phasengrenze im Zentrum des Kristalls. Durch geeignete Wahl der Magnetfeldparameter und Frequenzanteile lässt sich die Phasengrenze gezielt anpassen. Ein Beispiel hierzu zeigt Abbildung 5. Hier ist ein Ausschnitt einer zusammengesetzten Infrarotaufnahme gezeigt. Im Verlauf der Kristallisation wurde der Anteil der geringeren Frequenz ( $f_1 = 20$  Hz) am Doppelfrequenz-TMF erhöht. Die durchgezogene Linie zeichnet den Verlauf der s/l Phasengrenze mit einem Anteil von ca. 80 %  $f_1$  nach. Die gestrichelte Linie zeigt den Verlauf mit hohem  $f_2$ -Anteil.



**Abb. 5:** Ausschnitt einer Infrarotaufnahme an einem Ausschnitt eines Kristalllängsschnittes, bei dem sich die Phasengrenze unter Einfluss einer TMF-Doppelfrequenz (gestrichelt – Einfluss  $f_2$  dominiert, durchgezogen – Einfluss  $f_1$  dominiert  $f_1 < f_2$ )

Die Auswertung der relativen Durchbiegung der Form der Phasengrenze zeigte, dass diese über den axialen Verlauf des Kristalls sich zum Teil stark änderte. So traten insbesondere im Kristallendbereich neben anlagenspezifischen Asymmetrien auch sensible Übergänge von stabilen stationären Strömungsbedingungen zu instationären Strömungsregimen auf. Dies führte auch dazu, dass Wechselstromanteile, welcher die Stärke der generierten Lornetzkraft bestimmt, während der Kristallisation angepasst wurde. In Abbildung 6 ist vergleichend das Ergebnis der Durchbiegung der Phasengrenze bei konstanten TMF-Bedingungen (6a) zu dem Ergebnis mit stromangepassten TMF gezeigt (6b).



**Abb. 6:** Vergleich s/l Phasengrenzform an Kristalllängsschnitten unter TMF-Einfluss; a) Doppelfrequenz TMF,  $f_1=10$  Hz,  $f_2=100$  Hz konstanter AC-Strom; b) Doppelfrequenz TMF,  $f_1=10$  Hz,  $f_2=100$  Hz AC-Strom über den Verlauf angepasst

Die unter Variation der TMF-Bedingungen gezüchteten Kristalle wurden neben der Analyse der Form der erzielten s/l Phasengrenze auch bezüglich Versetzungsdichte (EPD), Röntgen-Halbwertsbreite (FWHM) und Restverspannungen charakterisiert. Nach Optimierung der Magnetfeldparameter und Einebnung der Form der s/l Phasengrenze worden EPD-Werte  $< 100 \text{ cm}^{-2}$  im Si-dotierten Kristallen gemessen. Diese EPD-Werte zeigen die Verbesserung der Qualität der unter optimierten Bedingungen gewachsenen Kristalle. In Kristallen mit stark konkaver Krümmung der Phasengrenze ( $z/R \sim 20 \%$ ) betrug die Versetzungsdichte dagegen bis ca.  $5000 \text{ cm}^{-2}$ . Das Niveau der Restverspannungen konnte von anfangs max. 1,6 MPa auf max. 0,8 MPa (gemessen im Konusbereich) signifikant reduziert werden. Durch Einebnung der Form der Phasengrenze zeigte die Kristalle auch eine verbesserte radiale Homogenität der Ladungsträgerkonzentration.

Nach Demonstration der generellen Wirkung des Wandermagnetfeldes bei der GaAs-VGF-Züchtung wurde der Fokus der Untersuchungen auf die Steigerung der Effizienz des Züch-

tungsprozesses gelegt. Hierbei wurden parallel drei Ansätze zur Prozessintensivierung verfolgt:

- ***simultane Kristallisation in mehreren Tiegeln***
- ***Vergrößerung der Kristalllänge / Einwaage***
- ***Erhöhung der Kristallisationsgeschwindigkeit***

Die parallele Bearbeitung verschiedener Ansätze zur Prozessintensivierung wurde entgegen der ursprünglichen Planung möglich, da die genutzte VGF-Anlage mit einem Heizer-Magnet-Modul-Aufbau für einen 4“-Tiegel, erhalten bleiben konnte. Es erfolgte die Nutzung einer weiteren am IKZ vorhandenen Züchtungsanlage, welche zusätzlich für die Erprobung eines modifizierten Multitiegel-HMM umgerüstet wurde. So konnten auch während der Umbauphase weitere Versuche an der bestehenden Eintiegel-Anlage durchgeführt werden. Diese Anlage wurde bis zum Projektende genutzt. Dies ermöglichte eine effektivere Bearbeitung der ganzheitlichen Thematik. Die Nutzung der alternativen Anlage bat weiterhin den Vorteil in der Multitiegelanordnung nicht nur, wie ursprünglich geplant, Kristalle mit einem geringen Durchmesser von 2“ zu züchten, sondern auch in der Multitiegelanordnung Kristalle mit einem industrierelevanten Durchmesser von 4“ herzustellen. Dadurch war eine sehr gute Vergleichbarkeit der Ergebnisse mit der Eintiegel-Anordnung möglich und die Ergebnisse bei Durchführung einer industrierelevanten Dimension.



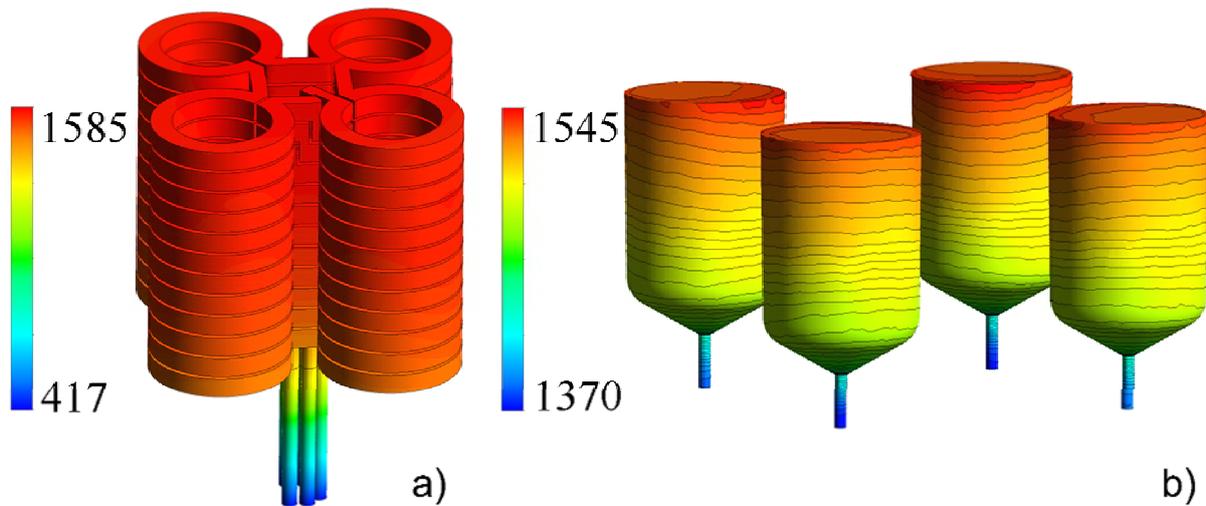
**Abb. 7:**Foto realisierter Multitiegel-Heizer-Magnet-Modulaufbau gefertigt aus Graphit für die Züchtung von 4 VGF-Kristallen mit einem Durchmesser von 4 Zoll

- ***simultane Kristallisation in mehreren Tiegeln***

In Abbildung 7 ist ein Foto des realisierten Aufbaus des Multitiegel-Heizer-Magnet-Moduls gezeigt. Der Aufbau ist für eine simultane Züchtung von bis zu 4 Kristallen mit einem Durchmesser von jeweils 4“ ausgelegt.

Die Konstruktion basiert auf kontinuierlich durchgeführten Simulationsrechnungen, Hierbei standen zwei grundlegenden Zielstellungen im Fokus, zum Einen die möglichst homogene

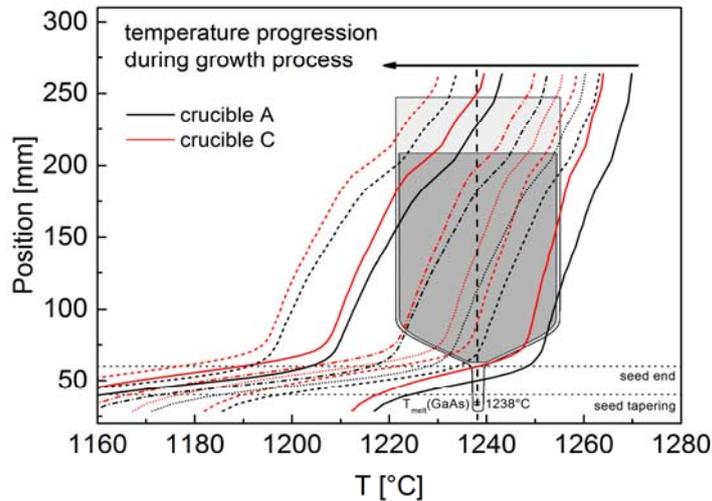
Temperaturverteilung in den einzelnen Tiegeln, sowie zum Anderen die Erzeugung möglichst identischer, homogen in den Tiegeln wirkender Lorentzkraftdichten. Basierend auf den Simulationsergebnissen sind spezielle Zuleitungen der Heizer konzipiert worden, die gezielt eine Überhitzung im Zentrum des Heizer-Magnet-Moduls vermeiden sollen. Das Patent zur Konstruktion und des Verfahrens des entwickelten Multitiegel-Heizer-Magnet-Modul-Aufbaus ist zwischenzeitlich erteilt worden. In Abbildung 8a ist ein Beispiel einer simulierten Temperaturfeldverteilung im Heizer inklusive Zuleitungen und in Abbildung 8b innerhalb der Tiegel dargestellt.



**Abb. 8:** Simulierte 3D-Temperaturverteilung a) im Heizer-Magnetmodul b) innerhalb der mit GaAs beschickten 4 Tiegel

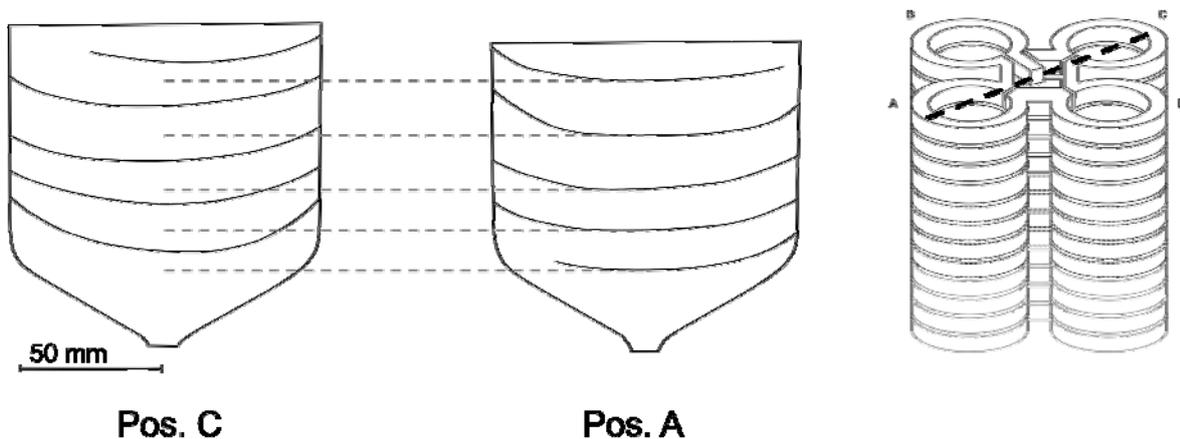
Es ist ersichtlich, dass die Temperaturverteilungen in allen vier Tiegeln vergleichbar sind. Nur noch geringfügige Asymmetrien sind in den einzelnen Schmelzen erkennbar. Diese weiter zu reduzieren, soll Gegenstand weiterführender Arbeiten sein. Innerhalb der Projektlaufzeit konnten keine weiteren Anpassungen an der Züchtungsanlage erfolgen, welche eine Reduktion der noch vorhandenen Asymmetrien in den Temperaturverteilungen zu reduzieren. Ein möglicher Ansatz zur Reduktion dieser noch erkennbaren Verkippungen im Temperaturfeld kann z.B. über Änderungen der vorhandenen Isolation erfolgen, hierzu wurden bereits Simulationen durchgeführt.

Zur exakten experimentellen Ermittlung der noch vorhandenen Unterschiede in den Temperaturverteilungen sind simultane Profilmessungen in zwei Tiegeln (Position A und C), analog den zuvor durchgeführten Messungen in der Eintiegel-Anordnung, durchgeführt worden. In Abbildung 9 ist das Ergebnis dargestellt. Daraus ist ersichtlich, dass der qualitative Verlauf der axialen Temperaturgradienten vergleichbar und ein nur kleiner Temperaturoffset vorhanden ist. Dieser kann mittels Anpassung der Höhen der Tiegelstützen ausgeglichen werden.



**Abb. 9:** Experimentell gemessene axiale Temperaturverteilungen in Graphitmodellkörpern in zwei Positionen der Tiegel (A und C) mit Multi-Heizer-Magnetmodul (siehe Abb. 7)

Zunächst wurden Züchtungsversuche in der Multitiegel-HMM-Anlage unter Nutzung eines mit GaAs bestückten Tiegels und drei in den Positionen des Tiegels eingebrachten Graphitmodellkörper durchgeführt. Bereits im zweiten Versuch konnte erfolgreich angekeimt und ein Einkristall gezüchtet werden, dies belegt auch die Präzession der vorab durchgeführten Simulationsrechnungen in Verbindung mit den experimentellen Profilmessungen in dieser neu konzipierten Anlage. Es konnte bereits bei Verwendung einer Tiegelfüllung gezeigt werden, dass die resultierende Phasengrenze keine stärkeren Asymmetrien aufweist, als in der Eintiegel-HMM-Anordnung. Es wurde dann dazu übergegangen simultan in zwei Tiegelpositionen zu kristallisieren. Hierbei sind zwei gegenüberliegenden Tiegelpositionen gewählt worden, die beiden verbleibenden Positionen wurden wiederum mit Graphitmodellkörpern in Dimension der Kristalle gefüllt. Abbildung 10 zeigt die an Kristalllängsschnitten ermittelten Phasengrenzformen dieser gezüchteten Kristalle in Bezug auf ihre Positionen (A und C) im HMM.



**Abb. 10:** Vergleich der durch TMF induzierten Markierungen der Form der s/l Phasengrenze an Kristalllängsschnitten zweier simultan in den Tiegelpositionen A und C gezüchteten Kristalle; sowie Skizze der Lage der Tiegelposition im HMM

Auch in der Multitiegelanordnung wurde die Position und Lage der Phasengrenzform mithilfe von TMF-Markern, wie bereits ausgeführt, dargestellt. Der örtliche Offset der Position der Isothermen beträgt ca. 1 cm und bestätigt das Ergebnis der durchgeführten Profilmessungen (siehe Abb. 9). Die TMF-Marker waren auch bei diesen Kristallen bereits durch äußere Betrachtung der Kristalle sichtbar, ein Bild dieser zwei Einkristalle ist in Abbildung 11 gezeigt.



**Abb. 11:** Foto zweier GaAs-VGF-Einkristalle, gezüchtet im Multitiegel-Heizer-Magnet-Modul, Durchmesser 4 Zoll

Die Kristalle wurden auch bezüglich ihrer Versetzungsdichte charakterisiert, diese betrug in den simultan gezüchteten Kristallen  $\sim 470\text{-}1000\text{ cm}^{-2}$  und war damit vergleichbar mit den Ergebnissen der Kristalle, die in der Eintiegel-HMM-Anlage gezüchtet wurden.

Es konnte anhand der bisher durchgeführten Versuche gezeigt werden, dass die Zielstellung: in einer Multitiegel-HMM-Anordnung eine nahezu symmetrische Verteilung an Temperatur- und Lorentzkraftdichtefeldern zu realisieren, erreicht wurde. Es konnten weiterhin Vorschläge zur weiteren Optimierung und Modifikation der Multi-Tiegel-HMM auf Basis der Auswertung der Versuche und Simulationen abgeleitet werden. Gegenwärtig wird versucht, auf Basis der vorliegenden Erfahrungen, weiterführende Projekte zu beantragen und weitere Forschungsarbeiten durchzuführen. Hierbei sind nicht nur die an der Multitiegel-HMM-Anlage gewonnenen Resultate von Bedeutung, sondern auch die kontinuierliche Weiterführung der Ansätze der Effizienzsteigerung in der Eintiegel-HMM-Anlage. Die Durchführung von Züchtungsversuchen unter Nutzung von zwei VGF-Anlagen führte dazu, dass nicht nur während der ursprünglich geplanten Umbauphasen (AP7) die Experimente fortgeführt werden konnten, sondern auch zusätzliche Fragestellungen wie der Ansatz der Erhöhung der Schmelzeinwaage und Versuche zur Erhöhung der Kristallisationsgeschwindigkeit unter Einsatz von Wandermagnetfeldern bearbeitet werden. Nachfolgend soll auf ausgewählte wesentliche Ergebnisse zu diesen Ansätzen eingegangen werden. Die in der Eintiegel-HMM gewonnenen Erfahrungen und Abhängigkeiten stehen auch für eine potentielle Übertragung auf die Multitiegel-Anordnung zur Verfügung, so dass durch Kombination der Ansätze zur Prozessintensivierung diese auch noch weiter steigern ließe.

- **Vergrößerung der Kristalllänge / Einwaage**

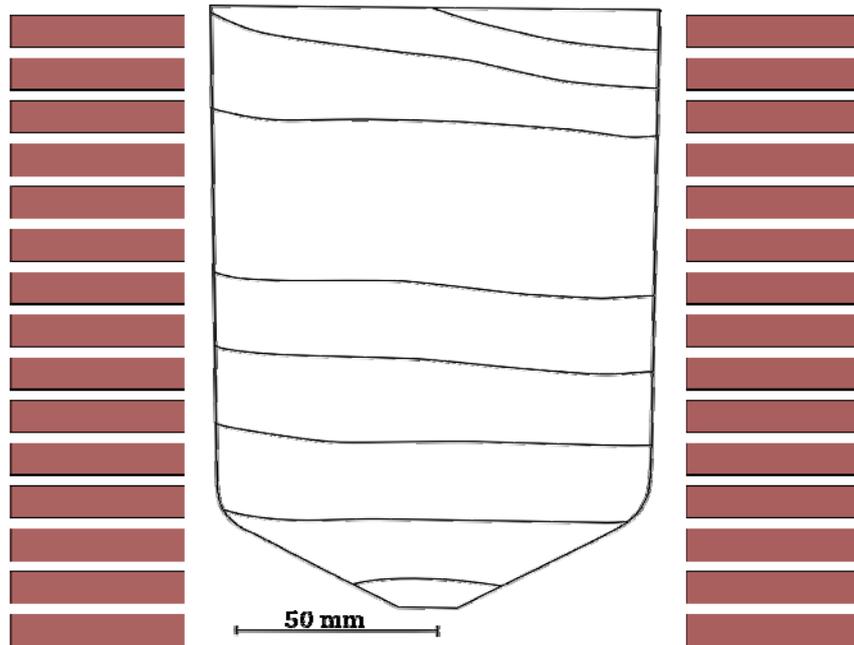
Die GaAs-Einwaagemenge wurde während der Projektlaufzeit an der Eintiegel-HMM-Anlage von zunächst 5 kg auf 7 kg bis auf final 9 kg gesteigert. Es konnte an einem Si-dotierten GaAs-Einkristall mit einem Einwaagegewicht von 9 kg demonstriert werden, dass auch bei Vergrößerung des Schmelzvolumens eine Beeinflussung der Schmelzkonvektion zur gezielten Formung der s/l Phasengrenzform realisierbar ist und unter Berücksichtigung aller optimierten Parameter eine weitere Einebnung der Phasengrenze möglich ist. So konnte auch hier der Nachweis der positiven Wirkung des TMF für GaAs erbracht werden. Die erzielten Kristallparameter sind mit Kristallen, die zuvor mit einer Einwaage von 7 kg gezüchtet wurden vergleichbar. Abbildung 12 zeigt den Einkristall mit einem Einwaagegewicht 9 kg.



**Abb. 12** : Foto GaAs-VGF-Einkristall, gezüchtet im Heizer-Magnet-Modul,  $d = 4''$ ,  $m = 9$  kg

Der Verlauf der Phasengrenze ist Abbildung 13 entnehmbar. In der Abbildung ist zur Illustration der Lage des Kristalls während der Kristallisation die Position des Heizer-Magnet-Moduls skizziert. Es ist ersichtlich, dass eine nahezu ebene Phasengrenze erreicht werden konnte, diese wird angestrebt und ist. Auch die Mikroinhomogenität war vergleichbar mit Kristallen, die unter TMF-Einfluss bei geringerer Einwaage gezüchtet wurden, der Kristall zeigte keine Wachstumsstreifen.

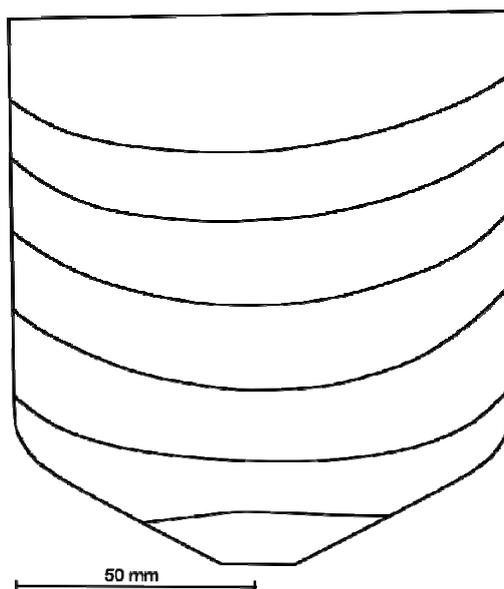
Die am Kristallende auftretende Asymmetrie ist dadurch bedingt, dass sich in dieser Position die Schmelzoberfläche schon oberhalb des Heizers befand und in diesem Bereich sowohl thermische als auch magnetische Asymmetrien vorhanden sind.



**Abb. 13:** s/l Phasengrenzform an Kristalllängsschnitt eines VGF-Kristalls, gezüchtet im HMM,  $m = 9 \text{ kg}$ ,  $d = 4''$

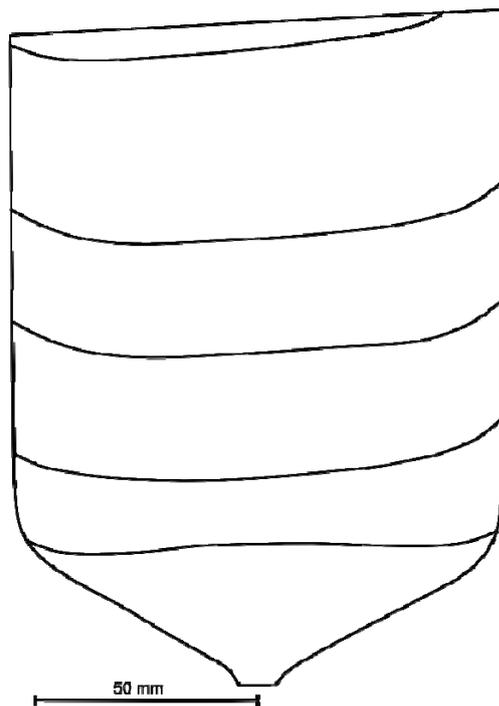
- ***Erhöhung der Kristallisationsgeschwindigkeit***

Es wurden insgesamt drei Versuche zur Erhöhung der Kristallisationsgeschwindigkeit durchgeführt. Als Referenz für diese Versuche diente ein Kristall mit einer Züchtungsgeschwindigkeit von 2-2,5 mm/h. Es ist zunächst ein Züchtungsversuch unter Beibehaltung der TMF-Parameter des Referenzversuches, mit einer Geschwindigkeit von 2-2,5 mm/h (siehe auch Abb. 13) erfolgt. Es wurde dabei eine Wachstumsgeschwindigkeit von 4-5 mm/h erreicht.



**Abb. 14:** s/l Phasengrenzform an Kristalllängsschnitt eines VGF-Kristalls, gezüchtet im HMM mit erhöhter Kristallisationsgeschwindigkeit  $v \sim 4-4,5 \text{ mm/h}$ : TMF analog  $v \sim 2-2,5 \text{ mm/h}$

Unter diesen Bedingungen, d.h. ohne Anpassung der Magnetfeldparameter, war das TMF zu schwach gewählt. Es konnte die Schmelzkonvektion nicht hinreichend beeinflussen, um die zusätzlich freiwerdenden Kristallisationswärme von der Phasengrenze abzutransportieren. Es trat eine extrem gekrümmte konkave Durchbiegung der s/l Phasengrenze auf. Der Kristall wuchs polykristallin, was auf die starke Durchbiegung zurückgeführt werden kann. Weiterhin zeigte sich, dass die erzeugten Lorentzkräfte nicht ausreichend waren, um die natürlichen Auftriebskräfte zu kompensieren. Es traten daher auch Wachstumsstreifen im Kristall auf, wie sie typischerweise ohne TMF-Einfluss beobachtet werden. Aus diesem Ergebnis wurde abgeleitet, dass die Magnetfeldstärke nicht nur dem Verlauf der Kristallisation, sondern auch der resultierenden Kristallisationsgeschwindigkeit anzupassen ist. In einem weiteren Versuch wurden die verwendeten TMF-Parameter verändert, so dass sie zu einer 50 Prozent höheren Lorentzkraftdichte führten. Der unter diesen Bedingungen gezüchtete Kristall wuchs einkristallin und zeigte auch reduzierte Wachstumsstreifen. Die konkave Krümmung der Phasengrenze war deutlich reduziert. Das Analyseergebnis der markierten Phasengrenze ist in Abbildung 15 zu sehen. Aus dem Abstand der Markierung wurde eine Kristallisationsgeschwindigkeit von 4,5-6 mm/h ermittelt, diese ist damit auf das ca. 2,5-fache der unter optimierten Bedingungen genutzten Züchtungsgeschwindigkeit erhöht worden. Hier wird ein deutliches Potential der Steigerung des GaAs-Züchtungsprozesses durch Anwendung des Wandermagnetfeldes gezeigt.



**Abb. 15:** s/l Phasengrenzform an Kristalllängsschnitt eines VGF-Kristalls, gezüchtet im HMM mit erhöhter Kristallisationsgeschwindigkeit  $v \sim 4,5-6$  mm/h: TMF um 50 % erhöht im Vergleich  $v \sim 2,5$  mm/h

Es wird davon ausgegangen, dass die durch weitere Erhöhung und Anpassung der Magnetfeldstärke die Durchbiegung der Phasengrenze noch weiter verringert werden kann. Weiterführende experimentelle Arbeiten waren jedoch aufgrund des Projektendes nicht mehr möglich, sollen aber Gegenstand neuer weiterführender Untersuchungen werden. In einer möglichen Erhöhung der Züchtungsgeschwindigkeit liegt ein großes Potential für die Effizienzsteigerung von Erstarrungsprozessen, wobei die Anwendung nicht nur auf GaAs beschränkt ist.

## Zusammenfassung der wesentlichen Projektergebnisse

Es konnte gezeigt werden:

- Positive Magnetfeldwirkung für die Züchtung von GaAs, insbesondere Reduzierung der Durchbiegung der s/l Phasengrenze
- Reduzierung der Mikroinhomogenität der Kristalle
- Züchtung 4“-Si-dotierter Kristalle hoher Qualität (EPD < 100 cm<sup>-2</sup>)
- Möglichkeit der Erhöhung der Kristalleinwaage unter Beibehaltung der Phasengrenzform, positiver Einfluss der Beeinflussung der Schmelzkonvektion auch bis zum Ende der Kristallisation
- Möglichkeit der Erhöhung der Züchtungsgeschwindigkeit, durch konvektiv bedingten Abtransport der Kristallisationswärme von der s/l Phasengrenze
- Entwicklung, Bau und Funktionsnachweis eines neuartigen Multitiegel-Heizer-Magnet-Moduls (4 Tiegel á 4“ Durchmesser), hierzu erfolgte während der Projektlaufzeit bereits eine Patenterteilung

Weiterführende Detailergebnisse sind den aufgeführten Publikationen und der im Rahmen des Projektes angefertigten Dissertationsschrift zu entnehmen.

Die Ergebnisse fanden breites Interesse bei Fachtagungen auf dem Gebiet der Kristallzucht. Dies spiegelt sich unter anderem auch in mehreren eingeladenen Vorträgen wieder. Im Anschluss an das Projekt erhielt das Institut bereits einen ersten Forschungsauftrag zur Züchtung einiger Kristalle unter Magnetfeldeinfluss.

Es wird weiterhin intensiv daran gearbeitet das erreichte Know-How zu sichern und im Rahmen von weiteren Projekten und Forschungsaufträgen fortzuführen.

Dr. Christiane Frank-Rotsch  
Projektleiterin