

# Epitaktisches Wachstum von Metall- und Oxidschichten

Vom Fachbereich Physik  
der Universität Hannover  
zur Erlangung des Grades

**Doktor der Naturwissenschaften**

Dr. rer. nat.

genehmigte Dissertation

von

**Dipl.-Phys. Hanno Goldbach**

geboren am 20.05.1971  
in Hannover, Niedersachsen

Hannover, 2001

Referent: Prof. Dr. J. Wollschläger  
Korreferent: Prof. Dr. H. Pfnür  
Tag der Promotion: 22. Juni. 2001

## Zusammenfassung

In dieser Arbeit wird die Homoepitaxie von Ni(100) und das Wachstum von NiO- und MgO-Schichten auf Ag(100)-Substraten untersucht.

Das Wachstum von Ni auf Ni(100) wurde erstmalig von tiefen Temperaturen bis zu Raumtemperaturen untersucht. Bei diesem Wachstum kommt es zur Ausbildung von Pyramiden. Das Verhalten der Pyramidenhöhe und -steigung mit der Bedeckung wurde mit der Profilanalyse der Beugung langsamer Elektronen (SPA-LEED) vermessen und die Exponenten für die Skalierungsgesetze bestimmt. Die in Theorie gebräuchlichen Größen sind die Pyramidenhöhe und -abstand. Der Pyramidenabstand wurde unter Annahme wohldefinierter Facetten aus Pyramidensteigung und -höhe ermittelt. Die Exponenten zeigen im Temperaturbereich von 150K bis 290K keine Temperaturabhängigkeit. Unter 200K steigen die Werte der Exponenten an. Die Untersuchung des Submonolagenbereiches zeigt eine starke Abhängigkeit der Inseldichten von der Temperatur. Hieraus konnte die Diffusionsenergie für Monomere zu  $E_m = 0.14\text{eV}$  bestimmt werden. Erstaunlicherweise ist kein Einfluß der Inseldichten auf das spätere Wachstumsverhalten festzustellen.

MgO auf Ag(100) wurde mit SPA-LEED, Raster-Tunnel-Mikroskopie (STM) und Oberflächen-Röntgen-Beugung (SXR) untersucht. Es konnte mit diesen Messungen die 2D-Struktur der Mosaik und Versetzungen geklärt werden. Die Anordnung der Mosaik ist quadratisch „schachbrettartig“. Es kommt zu einer Relaxation des Films, wobei die durch die Gitterfehlanspannung aufgebauten Verspannungen durch ein 2D-Netzwerk von Versetzungen abgebaut werden. Auszuschließen ist eine „wellblechartige“ Domänen-Struktur, wie sie durch 1D-Relaxation entsteht. Außerdem zeigt sich, daß Mosaik paarweise auftreten und Gräben bilden. Diese Gräben bilden ein regelmäßiges quadratisches Gitter. Desweiteren wurde der Temperaturbereich von 500K bis 700K vermessen. Es zeigt sich, daß die Kippwinkel der Mosaik nur bedeckungsabhängig nicht aber temperaturabhängig sind.

Die Verspannung bei NiO auf Ag(100) ist aufgrund der geringeren Gitterfehlanspannung von 2% kleiner als bei MgO. Dadurch können sich die auch schon bei MgO auf Ag(100) beobachteten Strukturen deutlicher ausbilden. Diese wurden mit SPA-LEED untersucht und zeigen in den Beugungsbildern sehr intensitätsstarke Satellitenreflexe. Da deren Intensität hoch ist, sind auch die schwächeren Satellitenreflexe höherer Ordnung in [10]-Richtung deutlich zu sehen. Der quadratische Charakter der Gesamtstruktur ist deutlich zu erkennen.

Stichwörter: Wachstum, Oxidschichten, Metallschichten

## Summary

In the work presented here the homoepitaxy of Ni(100) and the growth of NiO and MgO layers on Ag(100) were examined.

For the first time the growth of Ni on Ni(100) was studied from low to room temperature. Mounds develop during this growth. The dependence of mound height and slope on coverage was studied by profile analysis of low energy electron diffraction (SPA-LEED) and the critical exponents were determined. In theory, the commonly used values to characterize the mounds are height and distance. The mound distance is calculated from both mound slope and height assuming well defined facets. The critical exponents do not show any temperature dependence between 150K and 290K. Below 200K the values of the critical exponents increase. The investigation of the submonolayer regime shows a strong dependence of the island density on the temperature. The diffusion energy  $E_m = 0.14\text{eV}$  is determined from this. There is no influence of the island density on the growth behaviour.

The growth of MgO on Ag(100) was examined with SPA-LEED, scanning tunneling microscopy (STM) and surface x-ray diffraction (SXR). The 2D-structure of the mosaics and the dislocations could be determined with these measurements. The arrangement of the mosaics is „checkered“. The stress induced by the lattice mismatch is relieved by relaxation due to the 2D network of dislocations. A „corrugated iron“ domain-structure as induced by 1D-relaxation can be excluded. Furthermore, two mosaics combine to a trench like structure. These trenches form a regular rectangular pattern. Measurements were also performed in the temperature range from 500K to 700K. The angle of the mosaics depends rather on the coverage than on the temperature.

The strain of NiO films on Ag(100) is less than the strain of MgO films due to the smaller latticemismatch of 2%. Therefore the structures observed in MgO on Ag(100) are more distinct. These structures were investigated with SPA-LEED. They show spots with high intensity. The weaker higher order spots in the [10]-direction are visible due to the high intensity. The squarelike character of the whole structure can be observed easily.

Catchwords: growth, oxidefilms, metalfilms

## Abkürzungsverzeichnis

Abb.	Abbildung
AES	Auger-Elektronen-Spektroskopie
Ag	Silber
Ni	Nickel
Mg	Magnesium
MgO	Magnesiumoxid
NiO	Nickeloxid
EELS-LEED	Elektron Energy Loss Spectroscopy – LEED
Gl., Gln.	Gleichung(en)
Kap.	Kapitel
LEED	Low Energy Electron Diffraction
LDOS	local density of states
MBE	Molecular Beam Epitaxy
ML	Monolage
p.a.	pro analysis (für die Analyse)
REM	Reflection Elektron Microscopy
RT	Raum Temperatur ( $\approx 300\text{K}$ )
Si	Silizium
SG	Schrödinger Gleichung
SPA-LEED	Spot Profile Analysis – LEED
STM	Scanning Tunneling Microscopy
STS	Scanning Tunneling Spectroscopy
Tab.	Tabelle
UHV	Ultra Hoch Vakuum



# Inhaltsverzeichnis

Abkürzungsverzeichnis	V
<b>1 Theorie</b>	<b>3</b>
1.1 Wachstum	3
1.1.1 Submonolagenbereich	3
1.1.2 Kinetische Aufrauhung	6
1.1.3 Versetzungen in der Heteroepitaxie	8
1.2 SPA-LEED	9
1.2.1 Die kinematische Näherung	10
1.2.2 Streuphase	11
1.2.3 Schulter	12
1.2.4 Rauigkeitsanalyse	16
1.2.5 Mosaik	18
1.3 Oberflächenröntgenbeugung	19
1.4 Rastertunnelmikroskopie	21
1.4.1 Tunnelstrom zwischen planaren Metallelektroden	21
1.4.2 Tunneln an dünnen Isolatorschichten	24
<b>2 Experimenteller Aufbau</b>	<b>27</b>
2.1 SPA-LEED	29
2.2 Auger Elektronen Spektroskopie(AES)	29
2.3 Verdampfer	30
2.4 Massenspektrometer	31
2.5 Probenpräparation	31
<b>3 Ni(100) Homoepitaxie</b>	<b>33</b>
3.1 Messungen	33
3.2 Submonolagen-Bereich	34
3.3 Bedeckungs- und Temperaturabhängigkeit	38
3.4 Diskussion	43

<b>4</b>	<b>MgO/Ag(100)</b>	<b>47</b>
4.1	SPA-LEED Untersuchungen . . . . .	47
4.1.1	Messungen bei 500K . . . . .	47
4.1.2	Ergebnisse der Messungen bei 700K . . . . .	49
4.1.3	Auswirkung der Gitterfehlانpassung: Pseudomorphes Wachstum . . . . .	52
4.1.4	Vergleich mit Messungen im Temperaturbereich 200K- 500K . . . . .	55
4.2	XRD-Messungen . . . . .	57
4.2.1	Ergebnisse der XRD-Messungen . . . . .	58
4.2.2	Diskussion der SXRD-Messungen . . . . .	62
4.3	STM Messungen . . . . .	62
4.3.1	Die reine Ag-Oberfläche und Einflüsse der STM-Spitze	63
4.3.2	1/3ML MgO Ag(100) @700K . . . . .	65
4.3.3	1ML MgO Ag(100)@ 700K . . . . .	69
4.3.4	3ML MgO Ag(100) @700K . . . . .	70
4.3.5	13ML MgO Ag(100) @700K . . . . .	73
4.4	MgO auf verschiedenen fcc Substraten . . . . .	74
4.5	Zusammenfassung und Diskussion . . . . .	75
4.5.1	Modell . . . . .	80
<b>5</b>	<b>Simulation</b>	<b>83</b>
5.1	Modell und Art der Simulation . . . . .	83
5.2	Ergebnisse der Simulation . . . . .	84
5.2.1	Ein Mosaikwinkel . . . . .	85
5.2.2	Mehrere Mosaikwinkel . . . . .	90
<b>6</b>	<b>NiO/Ag(100)</b>	<b>93</b>
6.1	SPA-LEED Messungen . . . . .	93
6.1.1	10 ML NiO/Ag(100) bei Raumtemperatur . . . . .	93
6.1.2	10 ML NiO/Ag(100) @ 373K . . . . .	103
6.1.3	10 ML NiO/Ag(100) @ 393K . . . . .	106
6.1.4	13ML NiO/Ag(100) @423K . . . . .	109
6.1.5	6 ML NiO/Ag(100) @473K . . . . .	110
6.2	Zusammenfassung und Diskussion . . . . .	111
<b>7</b>	<b>Ausblick</b>	<b>119</b>

# Einleitung

Die rasante Entwicklung in der Halbleiterindustrie birgt für die Forschung Herausforderungen. Die Reduktion der Strukturgrößen auf heute einige 100 nm fordert von lithographischen Verfahren höchste Genauigkeit. In der „Roadmap for Semiconductors[1]“, dem Leitfaden der Halbleiterindustrie, wird für die nächsten Jahre eine weitere Reduktion der Strukturgrößen auf einige nm als Ziel proklamiert. Hierfür werden nicht nur neue und bessere Lithographieverfahren benötigt, auch die physikalischen Eigenschaften erfordern neue Vorgehensweisen. Durch die Ausdehnung halbleitender Strukturen auf nur noch einige nm ist die Zahl der Elektronen in diesen stark gesunken. Die Anzahl ist für einen Ladungstransport, wie er in elektronischen Bauelementen benötigt wird, nicht mehr ausreichend. Die Konsequenz ist das Ausweichen auf metallische Strukturen, die in diesen Größen eine genügend große Anzahl von Elektronen zu Verfügung stellen. Die Metalle sind im Gegensatz zum Silizium extrem teuer. Außerdem müssen für die Herstellung der leitenden Strukturen neue großtechnische Verfahren entwickelt werden. Bevor diese Verfahren entwickelt werden können, ist es notwendig in Experimenten das grundlegende Verhalten des Wachstums von Metallen zu studieren. Hierfür gibt es in der Forschung schon eine Reihe von Arbeiten die sich mit dem homoepitaktischen Wachstum von Metallen auseinandergesetzt haben [2, 3].

Da das Ziel die Fertigung von elektrischen Bauelementen ist, werden hierfür auch isolierende Schichten benötigt. Im Gegensatz zum Silizium, das durch einfache Oxidation eine isolierende Schicht erhält, ist es für Metalle notwendig auf andere isolierende Materialien auszuweichen. Außerdem werden an die isolierende Schicht mit einer Dicke von einigen atomaren Lagen höchste Ansprüche an das isolierende Verhalten und die kristalline Qualität gestellt.

In dieser Arbeit wird zuerst das homoepitaktische Wachstum von Ni(100) untersucht. Im Folgenden werden MgO-Schichten auf Ag(100) mit Hilfe von Röntgenbeugung SXRD, Tunnelmikroskopie STM und Profilanalyse der Beugung langsamer Elektronen charakterisiert. Hierbei ergänzen sich die auf-

---

geführten Meßmethoden. SPA-LEED liefert statistische Informationen über die Oberfläche, Rauigkeit, Inselgrößen und Defekte. Das Gegenstück dazu ist das STM. Es ist eine direkt abbildende Methode. SXRD dringt tiefer in den Kristall ein und liefert Informationen über das Interface Metall/Oxid. Das Wachstum und die Oberflächen-Morphologie von NiO auf Ag(100) wurden mit SPA-LEED charakterisiert.

MgO hat eine Bandlücke von 8 eV und ist somit ein ausgezeichneter Isolator. NiO hat eine Bandlücke von 4 eV und ist damit in seiner isolierenden Eigenschaft um einiges schlechter als MgO. Dafür hat NiO antiferromagnetische Eigenschaften die z.B. für die Herstellung von Giant Magnetic Resistance (GMR), die Verwendung in der Herstellung von Festplatten finden, von großem Interesse sind.

---

# Kapitel 1

## Theorie

Ziel der Physik ist es, Prozesse und Abläufe in der Natur möglichst exakt vorherzusagen. Daher ist es notwendig, die durch ein Experiment gewonnenen Daten mathematisch zu beschreiben, um damit Vorhersagen treffen zu können. Einerseits dienen Experimente dazu, neue physikalische Sachverhalte zu entdecken. Andererseits belegen oder widerlegen sie schon bekannte physikalische Zusammenhänge. Dieses führt dann zur Festigung, Änderung oder Erweiterung der bekannten physikalischen Gesetze.

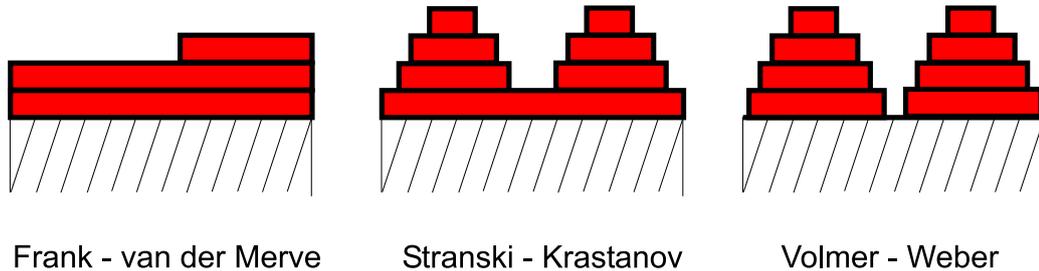
Im Folgenden werden die bekannten physikalischen Theorien zur Epitaxie in Grundzügen behandelt. Des weiteren werden die notwendigen Zusammenhänge zwischen Meßdaten (die mit den unterschiedlichen Meßmethoden für diese Arbeit gewonnen wurden) und physikalisch relevanten Größen zur Auswertung dargelegt.

### 1.1 Wachstum

#### 1.1.1 Submonolagenbereich

Je nach Substrattemperatur gibt es bei der Molekularstrahlepitaxie(MBE) verschiedene Ansätze, das Wachstum zu beschreiben. Bei hinreichend hohen Temperaturen ist das Aufstellen einer Energiebilanz der freien Grenzflächen- und Oberflächenenergie möglich, da sich das System annähernd im thermodynamischen Gleichgewicht befindet. Aus der Energiebilanz [4] ergeben sich dann die verschiedenen Wachstumsmodi (siehe Abb. 1.1):

- Frank - van der Merve -Wachstum ( Lage-für-Lage - Wachstum)



**Abb. 1.1:** Die drei Wachstumsmodi

- Volmer - Weber-Wachstum ( 3D-Insel - Wachstum)
- Stranski - Krastanov-Wachstum ( Benetzungslage + 3D-Insel- Wachstum)

Bei tieferen Temperaturen ist dieser Ansatz nicht mehr anwendbar, da sich das System nicht mehr nahe am thermodynamischen Gleichgewicht befindet. Es ist daher ein kinetischer Ansatz notwendig. Ein solcher Ansatz wird z.B. in der „mean - field“ Theorie gemacht. Für die grundlegenden atomaren Prozesse werden Ratengleichungen aufgestellt und die resultierenden Differentialgleichungen werden gelöst.

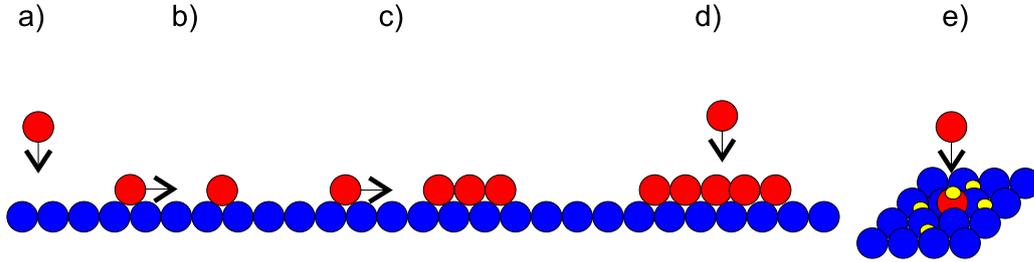
### Ratengleichung / Venables[5, 6, 7]

Wird von einem 2D-Wachstum mit kompletter Kondensation und dem Dimer als der kleinsten stabilen Insel ausgegangen, so wird das Wachstum von folgenden atomaren Prozessen bestimmt:

- Aufbringen eines Atoms auf die Oberfläche
- Diffusion eines Adatoms, bis
  - es mit einem anderen Adatom zusammenstößt und einen stabilen Dimer bildet (Keimbildung)
  - es an einen vorhandenen Keim stößt und von ihm eingebunden wird (Wachstum)
- Zusammenwachsen von Inseln (Koaleszenz)
- direkter Zusammenstoß: Adatome werden direkt auf einer Insel oder einem direkt benachbarten Platz aufgebracht

## 1.1. WACHSTUM

---



**Abb. 1.2:** unterschiedliche Anteile zur Monomerdichte  $n_1$  a) Aufdampftrate  $R$  b) Dimerbildung c) Anlagerung an Inseln d) Auftreffen auf Inseln e) Auftreffen auf einem Monomer

Die Ratengleichungen für die Monomerdichte  $n_1$  und die Dichte der stabilen Cluster  $n_x$  ergeben sich unter diesen Bedingungen zu:

$$\frac{dn_1}{dt} = R - 2D\sigma_1 n_1^2 - D\sigma_x n_1 n_x - R(Rt - n_1) - 10Rn_1 \quad (1.1)$$

$$\frac{dn_x}{dt} = D\sigma_1 n_1^2 - 5Rn_1 - U_c \quad (1.2)$$

Hierbei ergeben sich die einzelnen Terme aus folgenden Überlegungen, s. (Abb. 1.2): Die Monomerdichte steigt linear mit der Aufdampftrate  $R$ . Sie wird durch:

- das Zusammenstoßen zweier Atome die einen Dimer bilden (Keimbildung, 2. Term Gl. 1.1)
- den Einbau von Monomeren in vorhandene Cluster (Wachstum 3. Term)
- durch direkten Einbau von Atomen in Clustern (4. Term)
- direkter Erzeugung eines Dimeres mit einem Atom und einem Monomer (5. Term)

reduziert. Die letzten beide Terme sind eine Ergänzung von Nedelmann[8] zu Venables[5, 6, 7] Im letzten Term der Gl. 1.1 ist ein quadratisches Gitter vorausgesetzt. Der Faktor 10 setzt sich aus den 5 Möglichkeiten, die jeweils zwei Monomere vernichten einer direkten Dimerbildung eines auftreffenden Atoms mit einem Monomer zusammen : direktes Auftreffen auf den Monomer und vier Auftreffmöglichkeiten auf einem Nächstennachbarplatz. Im 4. Term der Gl. 1.1 wird das Auftreffen auf Nachbarplätzen der Inseln vernachlässigt.  $\sigma_1$  und  $\sigma_x$  sind Wirkungsquerschnitte für den Einfang von Adatomen.

## KAPITEL 1. THEORIE

---

Die Dichte der stabilen Inseln wird durch Dimerbildung diffundierender Adatome (1. Term Gl. 1.2) und durch direkte Dimerbildung (2. Term) erhöht. Koaleszenz  $U_c$  reduziert die Dichte der stabilen Inseln. Für kleine Inseln läßt sich der Koaleszenzterm durch

$$U_c = 2n_x \frac{dZ}{dT} = 2n_x \left( -\frac{dn_1}{dt} + R \right) \quad (1.3)$$

darstellen. Es handelt sich hierbei um eine von Venables empirisch gefundene Formel.  $Z$  ist der Anteil der Oberfläche, der mit stabilen Inseln bedeckt ist.

Im oben beschriebenen Fall ist die Größe des kritischen Keims  $i = 1$ . Wird zum kritischen Keim ein Atom hinzugefügt ist der Keim stabil. Die kritische Keimgröße eins ist ein Spezialfall. Kritische Keime können durchaus größer sein, in diesem Fall müssen auch Ratengleichung für Dimere, Trimere, . . . usw. bis zur stabilen Inselgröße aufstellt werden.

Die Lösung der Differentialgleichung für die stabile Inseldichte ist:

$$n_x \propto \left( \frac{4R}{\nu_0} \right)^{\frac{i}{i+2}} \exp \left( \frac{iE_m + E_i}{(i+2)kT_1} \right) \quad (1.4)$$

Hierbei ist  $E_m$  die Diffusionsenergie und  $E_i$  die Bindungsenergie zwischen Atomen in Clustern.  $\nu_0$  ist die Versuchsfrequenz. Dieser auf analytischem Wege gefundene Zusammenhang wird auch durch Monte-Carlo-Simulationen bestätigt [9].

Aus der Vermessung der Inseldichte über der Temperatur lassen sich also Diffusionsenergie und kritische Keimgröße ermitteln.

### 1.1.2 Kinetische Aufrauhung

Die im vorangegangenen Abschnitt skizzierte Theorie ist für die Beschreibung des Submonolagenbereiches gut geeignet, d.h. für die Keimbildung und das Inselwachstum in der 1. Lage. Für das Verhalten der weiteren Lagen und eine mögliche Aufrauhung der Oberfläche ist sie nicht ausreichend.

Die im letzten Abschnitt durchgeführten Betrachtungen können für eine qualitative Erklärung des Aufrauhs der Oberfläche benutzt werden. Wenn die Diffusionslängen der Adatome hinreichend klein sind, kann es zu einer Keimbildung in höheren Lagen kommen. Hierzu müssen viele Atome auf Inseln auftreffen, das heißt die Rate muß hoch und die mit Inseln bedeckte Fläche groß sein. Der konkurrierende Prozeß ist die Diffusion von Adatomen über die

## 1.1. WACHSTUM

---

Stufenkante in tiefere Lagen und die Diffusion zu Stufenkanten und Anlagerung an diese. Sind die Diffusionslängen groß, so werden sehr viele Adatome zu Stufenkanten oder in tiefere Lagen diffundieren und sich dort anlagern (Lage-für-Lage-Wachstum bzw. Step-Flow-Wachstum). Findet nur geringe Diffusion statt, so führt dieses zu einer starken Aufrauung der Oberfläche (statistisches Wachstum). Wie erwähnt kommt es bei geringer Diffusion bevorzugt zu Bildung von Inseln auf Inseln (3D-Wachstum).

Die bei Metallen gut bekannte Ehrlich-Schwoebel-Barriere(ESB) [2] an Stufenkanten führt während des Wachstums dazu, daß die Diffusion in niedrigere Lagen erschwert wird und damit die Keimbildung in höheren Lagen vermehrt auftritt [10]. Die Folge ist eine Aufrauung der Oberfläche, z.B. durch Entstehung von pyramidenförmigen Inseln. Die Form der entstehenden Pyramiden und die Änderung dieser mit zunehmender Bedeckung  $\Theta$  wird stark durch die Größe der ESB beeinflusst. Die Oberflächenmorphologie läßt sich durch den mittleren Pyramidenabstand  $L$  und die mittlere Pyramidenhöhe  $h$  charakterisieren. Die Änderung dieser Größen mit der Bedeckung folgen Skalierungsgesetzen:[2]

$$\text{Pyramidenhöhe} : w \propto h \propto \Theta^\beta \quad (1.5)$$

$$\text{Pyramidenabstand} : L \propto \Theta^n \quad (1.6)$$

Hierbei bezeichnet  $w$  die RMS-Rauhigkeit, die gegeben ist durch

$$w = \sqrt{\langle h^2 \rangle - \langle h \rangle^2}$$

Die Exponenten  $\beta$  und  $n$  charakterisieren die Entwicklung der entsprechenden Größen. Theoretische Arbeiten auf der Basis von Kontinuumsmodellen sagen für Pyramidenabstände einen Exponenten  $n = \frac{1}{4}$  und für die Pyramidenhöhe einen Exponenten von  $\beta = \frac{1}{4}$  voraus[11, 12].

Für ein Lage-für-Lage-Wachstum oszilliert die RMS-Rauhigkeit. Daher ist der Exponent  $\beta = 0$ . Im anderen Extremfall eines statistischen Wachstums ergibt sich  $\beta = \frac{1}{2}$ .

Anhand der Exponenten, also dem Wachstumsverhalten der Pyramiden, ist es möglich, Aussagen über die Höhe der ESB zu gewinnen.

- Ist  $\beta > n$  (z.B. im Extremfall eines konstanten Pyramidenabstandes  $n = 0$ ), so ist die ESB groß gegen die Diffusionsenergie. Die vertikale Rauigkeit wächst stärker als die Pyramidenabstände, so daß die Pyramidenfacetten im Laufe des Wachstums steiler werden.

- Ist  $\beta = n$  also  $L \sim w$ , so liegt die ESB in der Größe der Diffusionsenergie. Hier nimmt die Rauigkeit im gleichen Maße zu. Daher bleibt die Steigung der Pyramidenfacetten konstant. Der Grund hierfür liegt in den Strömen zu den Stufenkanten. In diesem Fall ist der Strom der Atome von den oberen Terrassen gleich dem Strom von der unteren Terrasse.
- Ist  $\beta < n$ , ist die ESB klein gegenüber der Diffusionsenergie. Die laterale Ausdehnung der Pyramiden wächst dann schneller als die vertikale. Die Oberfläche bleibt demnach (relativ) glatt.

### 1.1.3 Versetzungen in der Heteroepitaxie

Bisher unberücksichtigt ist die Gitterfehlpassung (engl.: misfit), also der Unterschied der Gitterkonstanten, die im Fall der Heteroepitaxie auftritt. Bisher wurde der Einfluß von der Oberflächenenergie, der Diffusion und der ES-Barriere diskutiert. Die folgenden Betrachtungen lehnen sich im wesentlichen an die Betrachtungen von Ibach an.[13]

Die Gitterfehlpassung  $m$  ist durch

$$m = \frac{b - a}{\frac{1}{2}(a + b)} \quad (1.7)$$

gegeben. Daraus ergibt sich beispielsweise für das System MgO/Ag mit den Gitterkonstanten  $d_{Ag} = 4.09\text{\AA}$  und  $d_{MgO} = 4.21\text{\AA}$  eine Gitterfehlpassung von  $m = 2.9\%$ .

Wenn die Bindung zwischen Adsorbat und Substrat hinreichend groß ist, bildet das Adsorbat zunächst einen pseudomorph verspannten Film. D.h., daß der Film die Gitterkonstante des Substrates annimmt. Für die dadurch verursachte Verspannung des Filmes wird eine gewisse Energie benötigt. Diese Verspannungsenergie  $\Delta H_{\text{elastisch}}$  ergibt sich aus

$$\Delta H_{\text{elastisch}} = -\frac{E_f}{1 - \nu_f} m^2 \propto m^2, \quad (1.8)$$

wobei  $E_f$  das Youngsche Modul des Films und  $\nu_f$  die Poisson-Zahl des Films ist.

Wenn die Verspannungsenergie einen bestimmten Wert übersteigt, dann ist es energetisch günstiger, Versetzungen in den Film einzubauen. Die Energie  $\Delta H_{\text{Versetzungen}}$  der Versetzung ist durch

$$\Delta H_{\text{Versetzungen}} = \frac{Cb}{\pi} \left( \ln \left( \frac{t}{b} \right) + 1 \right) |m| \propto b|m| \quad (1.9)$$

## 1.2. SPA-LEED

---

gegeben. Dabei ist  $b$  der Burgersvektor,  $t$  die Filmdicke und  $C$  der effektive Schermodul.

In einer Energiebilanz müssen noch die freie Oberflächenenergie  $\gamma$  des Films und der Oberflächenstress  $\sigma^s$  berücksichtigt werden:

$$\Delta H_{\text{Oberfläche}} = 2(\sigma^s - \gamma) m \quad (1.10)$$

Die Gesamtenergie ergibt sich demnach zu

$$\Delta H = \Delta H_{\text{elastisch}} + \Delta H_{\text{Versetzungen}} + \Delta H_{\text{Oberfläche}} \cdot \quad (1.11)$$

Bei genauer Kenntnis der Konstanten lassen sich aus obiger Gleichung die Zahl der Versetzungen und die Stärke der Verspannung angeben.

Eine Abschätzung für die kritische Schichtdicke  $h_c$  des Films, bei deren überschreiten Versetzungen eingebaut werden, bzw. bis zu der der Film pseudomorph wächst, ist durch

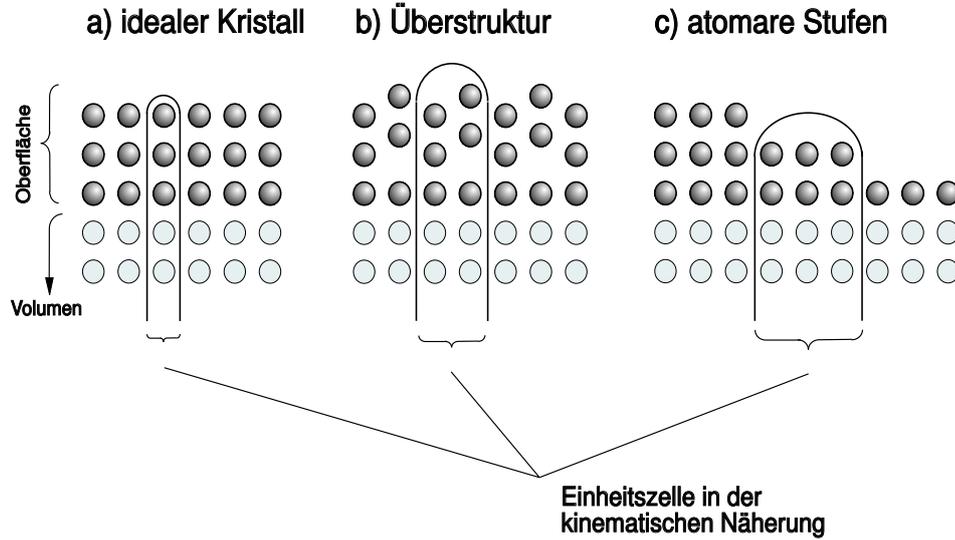
$$h_c \simeq \frac{1}{2} \frac{ab}{b-a} \quad (1.12)$$

gegeben. Daraus ergeben sich z.B. folgende kritische Schichtdicken  $h_c$ :

$$\begin{aligned} m < 3\% &\rightarrow h_c \geq 10 \text{ Atomlagen} \\ m \simeq 10\% &\rightarrow \text{Versetzungen in der ersten Lage} \end{aligned}$$

## 1.2 SPA-LEED

Zur Untersuchung der oben beschriebenen Wachstumsprozesse wird in dieser Arbeit hauptsächlich die hochaufgelöste Elektronenbeugung (Spot-Profile Analysis Low-Energy Electron Diffraction, SPA-LEED) verwendet. Die Beugung langsamer Elektronen wird schon seit vielen Jahrzehnten erfolgreich zur Analyse der Struktur von Kristalloberflächen und auf ihnen gewachsenen Schichten benutzt. Ein LEED arbeitet mit Elektronen im Energiebereich von 20 bis 250 eV. In diesem Energiebereich besitzen die Elektronen eine Eindringtiefe zwischen 3 und 10 Å.[14] Daraus ergibt sich die extreme Oberflächenempfindlichkeit dieser Meßmethode. Mit Hilfe der dynamischen LEED-Theorie können LEED-Bilder, auch unter Berücksichtigung von Mehrfachstreuung, exakt berechnet werden. Diese Methode ist aber äußerst rechenintensiv und es lassen sich ausschließlich Strukturen bis zu einer Größe von ca. 100×100 Atomen berechnen.



**Abb. 1.3:** Kinematischen Näherung. Durch Bildung von Einheitszellen, die eine Gruppe von Atomen repräsentieren, wird die Berechnung vereinfacht, da für die neuen Einheitszellen ein Formfaktor angenommen wird.

### 1.2.1 Die kinematische Näherung

Zur Vereinfachung der Rechnungen wird häufig die kinematische Näherung verwendet. Dabei wird die Oberfläche in Zellen, die in das Volumen hinreichen, aufgeteilt (s. Abb. 1.3). Jeder dieser Zellen wird ein Formfaktor zugeordnet, der das Streuverhalten aller Atome in der Zelle repräsentiert. Wie in der Fraunhoferschen Beugungstheorie wird das Elektron durch eine ebene Welle beschrieben, da der Abstand zwischen der Elektronenquelle und der Oberfläche, bzw. zwischen der Oberfläche und dem Detektor, groß gegenüber den atomaren Abständen auf der Oberfläche ist. Wenn  $r_{\vec{n}}$  die Position der  $\vec{n}$ -ten Einheitszelle,  $\vec{k}_i$  der einfallende und  $\vec{k}_f$  der ausfallende Wellenvektor ist, so ergibt sich folgender Ausdruck für die Wellenfunktion  $\Psi$  des gestreuten Elektrons:

$$\Psi(\vec{K}, \vec{k}_i) = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{\vec{n}} \Psi_{\vec{n}}(\vec{K}, \vec{k}_i) \exp(i\vec{K}r_{\vec{n}}) . \quad (1.13)$$

Hierbei ist  $\vec{K} = \vec{k}_f - \vec{k}_i$  der Streuvektor. Die Streuamplitude  $\Psi_{\vec{n}}$  der  $\vec{n}$ -ten Einheitszelle  $\varepsilon(\vec{n})$  ist durch

$$\Psi_{\vec{n}}(\vec{K}, \vec{k}_i) = \sum_{\vec{v} \in \varepsilon(\vec{n})} f_{\vec{v}}(\vec{K}, \vec{k}_i) \exp(i\vec{K}e_{\vec{v}}) \quad (1.14)$$

## 1.2. SPA-LEED

---

gegeben.

Dem Experiment ist nur die Intensität  $I$  zugänglich:

$$\begin{aligned}
 I(\vec{K}, \vec{k}_i) &= \left| \Psi(\vec{K}, \vec{k}_i) \right|^2 \\
 &= \left| \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{\vec{n}} \sum_{\vec{\nu} \in \varepsilon(\vec{n})} f_{\vec{\nu}}(\vec{K}, \vec{k}_i) \exp(i\vec{K}\vec{e}_{\vec{\nu}}) \exp(i\vec{K}\vec{r}_{\vec{n}}) \right|^2.
 \end{aligned} \tag{1.15}$$

Das Rückstreuverhalten einzelner Zellen wurde bis hierher noch berücksichtigt. Die Verwendung der kinematischen Näherung führt dazu, daß alle  $\Psi_{\vec{n}}$  gleich gesetzt werden. Dadurch separiert Gleichung 1.15 in den Form-  $F$  und den Gitterfaktor  $G$ :

$$\begin{aligned}
 I(\vec{K}, \vec{k}_i) &= \left| \sum_{\vec{\nu} \in \varepsilon(\vec{n})} f_{\vec{\nu}}(\vec{K}, \vec{k}_i) \exp(i\vec{K}\vec{e}_{\vec{\nu}}) \right|^2 \cdot \left| \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{\vec{n}} \exp(i\vec{K}\vec{r}_{\vec{n}}) \right|^2 \\
 &= F(\vec{K}, \vec{k}_i) \cdot G(\vec{K}).
 \end{aligned} \tag{1.16}$$

Da der Formfaktor  $F$  stark vom Betrag  $|\vec{K}| \propto \sqrt{E}$ , aber nur schwach von  $\vec{K}_{\parallel}$  abhängt, läßt sich Gl. 1.16 auch durch

$$I = F(E) \cdot G(\vec{K}) \tag{1.17}$$

approximieren. In Gl. 1.17 werden die dynamischen Effekte, also die Energieabhängigkeit der gebeugten Intensität, durch den Formfaktor  $F$  beschrieben. Die Form der Reflexprofile, die durch die Abhängigkeit der Intensität von der zur Oberfläche parallelen Komponente  $\vec{K}_{\parallel}$  des Streuvektors gegeben ist, wird hingegen durch den Gitterfaktor  $G$  beschrieben. Für die Profilanalyse ist also der Gitterfaktor entscheidend.

### 1.2.2 Streuphase

Ein häufig bei der Profilanalyse an Stelle der Energie verwendeter Begriff ist die Streuphase  $S$ . Die Streuphase ist ein Maß für den Gangunterschied zwischen an verschiedenen Bereichen der Oberfläche gestreuten Wellenzügen. Sie gibt an, ob konstruktive oder destruktive Interferenz stattfindet. Zwischen dem Gangunterschied  $g = 2d \cos \theta$  zweier Elektronen-Teilwellen, die von zwei

## KAPITEL 1. THEORIE

---

Terrassen mit dem Höhenunterschied  $d$  (Stufenhöhe) gestreut werden und der Streuphase  $S$  gilt die folgende Beziehung:

$$S := \frac{g}{\lambda} \quad (1.18)$$

Die Wellenlänge  $\lambda$  der Elektronenergie gibt sich damit zu

$$\lambda = \frac{2d \cos \Theta}{S} . \quad (1.19)$$

Mit der folgenden Definition für den Betrag des Wellenvektors  $\vec{K}$

$$|\vec{K}| = \frac{2\pi}{\lambda} , \quad (1.20)$$

ergibt sich die zur Oberfläche senkrechte Komponente von  $\vec{K}$  zu

$$\begin{aligned} K_{\perp} &= 2 |\vec{K}| \cos \Theta = \frac{4\pi \cos \Theta}{\lambda} \\ &= \frac{2\pi S}{d} . \end{aligned} \quad (1.21)$$

Für den Zusammenhang zwischen Streuphase und Elektronenenergie folgt demnach

$$E = \frac{\hbar^2 \vec{K}^2}{2m_e} = \frac{\hbar^2}{2m_e} \frac{\pi^2 S^2}{d^2 \cos^2(\theta)} \quad (1.22)$$

$$= 37.6 \frac{S^2}{d^2 [\text{\AA}] \cos^2(\theta)} . \quad (1.23)$$

Die Energie  $E$  der Elektronen ist also proportional zum Quadrat der Streuphase  $S$ .

### 1.2.3 Schulter

Der Gitterfaktor ist für ein beliebiges N-Level System formal geschlossen lösbar. Verbreiterungen der Profile werden durch Domänen mit unterschiedlichen Formfaktoren hervorgerufen. Diese Domänen können z.B. Inseln, Stufen, heteroepitaktische Schichten, Überstrukturen, etc. sein.

Für ein Zwei-Schicht-System, bei dem zwei Arten von Domänen mit den Streuamplituden  $f_A, f_B$  und den Terrassenbreitenverteilungen  $P_A(\Gamma), P_B(\Gamma)$

## 1.2. SPA-LEED

---

immer abwechselnd auftreten, ist die Intensität der Schulter durch

$$I_{\text{Sch}}(K_{\parallel} \neq 0) = \frac{|\Delta f|}{2(1 - \cos(aK_{\parallel}))} \left\{ \frac{(1 - \alpha)(1 - \beta)}{1 - \alpha\beta} + c.c. \right\} \quad (1.24)$$

$$\text{mit } \alpha = \langle e^{iaK_{\parallel}\Gamma_A} \rangle_{\Gamma_A} = \sum_{\Gamma_A} P_A(\Gamma_A) e^{iaK_{\parallel}\Gamma_A} \quad (1.25)$$

$$\beta = \langle e^{iaK_{\parallel}\Gamma_B} \rangle_{\Gamma_B} = \sum_{\Gamma_B} P_B(\Gamma_B) e^{iaK_{\parallel}\Gamma_B} \quad (1.26)$$

$$\Delta f = f_B - f_A \quad (1.27)$$

gegeben.

Im folgenden wird anhand von zwei Beispielen gezeigt, daß das Einsetzen von konkreten Verteilungen der Terrassenbreiten in 1.24 zu bestimmten Profilverformen führt.

### Geometrische Verteilung

Ein einfaches Beispiel für eine Terrassenbreitenverteilung  $P(\Gamma)$  ist eine geometrische Verteilung mit der Dichte

$$P(\Gamma) = N e^{-\frac{\Gamma}{\langle \Gamma \rangle}} . \quad (1.28)$$

Mit dieser Verteilung ergibt sich für  $I_{\text{Sch}}$  aus Gl. 1.24 folgendes Beugungsprofil:

$$I_{\text{Sch}}(K_{\parallel}) \propto \frac{1}{\kappa^2 + (aK_{\parallel})^2} \quad (1.29)$$

$$\text{mit } \kappa = \frac{1}{\langle \Gamma_A \rangle} + \frac{1}{\langle \Gamma_B \rangle},$$

wobei  $\langle \Gamma_A \rangle$  und  $\langle \Gamma_B \rangle$  die mittleren Terrassenlängen der Domänen sind. Das Intensitätsprofil hat somit eine Lorentzform. Die Halbwertsbreite dieses Profils ist:

$$a\Delta K_{\parallel} = 2\kappa = \frac{2}{\langle \Gamma_A \rangle} + \frac{2}{\langle \Gamma_B \rangle}, \quad (1.30)$$

oder wie im Experiment gebräuchlich in % BZ ausgedrückt:

$$\Delta K_{\parallel}[\%BZ] = \frac{\kappa}{\pi} \cdot 100\% = \frac{100\%}{\pi} \left( \frac{1}{\langle \Gamma_A \rangle} + \frac{1}{\langle \Gamma_B \rangle} \right) . \quad (1.31)$$

## KAPITEL 1. THEORIE

---

Die Halbwertsbreite wird demnach durch die Summe der Kehrwerte der mittleren Terrassenbreiten bestimmt. Hierbei dominiert die kleinere Terrassenbreite die Größe der Halbwertsbreite. Ist die Bedeckung  $\Theta$  bekannt, so ist es möglich, auf die mittlere Terrassenbreite einer der beiden Domänen zu schließen. Für kleine Bedeckungen, also Inseln mit großen Abständen, gibt die Halbwertsbreite der Schulter Auskunft über die mittlere Inselgröße. Bei großen Bedeckungen, also Inseln mit kleinem Abstand, ergibt die Halbwertsbreite den mittleren Inselabstand bzw. mittlere Terrassenlänge. Für das Verhältnis der mittleren Terrassenbreiten gilt:

$$\frac{\langle \Gamma_A \rangle}{\langle \Gamma_B \rangle} = \frac{p_A}{p_B} = \frac{\Theta_A}{1 - \Theta_A} . \quad (1.32)$$

Hierbei sind  $p_A$  und  $p_B$  die sichtbaren Bedeckungen. Aus Gl. 1.32 läßt sich nun bei bekannter Bedeckung auch die jeweils andere mittlere Terrassenbreite ermitteln.

Für den zweidimensionalen Fall geht Gl. 1.29, eine isotrope Terrassenverteilung vorausgesetzt, über in

$$I_{\text{Sch}}(K_{\parallel}) \propto \frac{1}{[\kappa^2 + (aK_{\parallel})^2]^{\frac{3}{2}}} \quad (1.33)$$

mit  $\kappa = \frac{1}{\langle \Gamma_A \rangle} + \frac{1}{\langle \Gamma_B \rangle}$

Die Halbwertsbreite ist dann durch

$$a\Delta K_{\parallel} = 2\kappa\sqrt{2^{\frac{3}{2}} - 1} = 2\sqrt{2^{\frac{3}{2}} - 1} \left( \frac{1}{\langle \Gamma_A \rangle} + \frac{1}{\langle \Gamma_B \rangle} \right) \quad (1.34)$$

gegeben.

Sind beide mittlere Terrassenlängen gleich, wie es z.B. bei einer Bedeckung von 0,5 der Fall ist (s. Gl. 1.32), so läßt sich Gl. 1.34 weiter vereinfachen:

$$a\Delta K_{\parallel} = \frac{4\sqrt{2^{\frac{3}{2}} - 1}}{\langle \Gamma \rangle} , \quad (1.35)$$

wobei sich die mittlere Terrassenbreite zu

$$\langle \Gamma \rangle = \frac{2\sqrt{2^{\frac{3}{2}} - 1}}{\pi a\Delta K_{\parallel}} \cdot 100\% \sim \frac{0.49 \cdot 100\%}{\Delta K_{\parallel}} \quad (1.36)$$

ergibt.

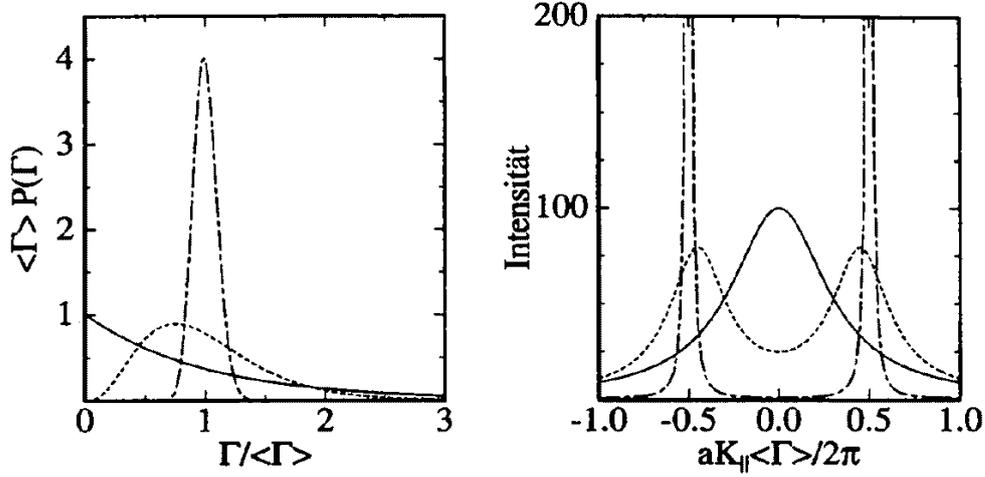


Abb. 1.4: Gammaverteilung für verschieden Varianzen [15]

### Gammaverteilung

Bei einer weiteren, häufig auftretende Terrassenbreitenverteilung, tritt eine Terrassenbreite besonders häufig auf. Eine solche Verteilung ist z.B. durch eine Gammaverteilung mit einer Dichte

$$P(\Gamma) \sim \Gamma^{\mu} e^{-\lambda \Gamma} \quad (1.37)$$

beschreibbar. Freie Parameter dieser Verteilung sind die mittlere Terrassenlänge  $\langle \Gamma \rangle$  und die Varianz (die Schärfe der Verteilung)  $\sigma^2 = \langle \Gamma^2 \rangle - \langle \Gamma \rangle^2$ .

Die mittlere Terrassenlänge  $\langle \Gamma \rangle$  und deren Standardabweichung  $\sigma$  sind mit den Parametern  $\mu$  und  $\Gamma$  folgendermaßen verknüpft:

$$\langle \Gamma \rangle = \frac{\mu}{\lambda} \quad ; \quad \sigma = \frac{\sqrt{\mu}}{\lambda} \quad \text{bzw.} \quad \lambda = \frac{\langle \Gamma \rangle}{\sigma^2} \quad ; \quad \mu = \frac{\langle \Gamma \rangle^2}{\sigma^2} . \quad (1.38)$$

Das Einsetzen der Fouriertransformierten  $\alpha$

$$\alpha(K_{\parallel}) = \int_0^{\infty} d\Gamma P(\Gamma) e^{iaK_{\parallel}\Gamma} = \frac{e^{i\mu \arctan\left(\frac{aK_{\parallel}}{\lambda}\right)}}{\left(1 + \frac{(aK_{\parallel})^2}{\lambda^2}\right)^{\frac{\mu}{2}}} \quad (1.39)$$

der Gammaverteilung in Gl. 1.24 führt zu Beugungsprofilen, wie sie in Abb. 1.4 zu sehen sind.

Die in Abb. 1.4 gezeigten Reflexprofile lassen sich durch eine „Ringlorenzfunktion“, die aus der Summe zweier Lorentzfunktionen, die vom Zentrum gleichermaßen nach links und rechts verschoben sind, beschreiben:

$$I_{\text{Sch}}(K_{\parallel}) \sim \frac{1}{\bar{\Gamma}^2 + (K_{\parallel} - \delta)^2} + \frac{1}{\bar{\Gamma}^2 + (K_{\parallel} + \delta)^2}. \quad (1.40)$$

Thielking zeigte in [16], daß zwischen der Position  $\delta$  der Lorentzfunktionen und der mittleren Terrassenlänge  $\bar{\Gamma}$  folgender Zusammenhang besteht:

$$\frac{1}{\delta} \sim \bar{\Gamma}. \quad (1.41)$$

Die Standardabweichung der Gammaverteilung  $\sigma$  ist mit der Halbwertsbreite  $\kappa$  der Lorentzfunktionen wie folgt verknüpft:

$$\kappa \sim \frac{\sigma^2}{\delta^2}. \quad (1.42)$$

### 1.2.4 Rauigkeitsanalyse

Wenn bei fester Bedeckung  $\Theta$  Reflexprofile in Abhängigkeit von der Streuphase  $S$ , gemessen werden, so ist nicht nur die Änderung des Gitterfaktors  $G$  mit  $K_{\parallel}$ , die Informationen über die Form der Einheitszelle, Überstrukturen, Terrassenbreitenverteilung, u.s.w. ergibt, interessant. Die Änderung von  $G$  mit  $K_{\perp}$  enthält Informationen über die Rauigkeit der Oberfläche und die vertikale Schichtverteilung. Die Messung der Abhängigkeit des Gitterfaktors  $G$  von der Streuphase  $S$  wird auch als  $G(S)$ -Analyse bezeichnet.

Die Oberfläche läßt sich durch folgende Parameter charakterisieren:

- $p_h$  die sichtbaren Bedeckungen. Sie gibt die Wahrscheinlichkeit an, einen Streuer (Oberflächenatom) in der  $h$ -ten Schicht zu finden. Die Summe aller  $p_h$  muß 1 sein:  $\sum p_h = 1$ .
- $\Theta_h$  relative Bedeckung. ( $\Theta_h$  ist der Anteil von der aufgetragenen Bedeckung in der  $h$ -ten Lage.) Es gilt:  $\Theta = \sum_h \Theta_h$ .

In der horizontalen Projektion ( $K_{\parallel} = 0$ ) gilt nach Lent et al. [17]:

$$G(S) = \left| \sum_n p_n e^{i2\pi n S} \right|^2 \quad (1.43)$$

$$= \sum_h C_h e^{i2\pi h S}, \text{ mit } C_h = \sum_k p_{k+h} p_k \quad (1.44)$$

## 1.2. SPA-LEED

---

$C_h$  ist die vertikale Paarkorrelation und gibt die Wahrscheinlichkeit an, zwei Streuer mit dem Höhenabstand  $h$  zu finden. Eine eindeutige Umkehrung der Gleichung 1.43 nach  $p_h$  ist aufgrund der Bildung des Betragsquadrates nicht möglich. Außerdem ist Anzahl der beteiligten Schichten frei wählbar. Die Fouriertransformation der  $G(S)$ -Kurve ergibt die Paarkorrelation  $C_h$ .

Durch die Kenntnis der folgenden Randbedingungen

- Gesamtbedeckung  $\Theta$
- Ausschluß überwachsender Löcher  $\Theta_h \geq \Theta_{h+1}$
- $\Theta = \sum_h \Theta_h$
- $1 = \sum_h p_h$

ist es möglich, die Schichtverteilung, also die  $p_h$ -Werte, zu bestimmen.

Eine weitere wichtige statistische Größe, die sich aus einer  $G(S)$ -Analyse gewinnen läßt, ist die Rauhtiefe, oder RMS-Rauhigkeit  $\Delta$ , die Standardabweichung der Höhenverteilung. Nach Lent et. al.[17] gilt dafür:

$$\Delta = \sqrt{\langle h^2 \rangle - \langle h \rangle^2} = \sqrt{\sum_{h>0} C_h h^2}. \quad (1.45)$$

Analytisch ist die Rauhtiefe durch die Krümmung der  $G(S)$  Kurve gegeben:

$$\frac{d^2}{dS^2} G(S) = -4\pi^2 \sum_h C_h h^2 = -4\pi^2 \Delta^2 \quad (1.46)$$

Durch eine Entwicklung in eine Taylorreihe läßt die  $G(S)$ -Kurve in der Nähe von In-Phase Bedingungen  $S_0$  darstellen als [18]:

$$G(S) = e^{-\Delta^2(2\pi(S-S_0))^2} + O(\Delta S^4) \quad (1.47)$$

Die  $G(S)$  Kurve ist also in der Nähe von In-Phase Positionen gaußförmig. Aus Gleichung 1.47 folgt dann für die Rauhtiefe:

$$\Delta = \frac{\sqrt{\ln 2}}{2\pi \Delta S}. \quad (1.48)$$

### Durchführung von G(S)-Analysen

Da im Experiment die Intensität gemessen wird, und diese nach Gl. 1.17 stark von  $F(E \sim S^2)$  abhängt, muß der Formfaktor durch die Normierung der integralen Spitzenintensität auf die integrale Gesamtintensität der Brillionzone wie folgt eliminiert werden:

$$\frac{\int_{\text{Spitze}} dk_{\parallel} I}{\int_{\text{BZ}} dk_{\parallel} I} = \frac{F}{\langle F \rangle} \frac{\int_{\text{Spitze}} dK_{\parallel} G(K_{\parallel}, K_{\perp})}{\int_{\text{BZ}} dK_{\parallel} G(K_{\parallel}, K_{\perp})} = G(S) . \quad (1.49)$$

Hierbei ist der Faktor  $\frac{F}{\langle F \rangle} \cong 1$  gesetzt worden, womit die Formfaktoren eliminiert sind.

### 1.2.5 Mosaik

Mosaik sind Defekte, die neben Stufen, Facetten, Texturen, usw., beim heteroepitaktischen Wachstum auftreten können. Sie bestehen aus kristallinen Bereichen, die gegeneinander leicht verkippt sind.

#### Mosaik ohne Vorzugsrichtung

Im Substrat können unerwünschte Mosaik auftreten, die gegen die Hauptrichtung  $\vartheta = 0$  leicht verkippt sind. Sie können z.B. während der Präparation des Kristalls entstehen. Im reziproken Raum führen sie dazu, daß die Hauptreflexe mit steigender Phase, also mit zunehmenden  $K_{\perp}$ -Werten ein Ansteigen der Halbwertsbreite  $H$  aufweisen. Aus dem Anstieg der Halbwertsbreite mit der Phase errechnet sich die Varianz der Mosaikwinkel, also die Schwankung der Mosaikwinkel um  $\vartheta = 0$  zu

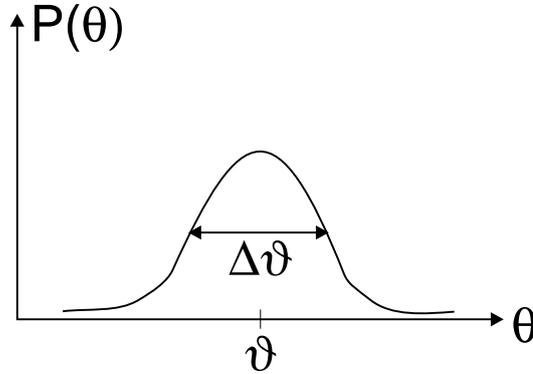
$$\Delta\vartheta = \frac{1}{\sqrt{2}} \frac{H(S)}{S \cdot 100} . \quad (1.50)$$

#### Mosaik mit Vorzugsrichtung

Aufgrund der Gitterfehlpassung kann es bei der Heteroepitaxie ebenfalls zur Bildung von Mosaiken kommen. Durch ihre Entstehung können die durch die Gitterfehlpassung verursachten Verspannungen abgebaut werden. An Hand der Mosaik, die teilweise eine Vorzugsrichtung aufweisen, können Informationen über das Wachstum gewonnen werden. Diese Mosaik führen im reziproken Raum dazu, daß an den Hauptreflexen Satellitenreflexe auftreten.

### 1.3. OBERFLÄCHENRÖNTGENBEUGUNG

---



**Abb. 1.5:** Veranschaulichung der Winkelverteilung

Diese wandern mit steigender Phase zu größeren  $K_{\parallel}$ -Werten. Mit der Position  $P$  des Satellitenreflexe und der zugehörigen Phase ergibt sich für den Mosaikwinkel  $\vartheta$  folgender Ausdruck:

$$\tan \vartheta = \frac{1}{\sqrt{2}} \frac{P(S)}{100S}. \quad (1.51)$$

Die Varianz  $\Delta\vartheta$  des Mosaikwinkels  $\vartheta$ , welche die Breite der Winkelverteilung angibt (s. Abb. 1.5), ist durch

$$\tan \left( \vartheta + \frac{\Delta\vartheta}{2} \right) = \frac{1}{\sqrt{2}} \cdot \frac{P(S) + \frac{H(S)}{2}}{100S} \quad (1.52)$$

gegeben. Für kleine Winkel  $\vartheta$  ist die Varianz gegeben durch:

$$\Delta\vartheta = \frac{1}{\sqrt{2}} \frac{H(S)}{100S} \quad (1.53)$$

## 1.3 Oberflächenröntgenbeugung

Im Gegensatz zur Beugung langsamer Elektronen ist die Röntgenbeugung (Surface X-Ray Diffraction, SXRD) eine Methode, die sowohl oberflächensensitiv ist als auch Informationen über die Struktur nahe der Kristalloberfläche liefert. Die Röntgenstrahlen dringen tief (einige  $\mu m$ ) in den Kristall ein, und geben damit Informationen über die obersten  $\sim 1000$  atomaren Lagen des Kristalls. Die Intensitäten der Röntgenbeugung lassen sich geschlossen berechnen. Ein großer Vorteil gegenüber LEED ist, daß bei der Röntgenbeugung durch den erheblich kleineren Streuquerschnitt keine Mehrfachstreuung

## KAPITEL 1. THEORIE

---

auftritt. Dieses vereinfacht die Rechnungen stark. Die Intensität ist gegeben durch [19]

$$I_{hkl} = \left| A_0 \frac{e^2}{mc^2} \frac{1}{R_0} F(hb_1 + kb_2 + lb_3) N_1 N_2 N_3 \right|^2 \quad (1.54)$$

Die Gl. 1.54 gilt nur für einen unendlich ausgedehnten Kristall. Die Intensitäten sind deltaförmig und werden durch die Instrumentenfunktion verbreitert. Sie weicht nur an reziproken Gitterpunkten, d.h. bei ganzzahligen  $h$ ,  $k$  und  $l$ -Werten von Null ab.

Die Betrachtung einer zweidimensionalen freitragenden Schicht führt zu:

$$I_{2D} = \left| A_0 \frac{e^2}{mc^2} \frac{1}{R_0} F(hb_1 + kb_2) N_1 N_2 \right|^2 \quad (1.55)$$

Die Beugungsbedingung ist für die dritte Dimension immer erfüllt. Dadurch kommt es im reziproken Raum zur Ausbildung sogenannter „Stangen“ (engl. rods). Sie durchstoßen das zweidimensionale reziproke Gitter an den Gitterpunkten. Die Intensität der Stangen ist für alle  $k_{\perp}$  Werte konstant.

In der Realität gibt es weder unendlich ausgedehnte Kristalle, noch freitragende Schichten. Übliche Kristalle können als halbunendliche Kristalle betrachtet werden. Für die horizontale Intensitätsverteilung im reziproken Raum hat dies keine Auswirkung. Im Gegensatz zum unendlich Kristall ändert sich aber die Intensitätsverteilung zwischen den Braggpunkten in vertikaler Richtung. Ein sogenannter „Crystal Truncation Rod“ (CTR) hat folgende Intensitätsverteilung:

$$I_{CTR} = \left| A_0 \frac{e^2}{mc^2} \frac{1}{R_0} F(q) N_1 N_2 \right|^2 \frac{1}{2 \sin^2(qa_3/2)}. \quad (1.56)$$

Die hohe Intensität an den Braggpunkten bleibt erhalten, jedoch fällt die Intensität zwischen den Bragg-Reflexen nicht völlig auf Null ab, sondern nur mit  $1/\sin^2(qa_3/2)$ . Die Intensitäten zwischen den Braggpunkten entsteht durch die Oberfläche. Ist die Oberfläche rau, so fällt die Intensität zwischen den Braggpunkten stärker ab. Der Einfluß der Rauigkeit ist durch

$$I_{\text{rough}} = I_{CTR} \frac{(1 - \beta)^2}{1 + \beta^2 - 2\beta \cos(qa_3)} \quad (1.57)$$

beschreibbar.  $\beta$  ist ein Maß für die Rauigkeit und beschreibt die Besetzung der  $n$ -ten Lage:  $\Theta_n = \beta \Theta_{n-1}$ .

### 1.4 Rastertunnelmikroskopie

Das Rastertunnelmikroskop (Scanning Tunneling Microscope, STM) ist eine direkt abbildende Meßmethode. Eine metallische Spitze wird in einem sehr kleinen Abstand über die Probe gerastert. Bei einer angelegten Spannung zwischen Spitze und Probe kommt es zu einem Tunnelstrom, der wie später gezeigt wird, stark vom Abstand Spitze-Probe abhängt. Mit dem STM lassen sich Bereiche von mehreren  $\mu\text{m}^2$  abbilden. In einem SPA-LEED Experiment lassen sich Größen bis  $1500 \text{ \AA}$  detektieren, diese aber mit sehr guter Statistik, da dabei über einen Bereich von ca.  $1 \text{ mm}^2$  gemittelt wird. Das STM hat den Vorteil, daß es Strukturen bis  $5000 \text{ \AA}$  detektieren kann und einen Bereich auf der Oberfläche direkt abbildet. Nachteilig ist, daß nur eine schlechte Statistik vorhanden ist. Eine bessere Statistik kann durch Auswertung mehrerer Bilder begrenzt hergestellt werden.

Im Folgenden wird zunächst die Theorie für den Tunnelstrom zwischen zwei planaren Metallelektroden dargestellt. Abschließend wird das Tunneln auf Isolatoroberflächen behandelt.

#### 1.4.1 Tunnelstrom zwischen planaren Metallelektroden

Da sich ein Tunnelstrom zwischen zwei planaren Metallelektroden aus vielen einzelnen elementaren Tunnelprozessen zusammensetzt, wird zunächst das Tunneln eines Elektrons betrachtet. Von Interesse ist dabei die Wahrscheinlichkeit, mit der ein Elektron der Energie  $E$  von einem besetzten Zustand durch einen Potentialwall endlicher Höhe und Breite in einen unbesetzten Zustand tunnelt.

Im eindimensionalen Fall wird das Tunneln eines Elektrons durch die stationäre Schrödinger-Gleichung beschrieben:

$$-\frac{\hbar^2}{2m} \frac{d^2}{dz^2} \psi(z) + V(z) = E\psi(z) . \quad (1.58)$$

Aus dem Verhältnis der vom Potential  $V(z)$  reflektierten und der vom Potential  $V(z)$  transmittierten Elektronenwelle mit der Wellenfunktion  $\psi(z)$  läßt sich in der Wetzell-Kramer-Brillouin-Näherung der Transmissionskoeffizient  $T(E)$  ableiten [20, 21]:

$$T(E) = e^{-\frac{2}{\hbar} \int_{-z_0}^{z_0} \sqrt{2m(V(z)-E)} dz} . \quad (1.59)$$

Aus Gleichung 1.59 ergeben sich zwei wichtige Aussagen:

## KAPITEL 1. THEORIE

---

- Der Transmissionskoeffizient  $T(E)$  steigt mit zunehmender Elektronenenergie  $E$  unabhängig vom Potentialverlauf  $V(z)$  an.
- Der Transmissionskoeffizient  $T(E)$  für ein einzelnes Elektron der Energie  $E$  hängt wesentlich vom Verlauf des Potential  $V(z)$  zwischen den Elektroden ab.

Für die Berechnung des Tunnelstroms müssen alle Elektronen in die Betrachtung einbezogen werden (Abb. 1.6a). Werden die beiden Metallelektroden im Abstand  $d$  sehr dicht aneinander gebracht, so kommt es zu einem Strom von Elektronen  $N_{12}$  von Elektrode 1 zu Elektrode 2 und einem Strom  $N_{21}$  von Elektrode 2 zu Elektrode 1. Sind beide Ströme gleich groß, so ist das thermodynamische Gleichgewicht erreicht und die Fermi-Niveaus sind aneinander angeglichen (Abb. 1.6b). Wird an die Elektroden eine Spannung  $U$  angelegt, so verschieben sich die Fermi-Niveaus und Elektronen aus besetzten Zuständen der Elektrode 1, die eine Energie zwischen  $E_{f_1}$  und  $E_{f_1}$  haben, können in unbesetzte Zustände der Elektrode 2 mit Energie zwischen  $E_{f_2}$  und  $E_{f_2} + eU$  tunneln. Die Folge ist ein Tunnelstrom (Abb. 1.6c).

Außer dem Transmissionskoeffizienten  $T(E)$  gehen in die Berechnung des Tunnelstroms die Zustandsdichten der Elektroden 1 und 2 ( $D_1(E), D_2(E)$ ) sowie die Besetzungswahrscheinlichkeiten für besetzte Zustände ( $f_1(E), f_2(E)$ ) als auch der unbesetzten Zustände ( $1 - f_1(E), 1 - f_2(E)$ ) ein. Im Folgenden werden nur die Ergebnisse präsentiert. Für die Herleitung der Gleichungen sei auf die Arbeit von Hamann und Hietschold [22] verwiesen.

### Kleine Tunnelspannungen

Für kleine Tunnelspannungen und niedrige Temperaturen gilt:

$$I = \frac{e^2}{4\pi^2\hbar} \frac{U}{z_0^2} \cdot \left( \frac{\sqrt{2m}}{\hbar} z_0 \sqrt{V} - 1 \right) \cdot e^{-\frac{2\sqrt{2m}}{\hbar} z_0 \sqrt{V}} \quad (1.60)$$

$$V = \frac{1}{z_0} \int_{-\frac{z_0}{2}}^{+\frac{z_0}{2}} (V(z) - E_F) dz . \quad (1.61)$$

Hierbei stellt  $V$  ein mittleres Potential da.

Gleichung 1.60 zeigt, daß der Tunnelstrom  $I$  im wesentlichen exponentiell von dem Abstand  $z_0$  abhängt. Für feste  $z_0$  und  $V$  ist der Tunnelkontakt ohmsch ( $I \propto U$ ). Die Stromrichtung ist von der Polarität der Spannung  $U$  abhängig

## 1.4. RASTERTUNNELMIKROSKOPIE

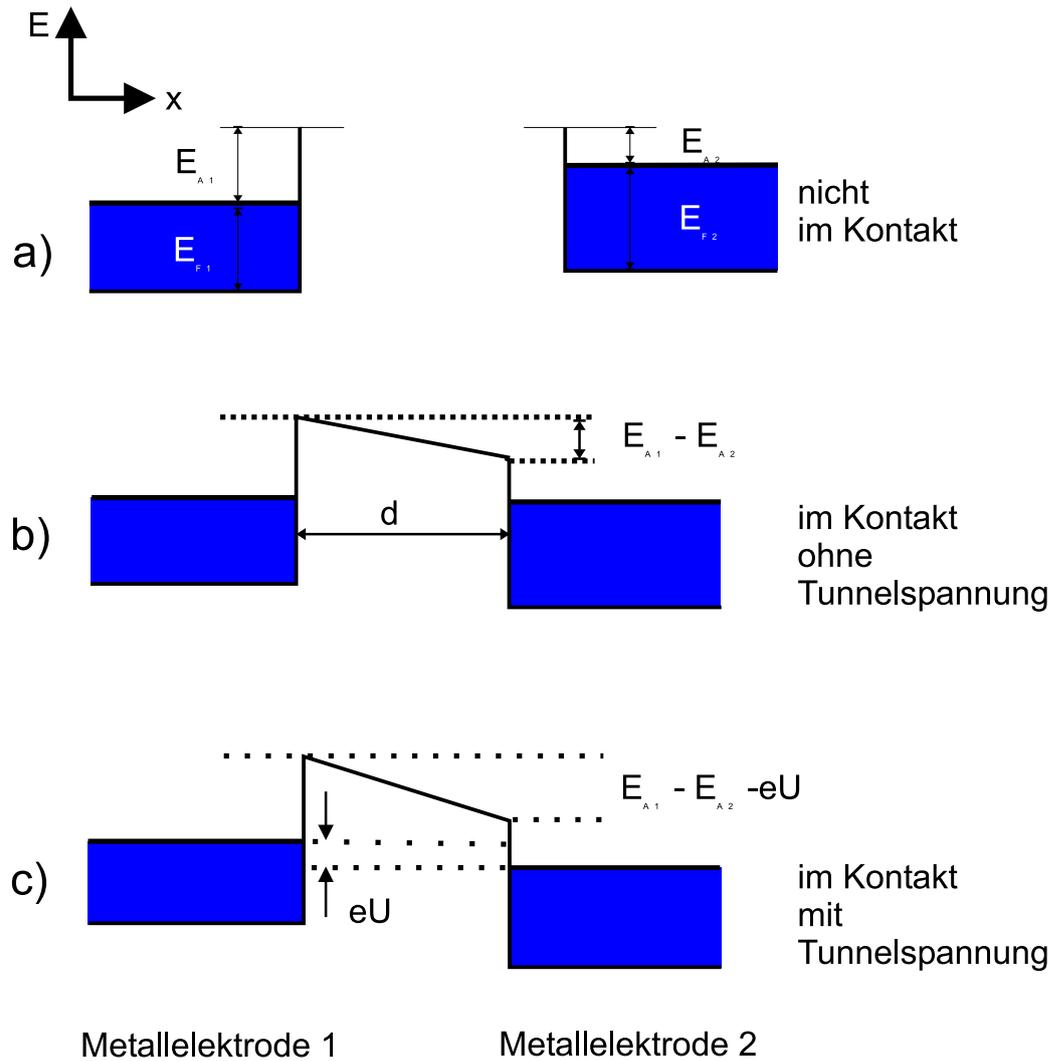


Abb. 1.6: Tunnelvorgang zwischen zwei planparallelen Platten

### Große Tunnelspannungen

Für große Tunnelspannungen in der Größenordnung der Austrittsarbeit (einige eV), ergibt sich ein anderes Verhalten:

$$I \sim \frac{U^2}{z_0^2} e^{-\text{const} \frac{z_0}{U}}. \quad (1.62)$$

Der Tunnelstrom zeigt nicht nur eine starke exponentielle Abhängigkeit vom Abstand  $z_0$  sondern auch eine exponentielle Abhängigkeit vom Kehrwert der Tunnelspannung  $U$ . Der Tunnelkontakt ist dann also nicht mehr ohmsch.

### 1.4.2 Tunneln an dünnen Isolatorschichten.

Im Gegensatz zum einfachen System Metall/Vakuum/Metall ist die Situation bei dem Metall/Vakuum/Oxid/Metall-System komplizierter. Das Fermi-Niveau des Oxides liegt in der Mitte der Bandlücke. Ist keine Tunnelspannung angelegt, so liegen alle unbesetzten Zustände oberhalb, und alle besetzten Zustände unterhalb des Fermi-Niveaus. Wird das Fermi-Niveau der Spitze durch eine kleine Tunnelspannung gegenüber dem Fermi-Niveau des Metallsubstrates und der Oxidschicht angehoben (s. Abb. 1.7 b.), so gibt es in der Oxidschicht noch keine auf gleichem oder niedrigeren Niveau liegenden unbesetzten Zustände. Die Elektronen in den besetzten Zuständen der Spitze, die oberhalb des Fermi-Niveaus der Oxidschicht liegen, könnten nur in die Bandlücke des Isolators tunneln. Die unbesetzten Zustände des Metallsubstrates liegen auf gleicher Höhe mit den besetzten Zuständen der Spitze, die oberhalb des Fermi-Niveaus des Metallsubstrates liegen. Es kommt zu einem Tunnelstrom. Die Elektronen tunneln aus den besetzten Zuständen der Spitze, die oberhalb des Fermi-Niveaus des Metallsubstrates liegen, durch die Bandlücke des Oxidfilms in die unbesetzten Zustände des Metallsubstrates. Für die Abbildung der Oberfläche bedeutet diese Situation, daß der Oxidfilm nicht sichtbar ist, also nur das Metall-Substrat abgebildet wird. Diese Situation gilt für alle Tunnelspannungen zwischen 0V und  $\frac{1}{2}E_{\text{Gap}}/e$ .

Ist die Tunnelspannung größer als  $\frac{1}{2}E_{\text{Gap}}/e$  (s. Abb. 1.7 a.), so liegt ein Teil der besetzten Zustände der Spitze oberhalb der unteren Leitungsbandkante des Oxidfilms. Elektronen können dann von dort in die unbesetzten Zustände des Leitungsbandes des Oxidfilms tunneln. Von dort können sie in die unbesetzten Zustände des Metallsubstrates abfließen. Ein kleiner Teil der Elektronen aus den besetzten Zuständen der Spitze, die oberhalb des Fermi-Niveaus des Metallsubstrates liegen, tunneln, wie oben beschrieben,

## 1.4. RASTERTUNNELMIKROSKOPIE

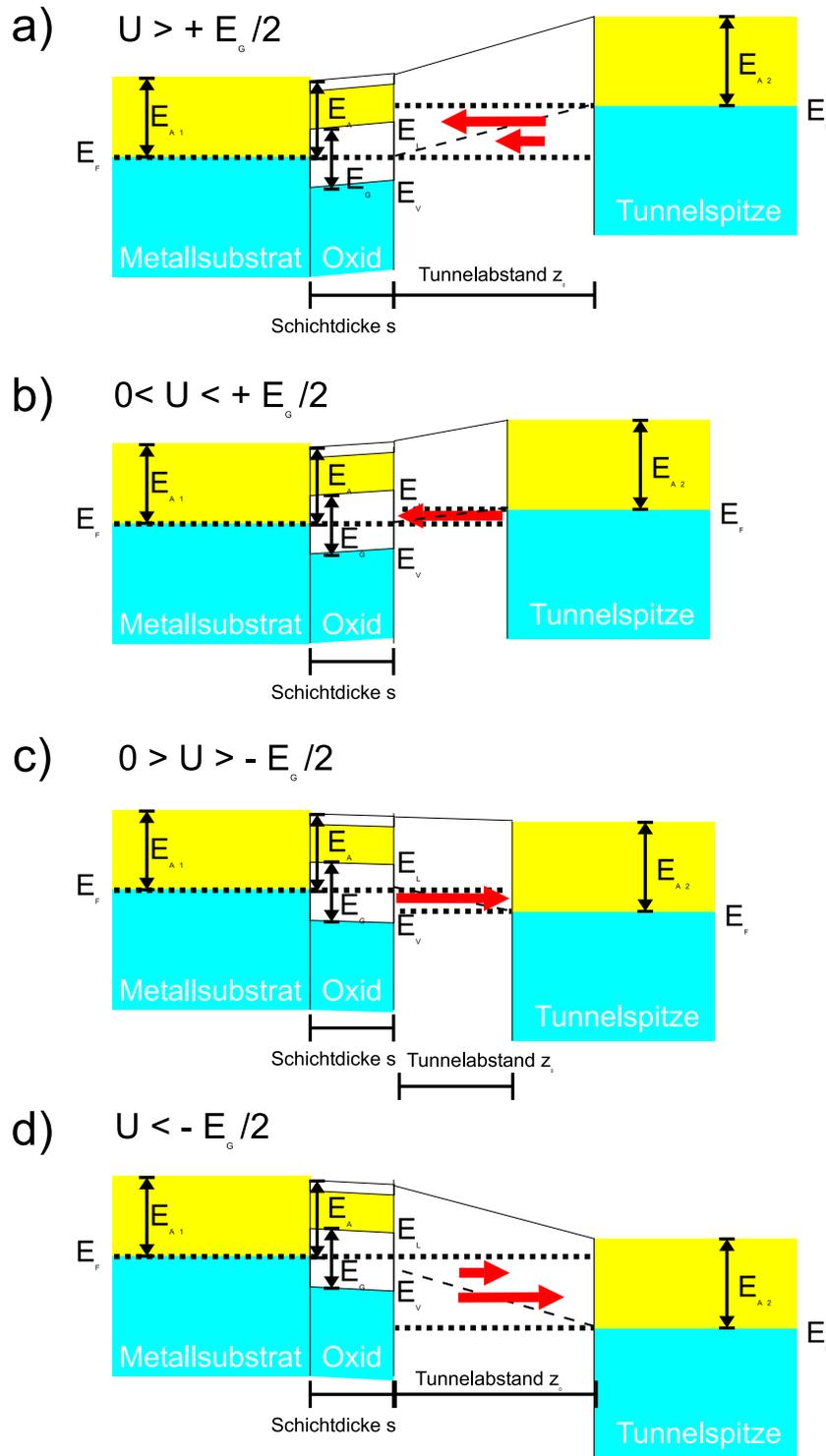


Abb. 1.7: Tunnelmechanismen an dünnen Isolatorschichten

## KAPITEL 1. THEORIE

---

in die unbesetzten Zustände des Substrates. Für die Abbildung der Oberfläche bedeutet dies, daß der Oxidfilm abgebildet wird. Ein kleiner Teil des Tunnelstroms rührt von Elektronen her, die direkt in das Substrat tunneln und zu kleinen Fehlern in der Höhenmessung führen. Je dicker der Oxidfilm ist, desto kleiner ist der Anteil des Tunnelstroms in das Substrat.

Bei umgepolter Tunnelspannung wird das Fermi-Niveau des Metallsubstrats und der Oxidschicht gegenüber dem Fermi-Niveau der Spitze angehoben. Liegt die Tunnelspannung zwischen 0V und  $-\frac{1}{2}E_{\text{Gap}}/e$  (s. Abb. 1.7 c.)), so können nur Elektronen aus besetzten Zuständen des Metallsubstrates, die über dem Fermi-Niveau der Tunnelspitze liegen, durch die Bandlücke der Oxidschicht und des Vakuums in die unbesetzten Zustände der Tunnelspitze tunneln. In diesem Zustand wird demnach nur die Topographie des Substrates abgebildet.

Ist die Tunnelspannung  $U$  kleiner als  $-\frac{1}{2}E_{\text{Gap}}/e$  (s. Abb. 1.7 d.)), so können Elektronen aus dem Valenzband der Oxidschicht in die unbesetzten Zustände der Tunnelspitze tunneln. Gleichzeitig können, mit geringerer Wahrscheinlichkeit, auch Elektronen des Metallsubstrates durch die Bandlücke des Isolators in die unbesetzten Zustände der Tunnelspitze tunneln. Bei dieser Spannung wird die Oxidschicht abgebildet.

---

## Kapitel 2

# Experimenteller Aufbau

Um Metalle und Isolatoren auf Metallen studieren zu können, ist es notwendig die Experimentierumgebung von fremden Atomen frei zu halten. Aus diesem Grund ist es notwendig, die Experimente unter Ultra-Hochvakuum Bedingungen (UHV  $p \simeq 1 \times 10^{-10}$  mbar) durchzuführen. In einer solchen Umgebung beträgt die Zeit, bis sich eine Monolage Fremdatome auf der Oberfläche angelagert hat mehr als 10 Stunden (einen Haftkoeffizienten von 1 für die Restgasatome vorausgesetzt). Die Experimentierzeit, in der die Fremdatome nur einen vernachlässigbaren Anteil an der Bedeckung der Oberfläche des Kristalls haben, beträgt einige Stunden. Die benutzte Edelstahlkammer, Abb. 2.1, wird mit einer Ionengetter- und einer Turbomolekularpumpe auf einen Enddruck  $< 1 \times 10^{-10}$  mbar evakuiert. Es stehen zur Verfügung:

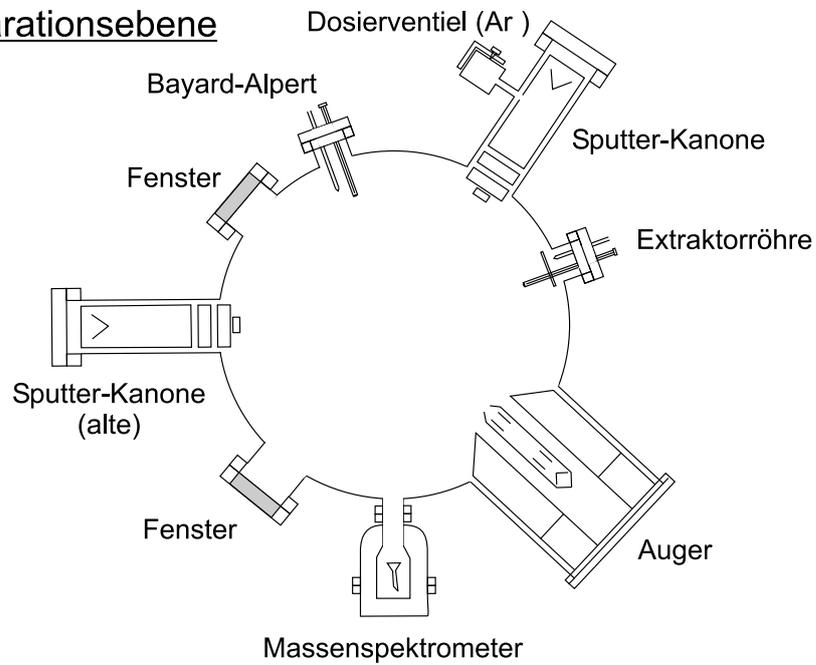
- SPA-LEED: die eigentliche Meßmethode zur Analyse der Morphologie und des Wachstums
- Auger-Elektronen-Spektroskopie(AES): Chemische Analyse der Oberfläche. Es werden Konzentrationen der verschiedenen Atomsorten auf der Oberfläche bestimmt.
- Massenspektrometer: Analyse des Restgases
- Sputterkanonen: Reinigung des Kristalls
- Verdampfer: Bereitstellung der aufzubringenden Materialien
- Kühlung: Kühlen der Probe bis herunter zu 140 K.

Die Kammer ist in zwei Ebenen aufgeteilt. Die obere Ebene ist die Präparationsebene, in der der Kristall durch Sputterzyklen gereinigt wird. Die

## KAPITEL 2. EXPERIMENTELLER AUFBAU

---

### Präparationsebene



### Meßebeene

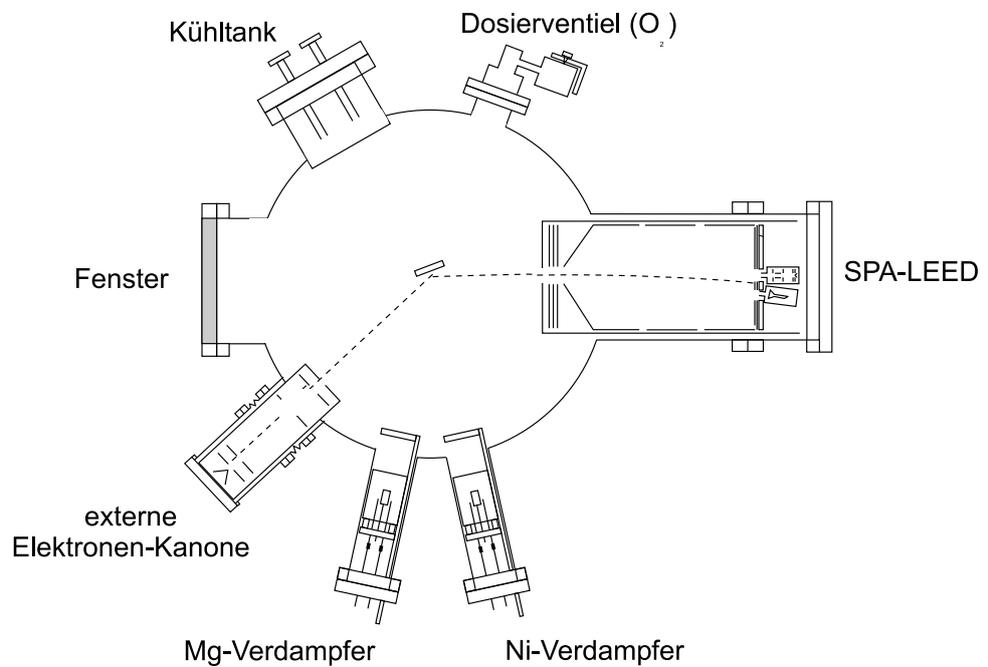


Abb. 2.1: Die SPA-LEED Apparatur

## 2.1. SPA-LEED

---

Präparation wird mit AES überwacht. In der Meßebeene wird das Experiment durchgeführt. Der präparierte Kristall wird mit den Verdampfern mit den gewünschten Schichten bedampft. Über das Dosierventil kann noch  $O_2$  beigegeben werden. Während des Aufbringens der Schichten ist eine Kontrolle des Wachstums mit Hilfe des SPA-LEED in externer Geometrie möglich. Nach Beendigung des Wachstums werden die hergestellten Schichten mit dem SPA-LEED in interner Geometrie untersucht.

## 2.1 SPA-LEED

Beim SPA-LEED (Spot Profile Analysis Low Energy Electron Diffraction) werden wie bei einem LEED System die Proben mit langsamen Elektronen (20-200 eV) beschossen. Zur Detektion der gebeugten Elektronen stehen zwei Möglichkeiten zur Verfügung. Zum einen ist es möglich, wie bei einem LEED-System die Elektronen auf einem Leuchtschirm zu beobachten. Diese Möglichkeit dient zu einer groben Orientierung, Fokussierung und Justierung des Gerätes. Die andere Möglichkeit ist die Detektion der gebeugten Elektronen mit einem Channeltron (Elektronenvervielfältiger mit kontinuierlich verlaufendem Potential). Die Elektronen, die in der Elektronenkanone beschleunigt werden, werden durch einen Oktopol so abgelenkt, daß der Einfallswinkel der Elektronen und somit auch ihr  $k_{||}$ - Anteil variiert. So wird durch Ablenkung der Elektronen ein Scan einer  $k_{||}$ - Ebene durchgeführt. Die  $k_{\perp}$ -Komponente wird über die Energie der Elektronen festgelegt. Dieses Gerät ist besonders zur Vermessung von Reflexprofilen geeignet. Mit einer externen Elektronenkanone die außerhalb des SPA-LEED's unter einem Winkel von  $135^\circ$  angebracht ist, werden die Intensitäten von Reflexen und deren Profile während des Schichtwachstums vermessen.

## 2.2 Auger Elektronen Spektroskopie(AES)

Bei der AES wird der Augereffekt zur Analyse der Oberfläche genutzt. Zur Anregung werden Elektronen mit Energien von bis zu 5keV verwendet. Diese Elektronen dringen einige Lagen tief in den Kristall ein. Daher ist diese Methode nur bedingt oberflächensensitiv. Die hochenergetischen Elektronen regen ein Elektron aus den inneren Elektronenschalen ins Vakuum an. Beim Zurückfallen eines anderen Elektrons auf die freie Position in der inneren Schale wird die freiwerdende Energie in die Anregung zweier oder mehr Elektronen ins Vakuum aus höheren Schalen verwendet. Diese Elektronen heißen

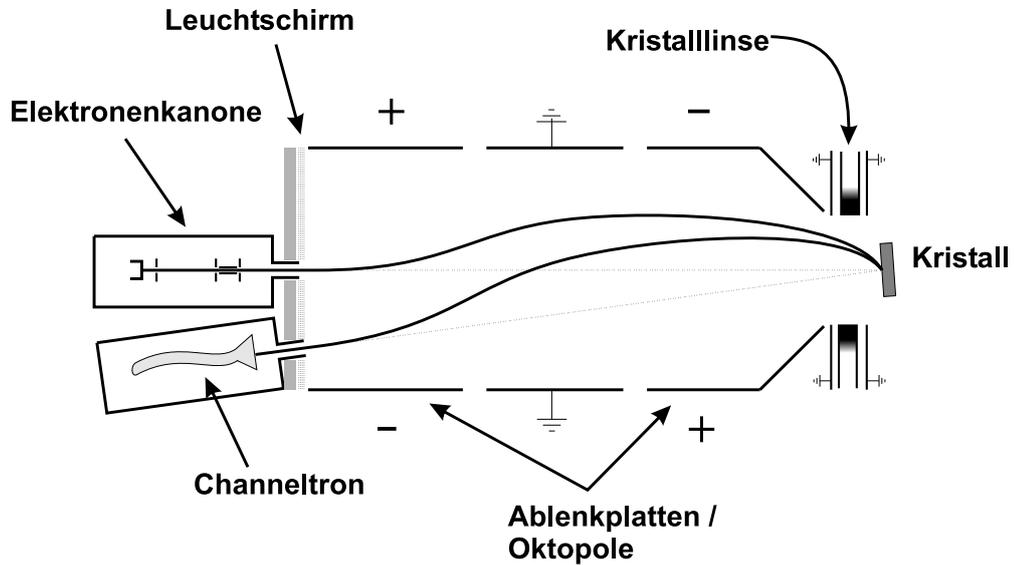


Abb. 2.2: Das SPA-LEED

Augerelektronen. Das Energiespektrum dieser Elektronen ist für jedes Element entsprechend seiner Elektronenkonfiguration charakteristisch. Anhand der Spektren können Elemente auf der Oberfläche eindeutig identifiziert werden. Dieses ist bis zu einem Anteil von 0.2 atomaren Prozenten möglich [23].

## 2.3 Verdampfer

Der Verdampfer, Abb. 2.3, dient zum Verdampfen der aufzubringenden Materialien. Das Verdampfergut wird vom Stab direkt verdampft. Der Stab wird von einem Wolfram-Filament der Stärke 0.15mm erhitzt. Zusätzlich wird er über Elektronenstoß geheizt, d.h. Elektronen, die aus dem Filament austreten, werden über eine Hochspannung (bis 1kV) zwischen Filament und Stab beschleunigt. Durch das Auftreffen wird dann Energie übertragen, die zu Erwärmung führt. Mit diesem Verfahren können dem Verdampfergut 150W zugeführt werden. Die zugeführte Leistung wird in Form von Strahlung teilweise abgegeben und erwärmt die Umgebung, welches zur verstärkten Desorption von Adsorbatatomen der Umgebung führt. Um dieses zu verhindern, ist das Verdampfergut von einem wassergekühltem Strahlungsschild umgeben. Für Mg ist eine Leistung von 12W notwendig um unter UHV-Bedingung ein Abdampfen der Mg-Atome zu erreichen. Für Ni ist eine Leistung 33W notwendig.

## 2.4. MASSENSPEKTROMETER

---

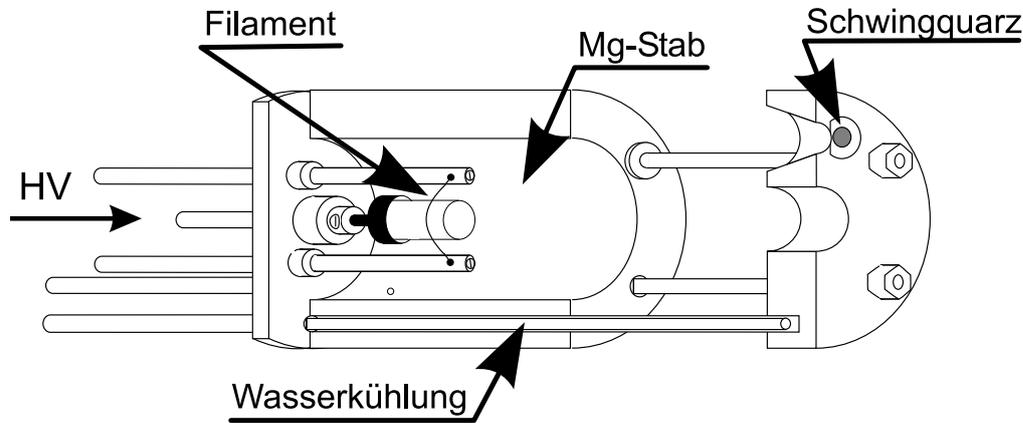


Abb. 2.3: Mg-Elektronenstrahlverdampfer

## 2.4 Massenspektrometer

Das QMS (Quadrupol Mass Spektrometer) dient zur Analyse des Restgases. Mit einem Filament werden Elektronen erzeugt und anschließend mit einer Hochspannung beschleunigt. Die beschleunigten Elektronen ionisieren die Atome des Restgases. Die so erzeugten Ionen werden durch einen Quadrupol beschleunigt und durch einen Elektronen-Multiplier nachgewiesen. Je nach Stärke der an den Quadrupol angelegten Felder werden die Ionen ihrer Masse und Ionisierungsgrades entsprechend abgelenkt. Anhand der detektierten Massen läßt sich die Zusammensetzung des Restgases bestimmen

## 2.5 Probenpräparation

Der Ag(100)-Kristall wurde mit Funkenerosion aus einem Ag-Stab geschnitten. Dadurch wird die Oberfläche des Kristalls stark geschädigt. Daher müssen zuerst einige 1/10mm in einem Ätzbad aus 60% Salpetersäure( $\text{HNO}_3$ ) abgetragen werden, die im wesentlichen die Schädigungen beinhalten. Vor der Politur des Kristalls wird er mit dem Laue-Verfahren auf  $0.5^\circ$  genau vororientiert und mit einer Röntgenanlage in Zwei-Kristall-Anordnung [24] auf  $0.07^\circ$  genau orientiert. Nach der in [25] beschriebenen Methode wird dann die Oberfläche chemomechanisch poliert. Der so vorbehandelte Kristall wird

## KAPITEL 2. EXPERIMENTELLER AUFBAU

---

in den Probenhalter der UHV-Kammer eingebaut. Unter UHV-Bedingungen erfolgt die Präparation der Oberfläche durch sogenannte Sputterzyklen, die sich aus wiederholendem Beschuß mit Ar-Ionen und Heizen des Kristalls zusammensetzen. Während des Sputterns wird der Kristall auf 440K geheizt, da bei dieser Temperatur ein lagenweises Abtragen des Ag erreicht wird [26].

---

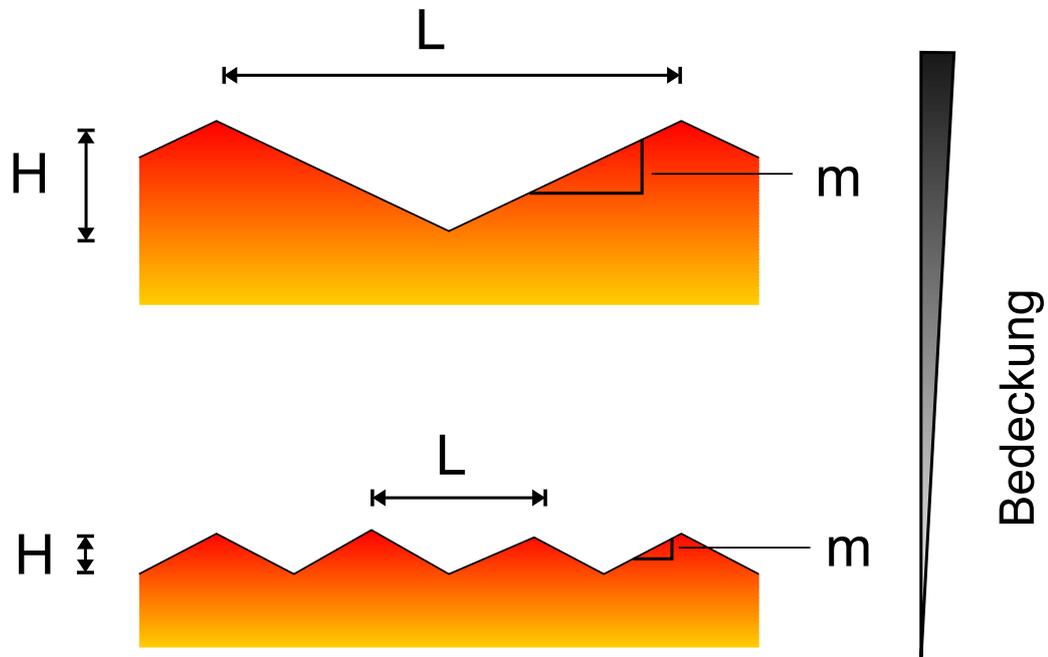
# Kapitel 3

## Ni(100) Homoepitaxie

Die Homoepitaxie von Metallen wurde schon vielfach untersucht, z.B an Cu und Pt [2, 27]. Bei diesen Untersuchungen hat sich gezeigt, daß es bei der Homoepitaxie von Metallen zum Wachstum von Pyramiden kommt. Die Pyramiden entstehen beim Wachstum durch eine Ehrlich-Schwoebel-Barriere an den Stufenkanten, die die Diffusion von Atomen in tiefere Lagen behindert. Anhand des Wachstums der Pyramiden mit der Bedeckung und der Temperaturabhängigkeit dieses Prozesses sind Aussagen über die Größe der Ehrlich-Schwoebel-Barriere möglich. In Abbildung 3.1 ist das prinzipielle Wachstum von Pyramiden dargestellt. Wichtige Größen dieses Wachstums sind der mittlere Pyramidenabstand  $L$ , die mittlere Pyramidenhöhe  $H$  und die mittlere Steigung der Pyramiden  $m$ . Die Entstehung von Pyramiden und die Entwicklung der Morphologie mit steigender Bedeckung bei unterschiedlichen Temperaturen werden im Folgenden der Ni(100) Homoepitaxie mit SPA-LEED untersucht.

### 3.1 Messungen

Während des Aufdampfens von Ni auf eine Ni(100)-Oberfläche wird in externer Geometrie mit dem SPA-LEED die Intensität des (00)-Reflexes bei Gegenphase beobachtet und in regelmäßigen Abständen Profile des (00)-Reflexes aufgenommen. Eine typische Messung der Intensität des (00)-Reflexes während des Wachstums von Ni auf Ni(100) ist in Abb. 3.2 gezeigt. Die Intensität des (00)-Reflexes fällt nach Öffnen des Shutters zunächst stark ab und oszilliert dann mit der Periode 1 ML. Die Maxima der Oszillationen erreichten nur noch ca. 1/4 der Ausgangsintensität und ihre Amplitude nimmt



**Abb. 3.1:** Prinzipielles Wachstum von Pyramiden. Die entscheidenden Größen sind mittlerer Pyramidenabstand  $L$ , mittlere Pyramidenhöhe  $H$  und die mittlere Pyramidensteigung  $m$ .

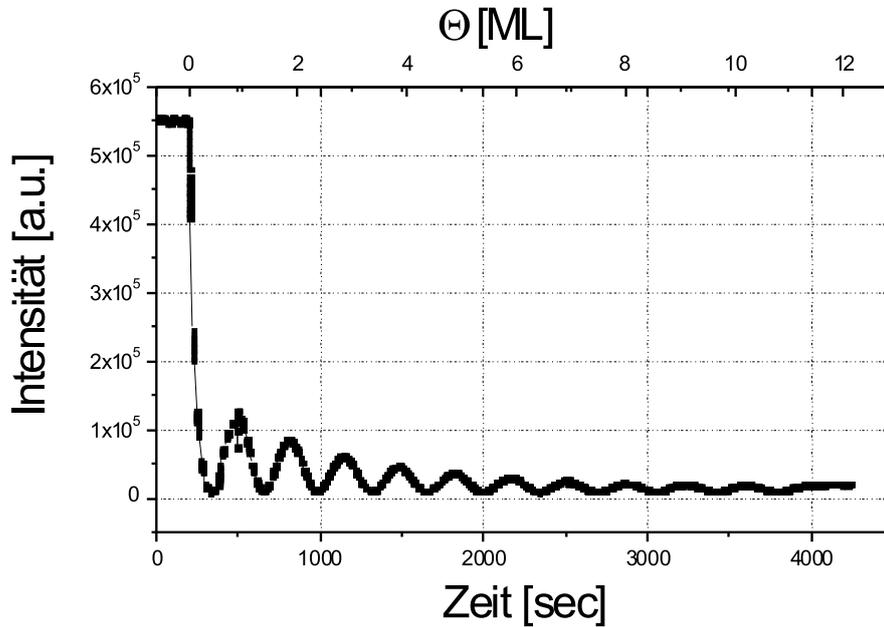
zu höherer Bedeckung  $\Theta$  hin ab. In Abbildung 3.3 ist ein typisches Profil zu sehen. Bei  $k_{||} = 0$  ist deutlich die zentrale Spitze sichtbar. Bei  $k_{||} = \pm 18\%$  Bz zeigen sich im Profil Satelliten. Da diese Satelliten nicht linear mit der Phase wandern, handelt es sich weder um Mosaik noch um Facetten. Die Satelliten rühren von einer gammaförmigen Inselabstandsverteilung her. Wie in Kapitel 1.2.3; Formeln 1.41, 1.42; gezeigt wurde lässt sich aus der Position der Satelliten die mittlere Terrassenbreite und aus ihrer Halbwertsbreite die Schärfe der Gammaverteilung berechnen.

## 3.2 Submonolagen-Bereich

Für ein Verständnis des Wachstums von Ni ist die Kenntnis der Keimbildungsphase notwendig. Bei einer Bedeckung von 0 - 0.5 ML entstehen Keime, die dann den Ausgangspunkt für das Wachstum der Inseln bilden. Zu höheren Bedeckungen kommt es dann vermehrt zur Koaleszenz von Inseln. Daher ist nur im Bedeckungsbereich  $< 0.5$  ML die Inseldichte proportional zur Keimdichte. Anhand des SPA-LEED Profils (z.B. bei  $\Theta = 0.5$  ML) ist es

### 3.2. SUBMONOLAGEN-BEREICH

---

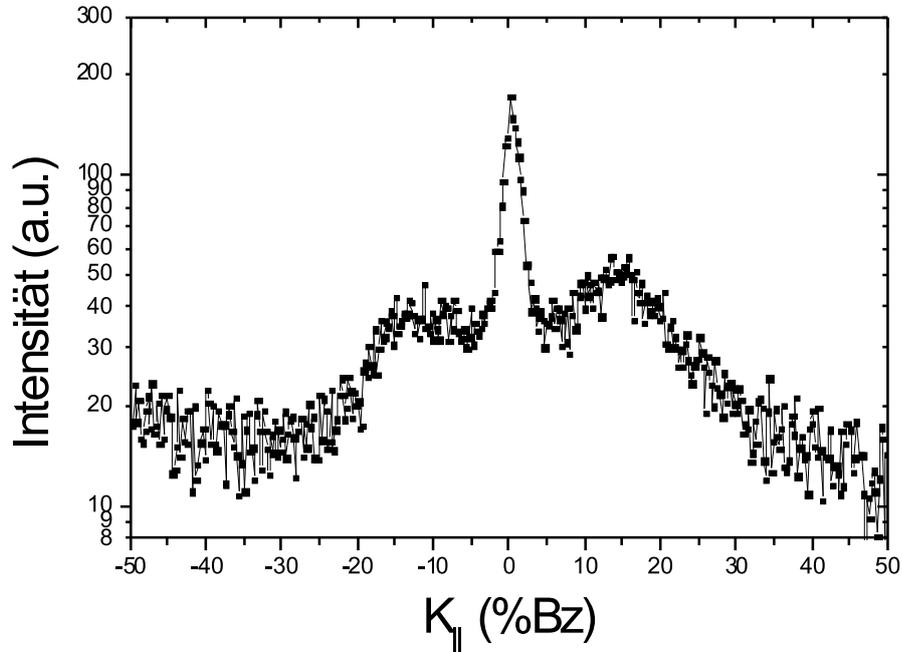


**Abb. 3.2:** Intensität des (00)-Reflexes über der Zeit während des Wachstums von Ni bei  $S=2.5$  und einer Temperatur von  $T = 160K$ . Deutlich sind nach Öffnen des Shutters bei  $t=0$  Oszillation in der Intensität zu sehen.

möglich, die Inseldichte und somit die Keimdichte zu bestimmen[28]. Nach Gleichung 1.41 bestimmt sich die mittlere Terrassenbreite oder bei niedrigen Bedeckungen die Inseldichte aus der Position des Satellitenreflexes  $k_0$ . Für die Inseldichten gilt folglich:

$$n_x \sim \frac{1}{\Gamma^2} \sim k_0^2 \quad (3.1)$$

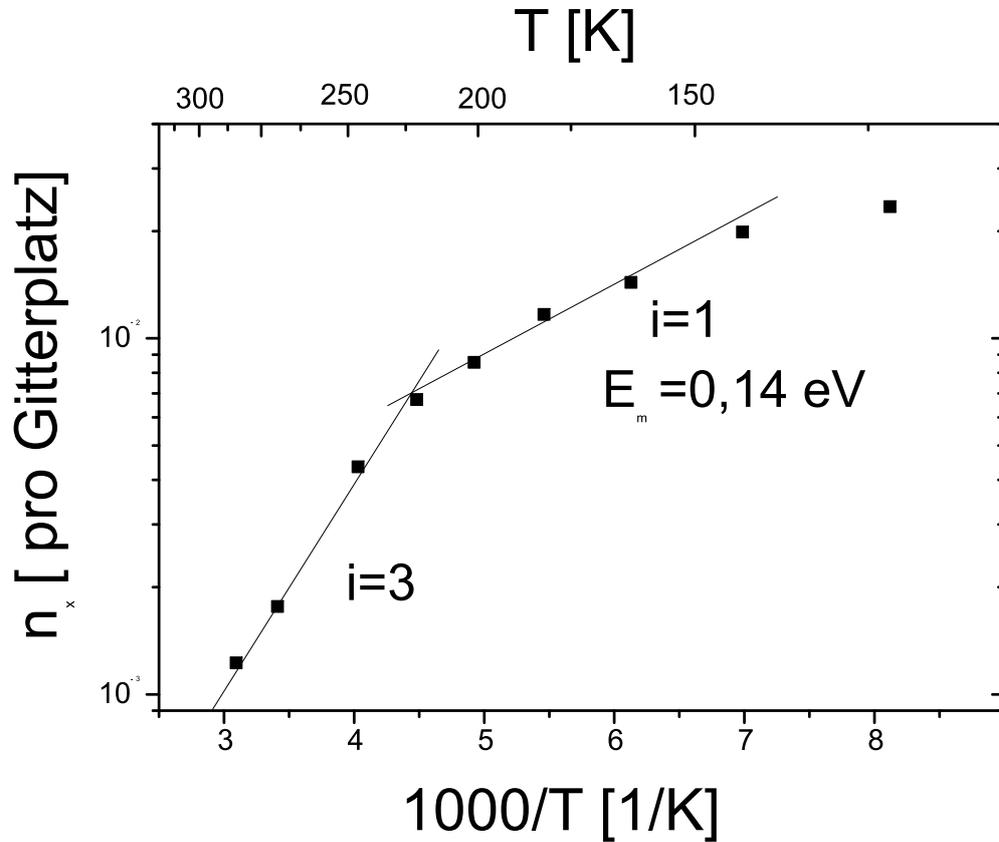
Die Bestimmung der Inseldichten  $n_x$  wurde für Temperaturen  $T$  zwischen 120K und 390K durchgeführt. Eine logarithmische Auftragung der Inseldichten über  $1/T$  (ein sogenannter Arrheniusplot) ist in Abbildung 3.4 gezeigt. Die Inseldichte nimmt von tiefen Temperaturen kommend zu hohen Temperaturen hin stark ab. Hierbei sind in der Arrheniusauftragung 3.4 Teilgeraden zu erkennen, die durch Linien in der Auftragung verdeutlicht sind. Nach Gleichung 1.4 gehört jede Teilgerade zu einer Exponentialfunktion, zu der ein  $i$  ( $i$ = kritische Keimgröße) gehört. Die kleinste kritische Keimgröße ist  $i=1$ . Sie tritt bei tiefen Temperaturen auf. Zu höheren Temperaturen



**Abb. 3.3:** Profil des (00-Reflexes) bei  $\Theta = 0.5\text{ML}$  und einer Temperatur von  $T=160\text{ K}$ . Neben der zentralen Spitze sind zwei Satelliten bei  $18\text{ \%BZ}$  zu sehen.

erhöht sich mit jedem Abknicken der Kurve die Keimgröße. Für ein quadratisches Gitter steigen die kritischen Keimgrößen wie folgt:  $1,3,\dots$ . Zwischen  $150\text{ K}$  und  $200\text{ K}$  wird ein kritische Keim  $i = 1$  angenommen. Da unterhalb von  $150\text{ K}$  die nächste Teilgerade die Steigung null hätte, ist die eben gemachte Annahme gerechtfertigt. Bei diesen Temperaturen ist die Nukleation von Inseln stark reduziert, da die Diffusion von Monomeren stark verlangsamt ist. Dieser Effekt wurde auch schon beim Wachstum von  $\text{Cu/Ni}(100)$  [29, 30] beobachtet und wird in den Arbeiten als „postgrowth“ bezeichnet. Würde bis zu einer vollständigen Nukleation der Inseln gewartet, so würde sich die Gerade im Arrheniusplot zu tiefen Temperaturen fortsetzen. Oberhalb  $200\text{ K}$  knickt die Kurve der Inseldichten ab und der kritische Keim ist bei diesen Temperaturen  $i = 3$  (4 Atome bilden einen stabilen Keim). Aus der Steigung der Teilgeraden  $i = 1$  berechnet sich nach Gleichung 1.4 die Diffusionsenergie von Monomeren zu  $E_m = 0.14\text{eV}$ . Aus der Steigung der Teilgeraden  $i = 3$  bestimmt sich nach Gleichung 1.4 die Bindungsenergie

### 3.3. BEDECKUNGS- UND TEMPERATURABHÄNGIGKEIT



**Abb. 3.4:** Arrheniusplot: logarithmische Auftragung der Inseldichten  $n_x$  bei  $\Theta = 0.5\text{ML}$  über  $1/T$ .

von Trimeren zu  $E_3 = 0.07\text{eV}$ . Damit hätte der Dimer eine Bindungsenergie von  $E_2 = 0.035\text{eV}$ . Der Wert für Diffusionsenergie von Ni/Ni(100) liegt in einer für Metalle üblichen Größenordnung. Ein Vergleich mit Theoriewerten zeigt, daß dieser Wert gegenüber den theoretisch erwarteten um einen Faktor von ca. 4 zu klein ist. So errechnet Stoltze[31] für die Diffusionsenergie von Ni/Ni(100) einen Wert von  $E_d = 0.558\text{eV}$ . Liu et al.[32] errechnen einen noch höheren von  $E_d = 0.63\text{eV}$ . Der Wert für die Bindungsenergie von Trimeren ist gegenüber den Bindungsenergien von Trimeren anderer Metalle und gegenüber den theoretisch erwarteten um eine Größenordnung zu klein. Stoltze [31] erwartet einen Wert von  $E_3 = 0.418\text{eV}$

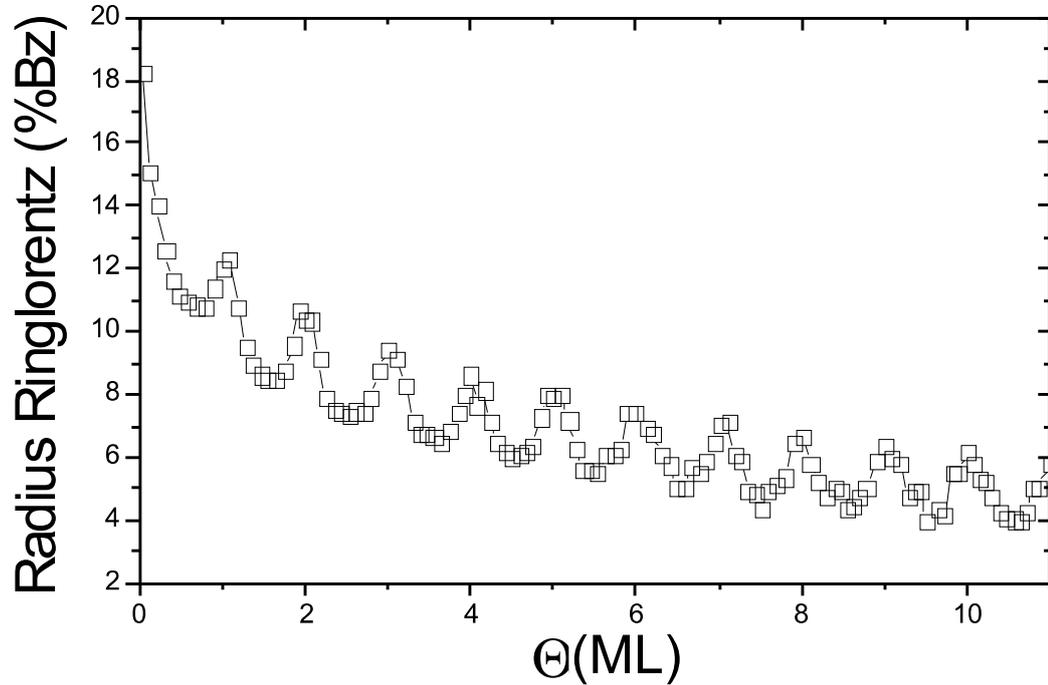


Abb. 3.5: Satellitenposition  $k_0$  über Bedeckung  $\Theta$

### 3.3 Bedeckungs- und Temperaturabhängigkeit

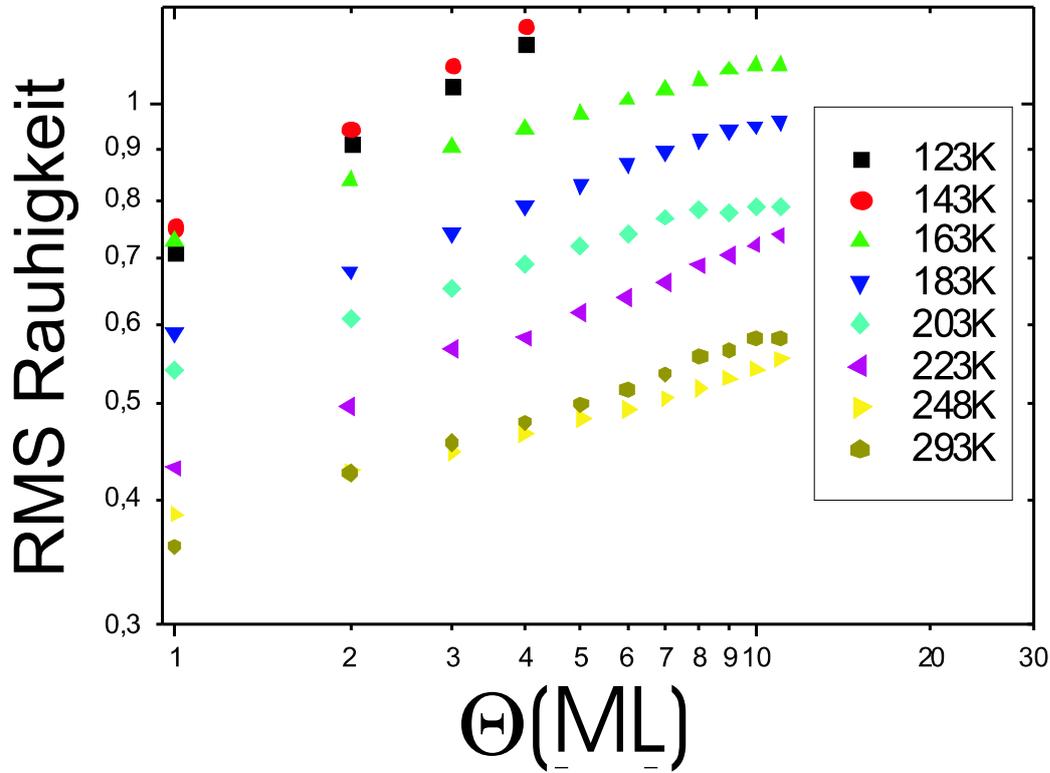
Wie oben beschrieben, wurden während des Aufdampfens von Ni Profile des (00)-Reflexes aufgenommen. Aus diesen Profilen (Abbildung 3.3 zeigt ein Beispiel) sind zwei Informationen zu entnehmen. Einerseits läßt sich aus der Intensität der Spitze die RMS-Rauhigkeit bestimmen:

$$\frac{I(\Theta)}{I(0)} = \exp(-4\Delta^2) \quad (3.2)$$

Hierbei ist  $\Delta$  die RMS-Rauhigkeit. Andererseits wird aus der Position  $k_0$  des Satellitenreflexes die mittlere Terrassenbreite (Gleichung 1.41) ermittelt. Die Position des Satellitenreflexes (Abb. 3.5) und die Intensität des Zentralreflexes (Abb. 3.2) oszilliert mit der Bedeckung  $\Theta$ . Im Folgenden werden nur noch RMS-Rauhigkeiten und Satellitenpositionen bei Bedeckungen ganzer Lagen (1,2,3,... ML) betrachtet, um somit die generelle Abhängigkeit von der Bedeckung  $\Theta$  zu untersuchen.

Der Verlauf der RMS-Rauhigkeit mit der Bedeckung  $\Theta$  für Temperaturen zwischen 120K und 300K ist in Abbildung 3.6 gezeigt. Die RMS-Rauhigkeiten steigen in der doppeltlogarithmischen Auftragung linear mit der Bedeckung

### 3.3. BEDECKUNGS- UND TEMPERATURABHÄNGIGKEIT



**Abb. 3.6:** RMS - Rauigkeiten über der Bedeckung  $\Theta$  für verschiedene Temperaturen im Bereich 120K -290K

an. Mit fallender Temperatur vergrößern sich die RMS-Rauigkeiten. Für die einzelnen Kurven RMS über  $\Theta$  lassen sich Skalierungsgesetze entsprechend Gleichung 1.5 anpassen. Die Steigungen der Geraden in der doppeltlogarithmischen Auftragung ergeben den Exponenten  $\beta$  für das Verhalten der Pyramidenhöhe während des Wachstums. Die Auftragung des Exponenten  $\beta$  über der Temperatur wird in Abbildung 3.7 gezeigt. Im Temperaturbereich 140K - 300K ist der Exponent  $\beta$  im Rahmen des Fehlers konstant und hat einen Wert von  $\beta = 0.18$ . Im Temperaturbereich 120K-140K ist  $\beta = 0.35$ . Diese Veränderung ist verständlich, da für ein statistisches Wachstum der Exponent  $\beta = 0.5$  beträgt. Für sehr tiefe Temperaturen ist von einem statistischem Wachstum auszugehen. Bei 140K ändert sich demzufolge das Wachstumsverhalten der Pyramiden und beginnt in ein statistisches Wachstum überzugehen. Dieses ist bei 120K noch nicht vollständig erreicht.

Die Satellitenposition  $k_0$  ist umgekehrt proportional zu der mittleren Terrassenbreite  $\bar{\Gamma}$ . Davon ausgehend, daß die Pyramiden nur aus Einfachstufen bestehen, gibt die mittlere Terrassenbreite  $\bar{\Gamma}$  die Steigung  $m$  der Pyramiden

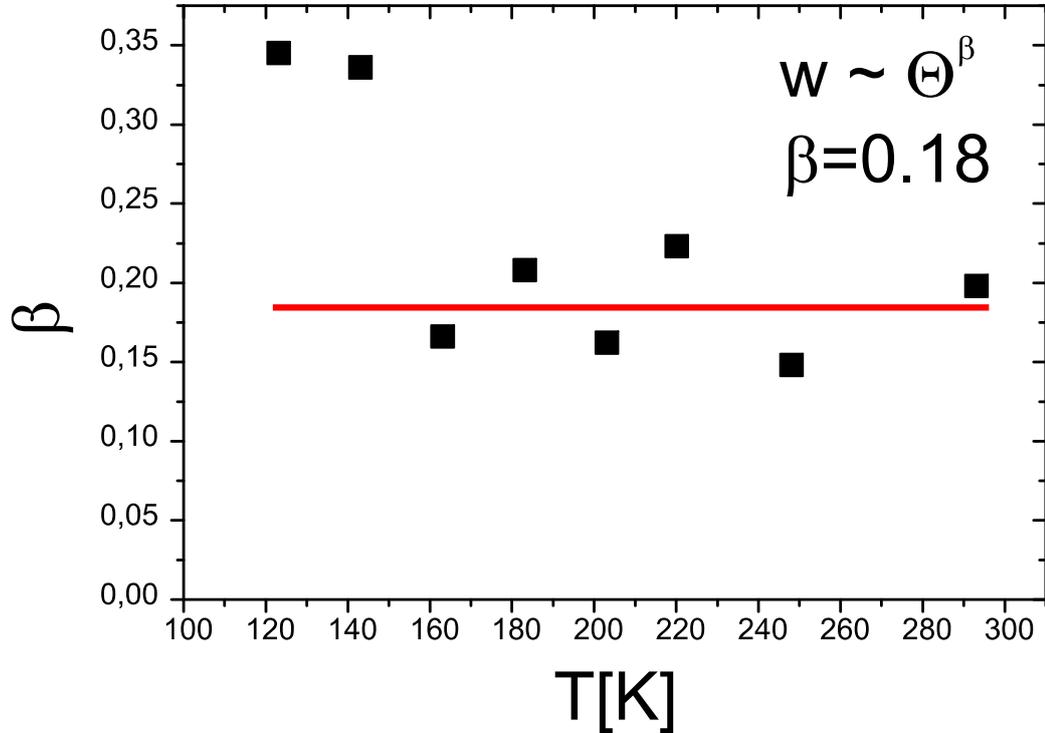


Abb. 3.7: Exponent  $\beta$  über Temperatur

wieder. Die Steigung bestimmt sich wie folgt:

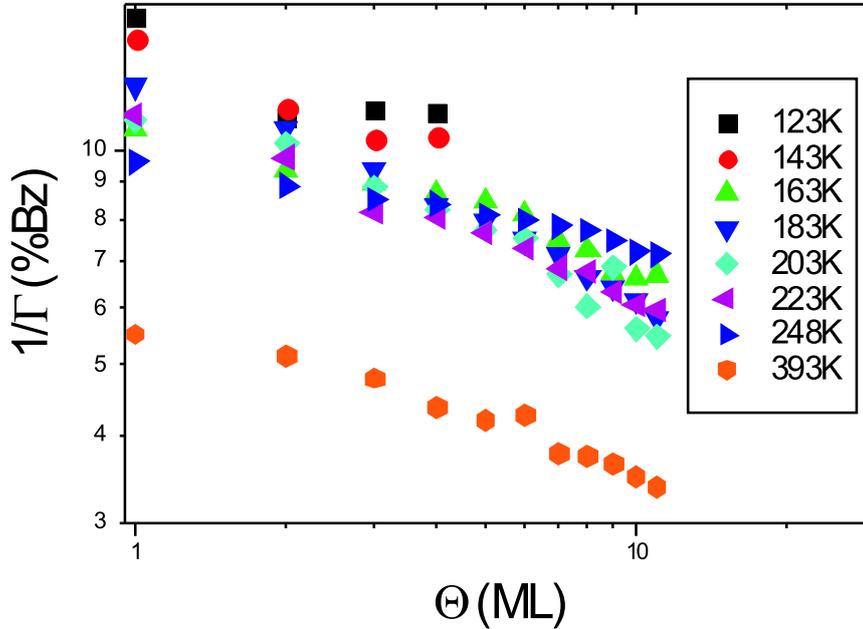
$$\text{Steigung} \propto \frac{d_{\text{Stufe}}}{\bar{\Gamma}} \quad (3.3)$$

Da die Stufenhöhe  $d_{\text{Stufe}}$  nach der Voraussetzung konstant ist, ist die Position des Satellitenreflexes  $k_0$  proportional zur Steigung  $m$  der Pyramiden (Facettenwinkel).

$$k_0 \propto m \quad (3.4)$$

Der Verlauf der  $k_0$ -Werte mit der Bedeckung  $\Theta$  für Temperaturen im Bereich 120K - 300K ist in Abbildung 3.8 in Form einer doppeltlogarithmischen Auftragung dargestellt. Der Abstand  $k_0$  der Satellitenreflexe vom (00)-Reflex (entsprechend die Steigung der Pyramiden  $m$ ) nimmt mit zunehmender Bedeckung in dieser Auftragung linear ab. Wie bei den RMS-Rauhigkeiten lassen sich auch hier Skalierungsgesetze entsprechend der Gleichungen 1.5 und 1.6 anpassen. Der Exponent des Skalierungsgesetzes für die Steigung  $m$  sei  $\mu$ . Für jede einzelne Temperatur ergibt sich aus der Steigung der dazugehörigen Tangente ein Koeffizient  $\mu$ . Dieser gibt das Verhalten der Steigung  $m$  der

### 3.3. BEDECKUNGS- UND TEMPERATURABHÄNGIGKEIT



**Abb. 3.8:** Satellitenpositionen  $k_0$  über der Bedeckung  $\Theta$  für verschiedenen Temperaturen 120K-290K

Pyramiden während des Wachstums wieder. Der Exponent  $\mu$  der Pyramidensteigung in Abhängigkeit von der Temperatur wird in Abbildung 3.9 gezeigt. Er liegt im untersuchten Temperaturbereich von 120K bis 300K konstant bei einem Wert  $\mu = -0,26$ . Die Steigung der Pyramiden verringert sich also im Laufe des Wachstums.

Bisher ist das Verhalten der Pyramidenhöhe und Pyramidensteigung diskutiert worden. Diese beiden Größen sind dem Experiment direkt zugänglich. Der Pyramidenabstand ist dem Experiment nur bedingt zugänglich. Bei Messung in Gegenphase-Bedingungen erhält man aus der Position der Schulter die mittlere Terrassenbreite. Nur Einfachstufen vorausgesetzt, ist die mittlere Terrassenbreite  $\bar{\Gamma}$  proportional zur Pyramidensteigung. Aus der Position der Schulter nahe der Inphase-Bedingungen ist direkt der Pyramidenabstand zu entnehmen. Aufgrund der instrumentellen Verbreiterung beträgt die Transferweite des SPA-LEED's ca.  $1500 \text{ \AA}$ , d.h. es können nur Größen unterhalb von  $1500 \text{ \AA}$  detektiert werden. Dieses begrenzt das Auflösungsvermögen für

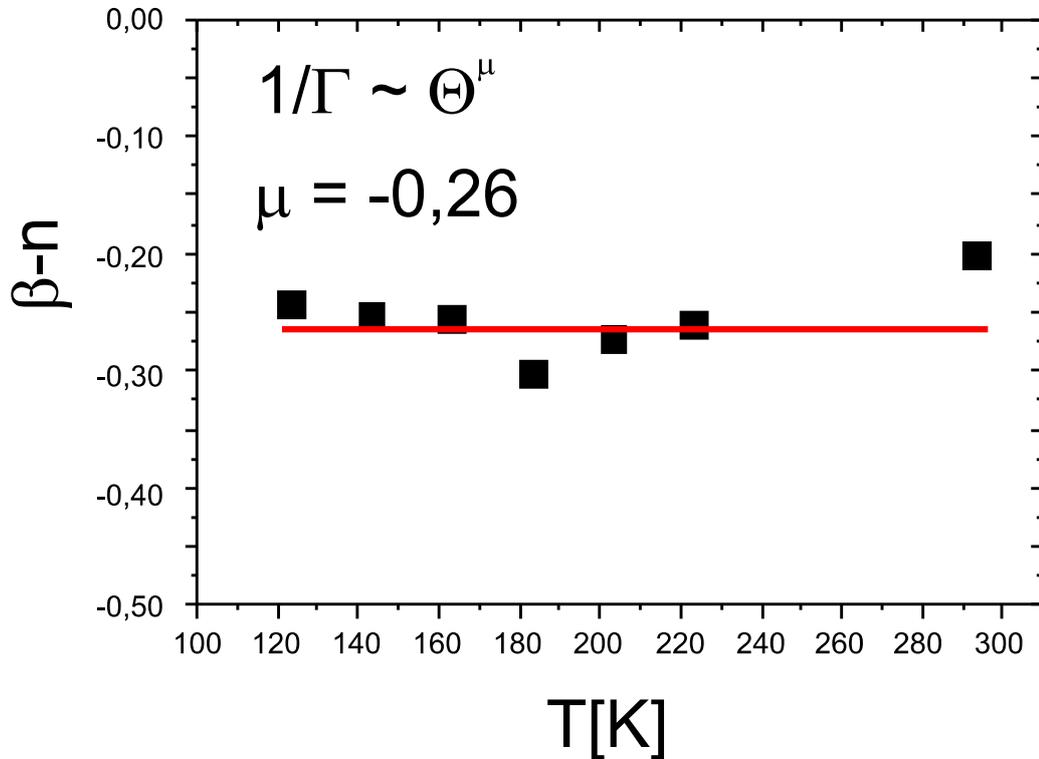


Abb. 3.9: Exponent  $\mu$  über Temperatur

Pyramidenabstände auf maximal 1500Å. Eine andere Möglichkeit ist eine indirekte Bestimmung des Pyramidenabstandes. Aus der Kombination von Pyramidensteigung und Pyramidenhöhe ist der Pyramidenabstand berechenbar.

Es gilt:

$$m \sim \frac{d}{\Gamma} \sim \frac{H}{L} \quad (3.5)$$

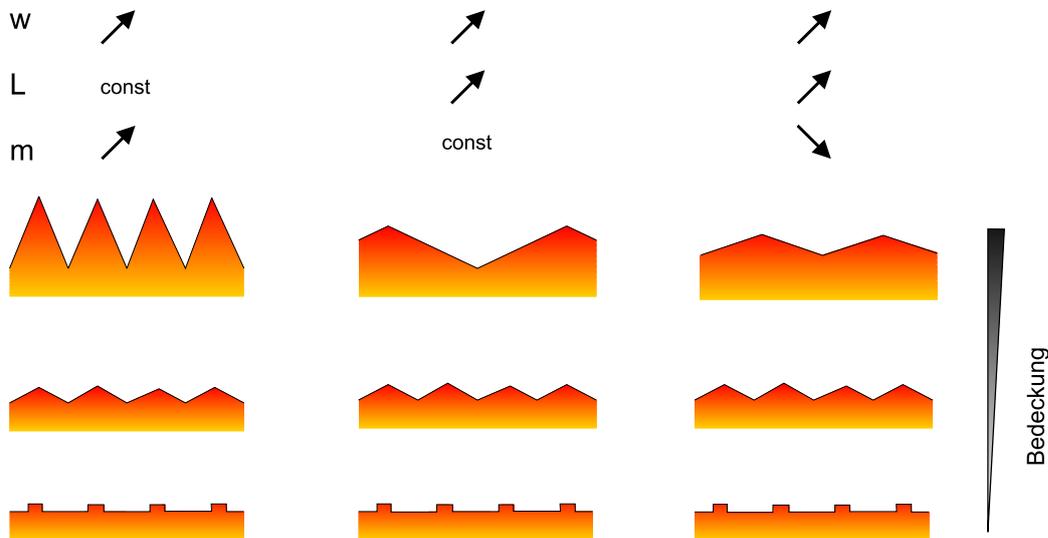
Hieraus ergibt sich unter Verwendung der Skalengesetze 1.5 und 1.6 für den Exponenten  $n$  des Pyramidenabstandes:

$$\Theta^\mu = \frac{\Theta^\beta}{\Theta^n} = \Theta^{\beta-n} \Rightarrow n = \beta - \mu \quad (3.6)$$

Im Temperaturbereich 140K- 300K beträgt der Exponent des Pyramidenabstandes  $n = 0.44$ . Für Temperaturen im Bereich von 120K - 140K beträgt  $n = 0.6$ .

### 3.4. DISKUSSION

---



**Abb. 3.10:** Modelle für das Pyramiden-Wachstum und die Entwicklung der Rauigkeit  $w$ , des Pyramidenabstandes  $L$  und der Steigung  $m$ .

### 3.4 Diskussion

Für das Pyramidenwachstum gibt es unterschiedliche Möglichkeiten des Verlaufes. Im wesentlichen sind drei Abläufe vorstellbar, die in Abb. 3.10 grafisch dargestellt sind:

- Der Pyramidenabstand bleibt während des Wachstums konstant. (Bild links) Demzufolge nimmt die Steigung der Pyramiden und auch deren Höhe stark zu. Dieses Pyramidenwachstum wird von der Keimbildungsphase stark beeinflusst, da diese den Pyramidenabstand vorgibt. (Abb. 3.10 links)
- Die Pyramidensteigung bleibt während des Wachstums konstant. (Abb. 3.10 mitte) Folglich nehmen Pyramidenabstand und -höhe zu. Die Keimbildung ist für das weitere Wachstum nicht mehr entscheidend.
- Die Pyramidensteigung nimmt ab. Pyramidenabstand und -höhe werden größer. (Abb. 3.10 rechts)

Die entscheidende Größe für die Auswahl des entsprechenden Pyramidenwachstums ist die Höhe der Ehrlich-Schwoebel-Barriere (ESB). Im ersten Fall ist die ESB groß. Atome, die sich auf einer Terrasse befinden, haben nicht die Möglichkeit, über die Stufenkante in tiefer gelegene Bereiche zu

### KAPITEL 3. NI(100) HOMOEPITAXIE

---

diffundieren. Hierdurch kommt es zu einem starken Wachstum in die Höhe. Es bilden sich sehr steile und hohe Pyramiden. Dieses ist experimentell im homoepitaktischen Wachstum von Ag/Ag(111) [33] und Pt/Pt(111) [27] realisiert.

Der Pyramidenabstand ändert sich nicht, da er durch den Keimabstand vorgegeben wird.

Im zweiten Fall ist die ESB etwas kleiner. Atome haben mit einer gewissen Wahrscheinlichkeit die Möglichkeit, über die Stufenkante zu diffundieren. In einem Spezialfall stellt sich dann ein Gleichgewicht der Flüsse. Das heißt, der Fluß von Atomen über die Stufenkanten in höhere Lagen ist genauso groß wie der Strom über die Stufenkanten in tiefere Lagen [9]. Es kommt zu einem gleichmäßigen Wachstum von Höhe und Abstand der Pyramiden. Hierbei ist

$$L \sim \omega, \quad (3.7)$$

wobei  $L$  der mittlere Pyramidenabstand und  $\omega$  die Rauigkeit ist. Die Steigung  $m$  der Pyramiden bleibt während des Wachstums konstant.

Im dritten Fall ist die ESB klein. Die Wahrscheinlichkeit, daß ein Atom beim Erreichen einer Stufenkante über sie hinweg diffundiert ist groß. Dadurch kommt es dazu, daß die anfänglich gebildeten Steigungen abnehmen. Pyramidenhöhe und -abstand steigen mit zunehmender Bedeckung an.

Im vierten, in der Grafik nicht gezeigtem, Fall ist die ESB vernachlässigbar klein. Die Atome können ungehindert über die Stufenkanten diffundieren und es kommt zu keinem Pyramidenwachstum. Das Wachstum findet dann im Lage-für-Lage Modus statt.

Beim Wachstum von Ni auf Ni(100) im Temperaturbereich von 160-290K tritt der dritte Fall auf. Für tiefere Temperaturen erhöht sich der Wert für den Pyramidenabstandsexponenten  $n$  von 0.44 auf 0.6 und der Pyramidenhöhenexponent  $\beta$  von 0.18 auf 0.34. Daß die Pyramidensteigung abnimmt, während die Pyramidenhöhe und der Pyramidenabstand steigt, ist ungewöhnlich. Die Pyramiden wachsen also sehr stark lateral, indem sie kleine Pyramiden überwachsen, gleichzeitig wachsen sie aber noch in der Höhe.

Eine mögliche Fehlerquelle stellt die Art der indirekten Bestimmung des Pyramidenabstandes dar. Es wird davon ausgegangen, daß die Pyramiden wirklich spitz sind und Pyramide direkt an Pyramide steht. Sind die Pyramiden oben leicht stumpf, wie es z.B bei der Homoepitaxie von Cu(100) [2] beobachtet wird, kommt es durch das angewendete Verfahren zu einer Unterschätzung des Abstandes um die Länge des stumpfen Pyramidenoberteils. Wenn die Pyramiden nicht direkt zusammenstehen führt dies ebenfalls zu

### 3.4. DISKUSSION

---

einer Unterschätzung des Pyramidenabstandes um hierbei den Pyramidenabstand minus der Länge des Pyramidenfusses.

Bei der Homoepitaxie von Ag [33] beträgt der Pyramidenhöhenexponent  $\beta = 0.17$  bei 300K und  $\beta = 0.28$  bei 200K. Diese Werte für  $\beta$  liegen in der gleichen Größenordnung wie für die Ni(100)-Homoepitaxie. Die  $\beta$ -Exponenten zeigen für diese beiden verschiedenen homoepitaktischen Systeme nur geringe Abweichungen. Das Verhalten der Pyramidenhöhen mit der Bedeckung bei unterschiedlichen Bedeckungen verhält sich für Ni und Ag ähnlich. Für die Cu(100) Homoepitaxie [2] bei Raumtemperatur ergibt sich für den Exponenten  $\beta$  ein Wert von 0.45. Dieser Wert liegt sehr nah an  $\beta = 0.5$ , was für statistisches Wachstum erwartet wird. Der Exponent  $n$  mit 0.25 ist im Gegensatz zur Ni(100)-Homoepitaxie um einen Faktor 2 kleiner. Diese Werte wurden aus SPA-LEED- und STM-Messungen gewonnen. Bei der Auswertung der SPA-LEED-Daten wurde von Zuo [2] angenommen, daß der Abstand des Satellitenreflex zum Hauptreflex umgekehrt proportional zum Pyramidenabstand ist. Im Gegensatz dazu wurde in der obigen Auswertung dieser Abstand als reziprok zur mittleren Terrassenbreite interpretiert. Aus der Terrassenbreite und der Stufenhöhe wurde die Steigung  $m$  der Pyramiden bestimmt. Aus der Kombination von Steigung und Pyramidenhöhe wurde der Pyramidenabstand indirekt bestimmt. Die Ergebnisse der SPA-LEED-Messungen von Zuo werden durch die STM-Messungen gestützt. Für die Fe(100)-Homoepitaxie (bcc Kristall) bei Raumtemperatur wurde für den Pyramidenabstandsexponent ein Wert von  $n = 0.16$  bestimmt.[3]

Nostrand [34] gibt für die Homoepitaxie von Ge(100) einen Pyramidenabstandsexponenten von  $n = 0.4$  an. Die aufgeführten Werte zeigen, daß für die unterschiedlichen Systeme unterschiedliche Werte für die einzelnen Exponenten gefunden werden. Ähnlichkeit mit der Ni(100)-Homoepitaxie hat hierbei das System Ag/Ag(100) für den Pyramidenhöhenexponenten und das System Ge/Ge(100) für den Pyramidenabstandsexponenten. Im Gegensatz zu den zitierten Arbeiten wurden in der vorliegenden Arbeit die Exponenten für einen kompletten Temperaturbereich vermessen, der sich von 200K bis Raumtemperatur erstreckt. Erstaunlich ist, daß die Pyramidenkenngrößen über den größten Teil des untersuchten Temperaturbereichs konstant sind. Nur zu tiefen Temperatur steigt der Wert für  $\beta$  an, wie es von der Theorie vorhergesagt wird. Eine Änderung der Pyramidenkenngrößen mit der Temperatur, wäre auch aufgrund des Submonolagenverhaltens zu erwarten gewesen. Die Inselnichten, und damit die Inselabstände, variieren stark mit der Temperatur. Diese bilden aber den Ausgangspunkt des Wachstums der Pyramiden und sollten somit einen starken Einfluß auf das Wachstum haben, welches sich aber nicht in den Messungen wiederfindet. Nur das Verlassen der Aus-

### KAPITEL 3. NI(100) HOMOEPITAXIE

---

gleichsgeraden in Bild 3.4 unterhalb von 150K findet sich als Ansteigen des Wertes  $\beta$  von 0.18 zu 0.34 (Abb.3.7) wieder. Der Exponent  $\mu$  zeigt hier keine Änderungen Die Änderung der Steigung in Bild 3.4 bei 220K hat auf den Exponenten  $\beta$  oder  $\mu$  keinen Einfluß.

---

# Kapitel 4

## MgO/Ag(100)

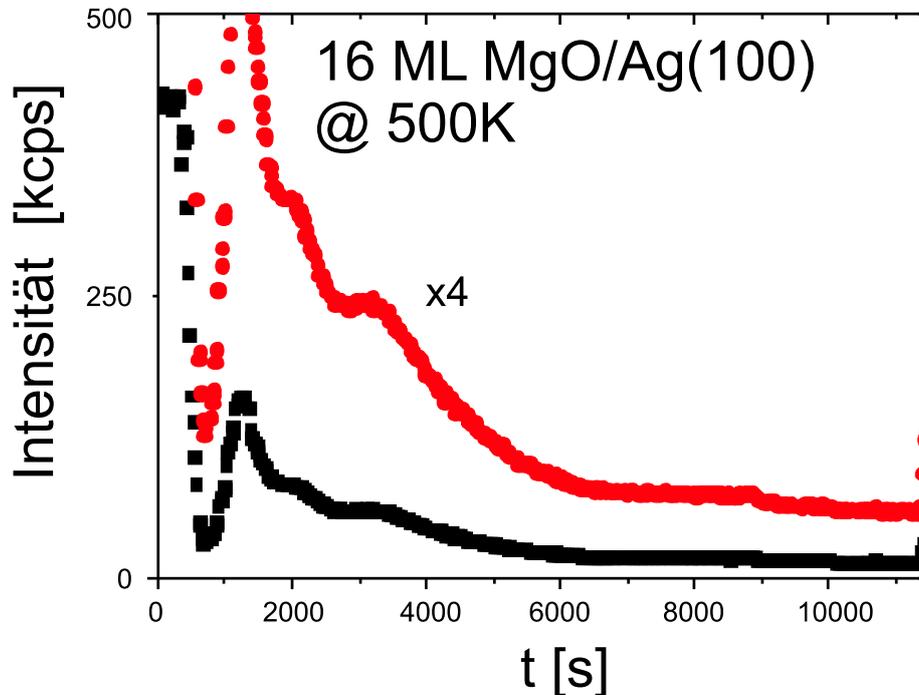
Oxide sind, wie in der Einleitung diskutiert, in vielerlei Hinsicht interessant. MgO auf unterschiedlichen Substraten wurden schon in einigen Diplom- und Doktorarbeiten untersucht [35, 36, 37]. Eine Betrachtung der Gitterkonstanten zeigt, daß die Kombination MgO mit Silber als Substrat besonders attraktiv ist, da hier die Gitterfehlpassung nur 2.9% beträgt. D. Erdös [36] hat dieses System im Temperaturbereich von 200K-500K mit SPA-LEED untersucht. Im Folgenden werden Messungen mit SPA-LEED und STM im Temperaturbereich 500K-700K vorgestellt. Außerdem werden SXRD-Messungen bei Raumtemperatur gezeigt.

### 4.1 SPA-LEED Untersuchungen

Im Folgenden werden SPA-LEED Messungen zum Wachstum von MgO auf Ag(100) bei Temperaturen oberhalb zwischen 500K und 700K vorgestellt.

#### 4.1.1 Messungen bei 500K

Bei 500K wurden 16 ML MgO reaktiv bei einem Sauerstoffpartialdruck von  $p_0 = 1 \times 10^{-6}$  mbar auf einer Ag(100) Oberfläche gewachsen. Der Intensitätsverlauf des spekularen Reflexes über der Zeit bei Gegenphase zeigt nach Öffnen des Shutters einen starken Abfall der Intensität (siehe Abb. 4.1). Diese steigt dann wieder an und erreicht bei 1200 Sekunden ihren Maximalwert. Ab da fällt die Intensität unter zwei leichten Oszillationen bei 2200 und 3200 Sekunden kontinuierlich ab. Zu höheren Bedeckungen treten keine weiteren Oszillationen auf und die Intensität erreicht einen Sättigungswert.



**Abb. 4.1:** Während des Aufdampfens von 16ML MgO auf Ag(100) bei 700K gemessene Spitzenintensität des spekularen Beugungsreflexes.

Die anfängliche Änderung der Intensität kann durch die Bedeckung der Ag Oberfläche mit MgO und der damit verbundenen Änderung des Formfaktors erklärt werden. Im Folgenden zeigen die Oszillationen, daß sich die ersten Lagen schließen. Da die Intensität nach den beiden Oszillationen weiter abnimmt, ist davon auszugehen, daß die Fläche noch weiter aufrauhet. Schließlich ist die Aufrauhung der Fläche beendet und ein Wachstum bei gleichbleibender RMS-Rauhigkeit und demgemäß konstanter Intensität setzt ein.

Die Untersuchung der Phasenabhängigkeit der Reflexprofile bei einer Bedeckung von 16ML zeigt, daß sich Mosaike ausgebildet haben. Die Reflexe zeigen bei einem Schnitt durch die [11]-Richtung eine Schulter, die zu höheren Phasen eine Zunahme ihrer Halbwertsbreite zeigt. Eine Auswertung der Halbwertsbreite der Schulter nach Gleichung 1.50 ( Mosaik ohne Vorzugsrichtung) aus den Reflexprofilen ergibt für den mittleren Mosaikwinkel einen Wert von  $\Theta = 1.7^\circ$ .

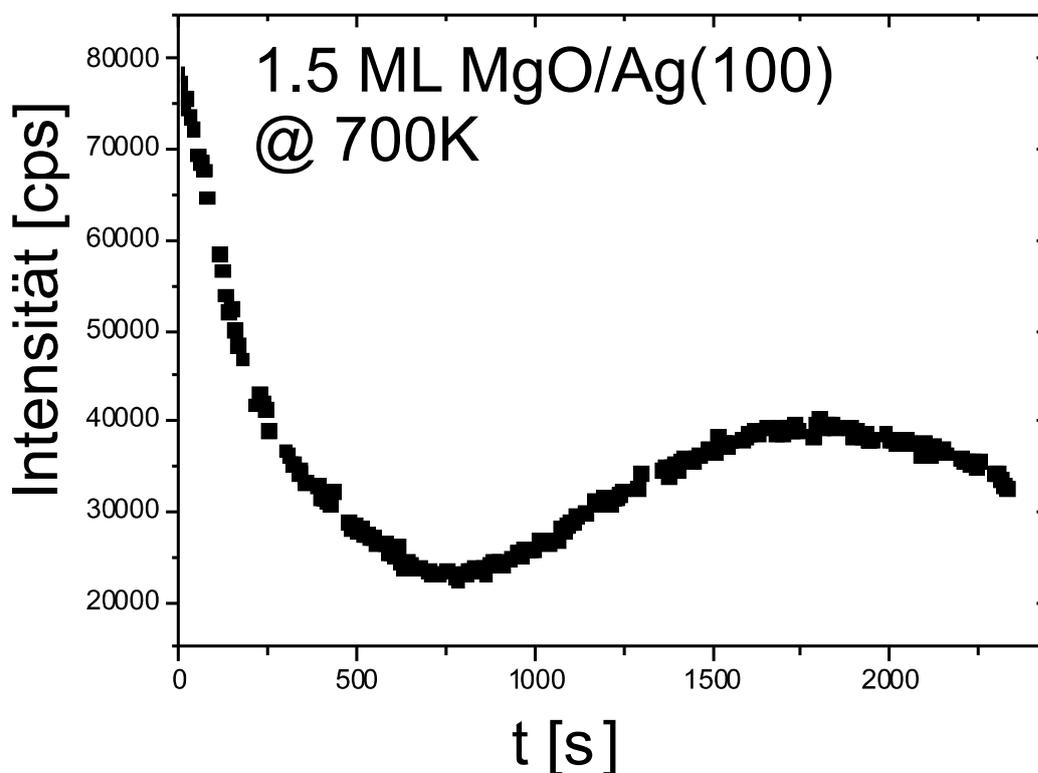


Abb. 4.2: Oszillationskurve 1.5ML 700K

### 4.1.2 Ergebnisse der Messungen bei 700K

#### 1,3 ML Bedeckung

Ähnlich wie bei der 500K Messung fällt auch hier die Intensität des (00)-Reflexes zu Beginn des Wachstums mit zunehmender Bedeckung steil ab, da sich der Formfaktor stark ändert. In der Auftragung der Intensität über die Bedeckung, s. Abb. 4.2, ist bei 1ML, aufgrund des Schließens einer Lage, ein Maximum der Intensitätskurve zu sehen. Danach beginnt die Intensität zu fallen.

Die bei 1,3 ML in interner Geometrie gemessenen Reflexprofile zeigen keine ringartige Schulter. Die Profile lassen sich durch zwei Lorentzfunktionen, eine für die zentrale Spitze und eine für die Schulter beschreiben. Die Halbwertsbreite der Schulter über der Phase ist konstant. Es gibt also weder Mosaik mit noch ohne Vorzugsrichtung.

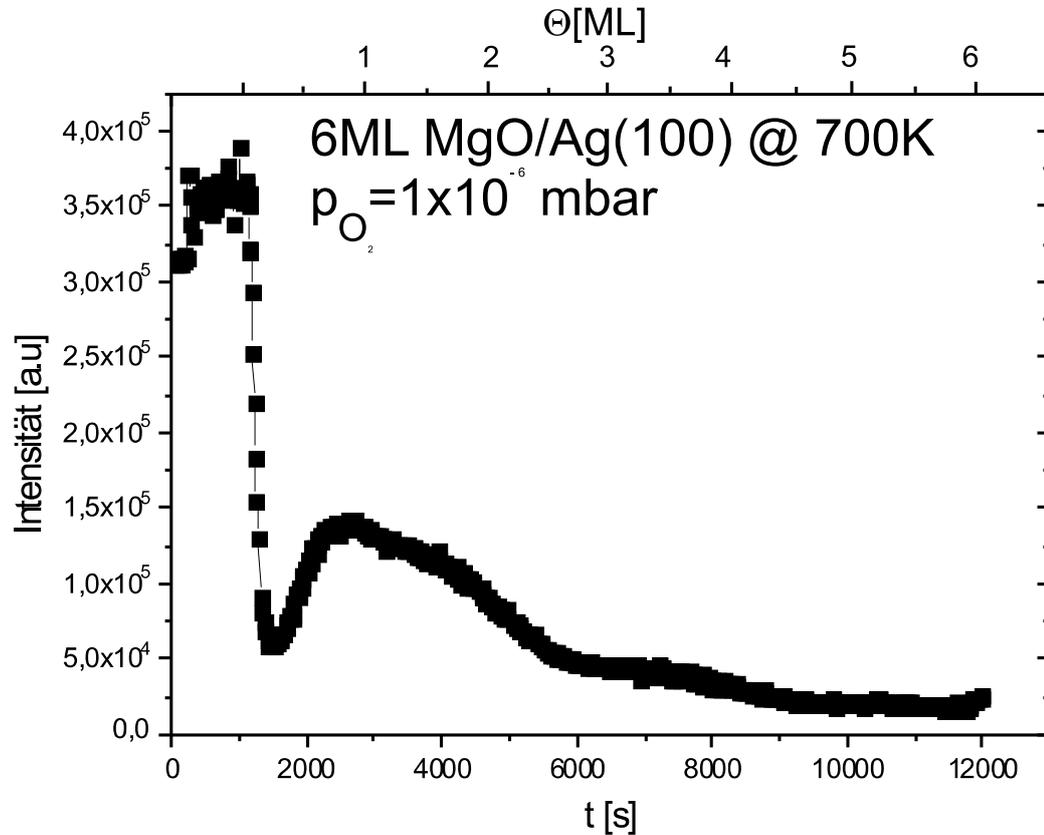


Abb. 4.3: Oszillationskurve 6ML 700K

### 6ML Bedeckung

Auch hier nimmt die Intensität des (00)-Reflexes in der Anfangsphase des Wachstums stark ab. Es kommt zu einigen schwachen Oszillation der Intensität, an denen zu erkennen ist, daß ein gestörtes Lage-für-Lage Wachstum, d.h. eine leichte Aufrauung der Oberfläche vorliegt.

Die Untersuchung der Oberfläche nach dem Aufbringen von 6ML MgO zeigt in Abb. 4.4 gezeigten Beugungsbild eine streifige Intensitätsverteilung die vom (00)-Reflex weg in [11]- und  $[1\bar{1}]$ -Richtung verlaufen. In den [10]-artigen Richtungen sind nur sehr schwache Intensitäten zu erkennen. In der Phasenabhängigkeit der Reflexprofile in [11]-Richtung (siehe Abb. 4.5) sind 3 ringartige Schultern zu erkennen, deren Position mit steigender Phase zu größeren  $k_{\parallel}$ -Werten läuft, siehe Abb. 4.6. Die innerste ringartige Schulter ändert ihre Position mit steigender Phase nicht. Die Bestimmung der Position der Schultern ergibt die in Tabelle 4.1 aufgeführten Mosaikwinkel.

#### 4.1. SPA-LEED UNTERSUCHUNGEN

---

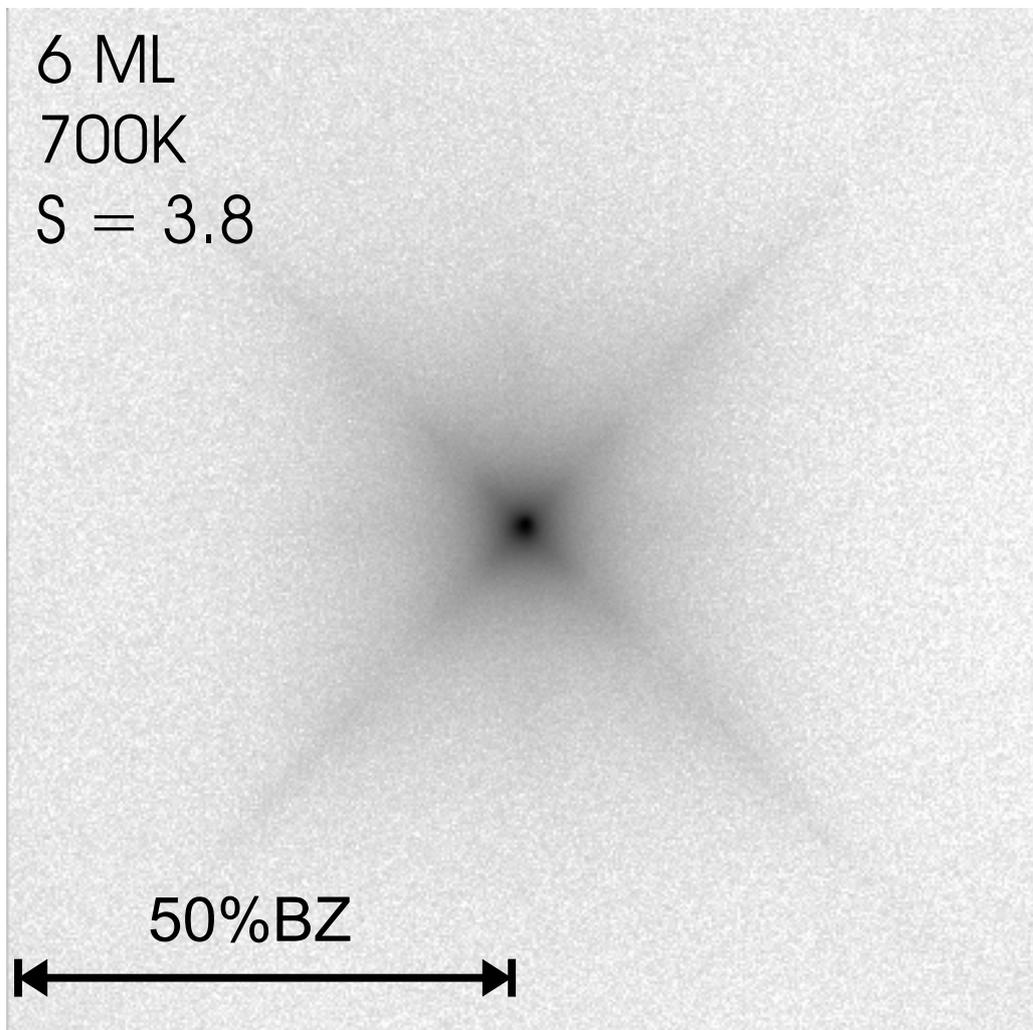


Abb. 4.4: 2D Beugungsbild des (00)-Reflexes

Winkel	Sat1	Sat2	Sat3	Sat4
$\theta$	3.3°	2.5°	1.5°	0.8°

Tab. 4.1: Kippwinkel der Mosaike für einen 6ML dicken MgO/Ag(100) Film, der bei 700K hergestellt wurde.

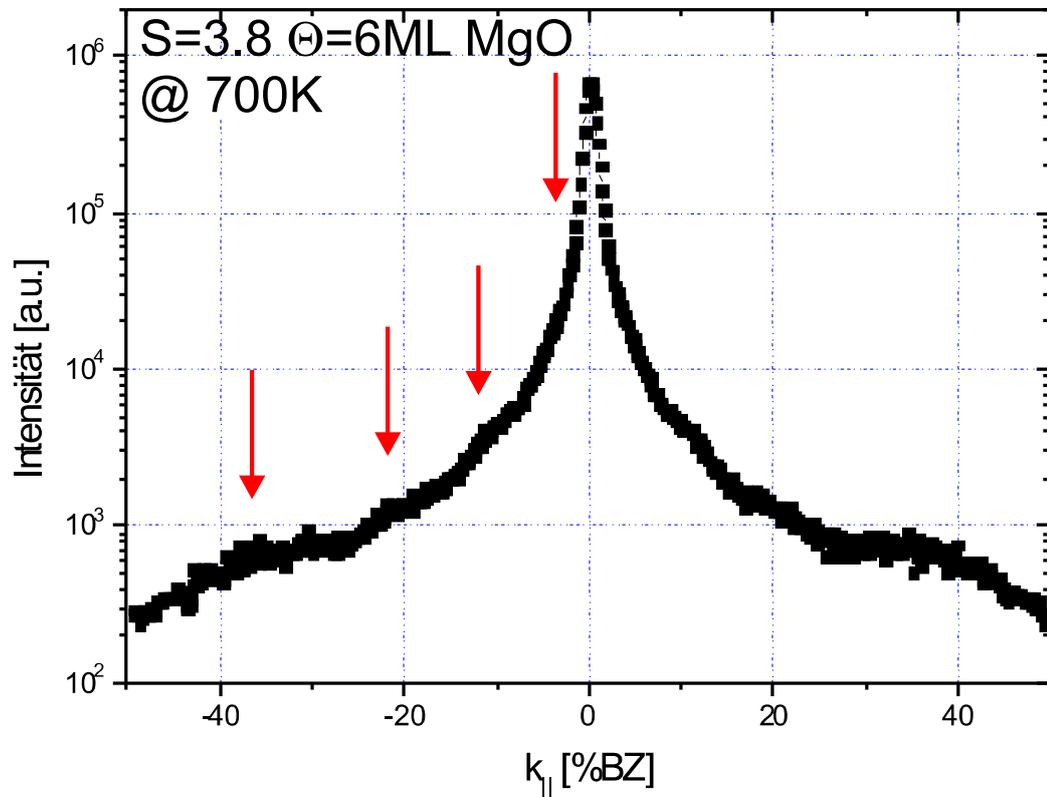


Abb. 4.5: 1D Profile in (11)-Richtung bei 6ML und 700K

Die ortsfeste Schulter rührt wahrscheinlich von einem Versetzungsnetzwerk mit einer Perodizität von  $80\text{\AA}$  her.

### 4.1.3 Auswirkung der Gitterfehlانpassung: Pseudomorphes Wachstum

Um das Entstehen von Mosaiken und die damit verbundenen Versetzungen zu verstehen, ist es wichtig, das Verhalten der Gitterkonstanten des MgO Films während des Wachstums zu untersuchen. Da ein LEED-Experiment nur auf die oberste Lage sensitiv ist, liefert es ausschließlich Informationen über die laterale Gitterkonstante der obersten Lage. Durch Aufnahme von Schnitten in externer Geometrie während des Wachstums, die sowohl durch den (00)-Reflex als auch durch den  $(\bar{1}0)$ -Reflex gehen, ist es möglich, die Gitterkonstante während des Wachstums zu vermessen. Abbildung 4.7 zeigt den Abstand des (00)-Reflexes zum  $(\bar{1}0)$ -Reflex in Abhängigkeit von der Bedeckung. Zu Beginn des Wachstums von MgO entspricht dieser Abstand der

#### 4.1. SPA-LEED UNTERSUCHUNGEN

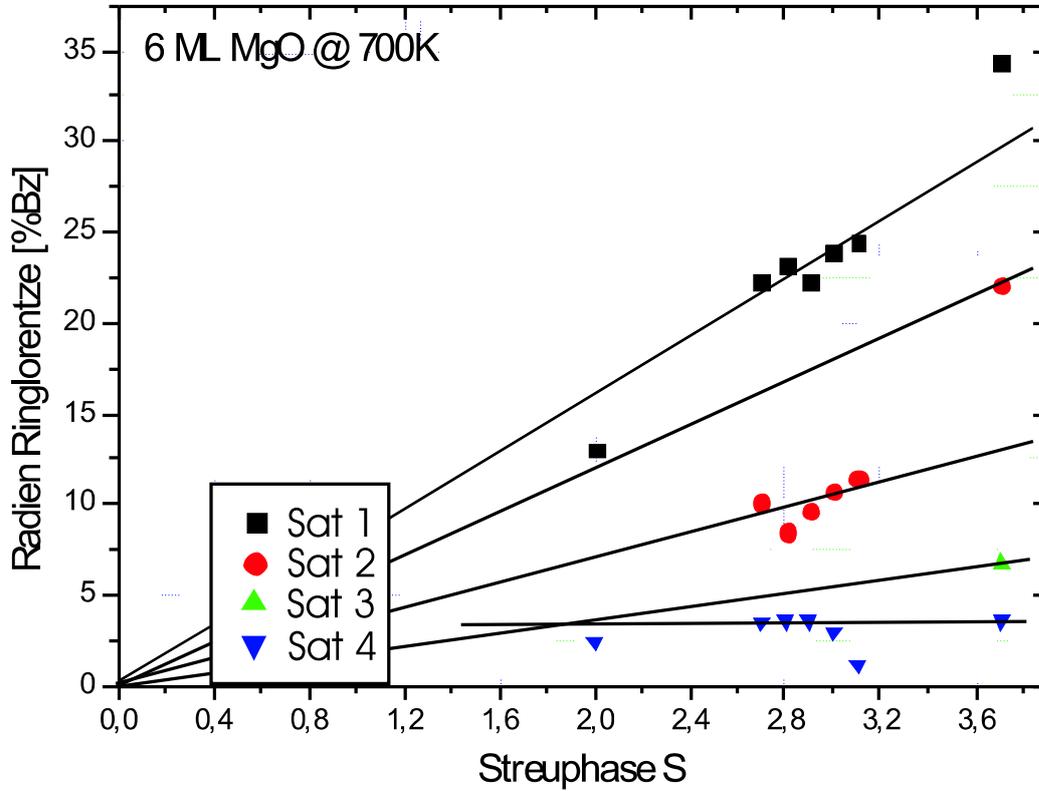
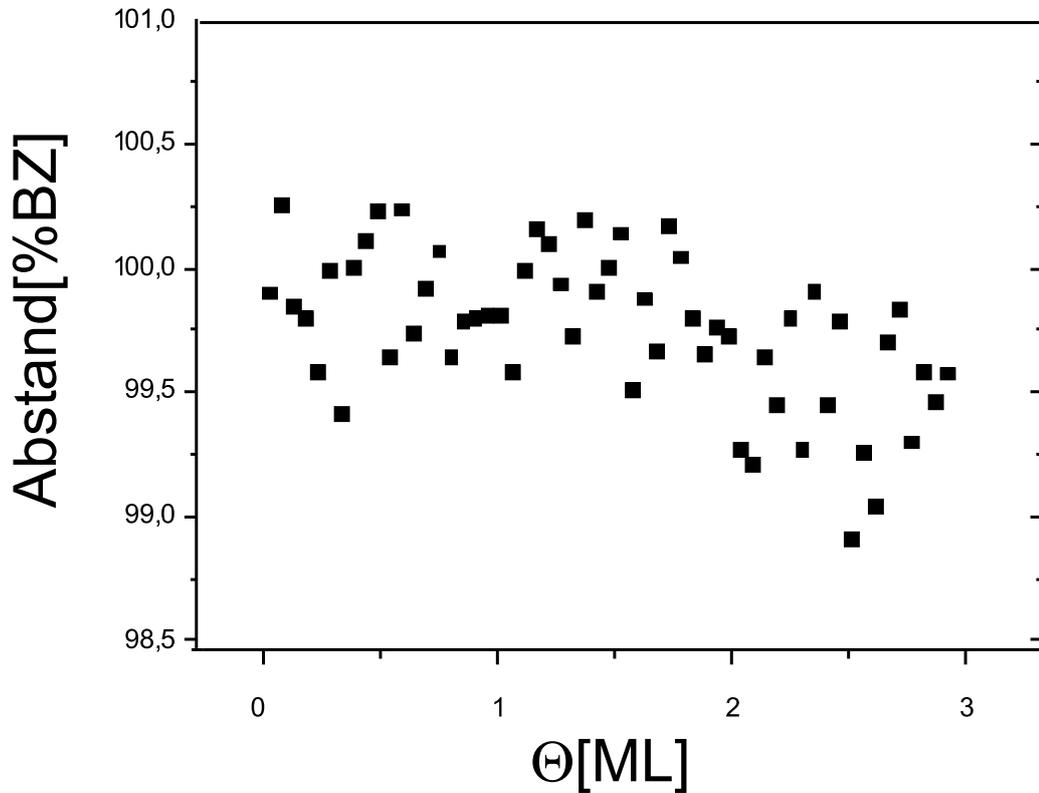


Abb. 4.6: Auswertung der Profile bei 6ML u. 700K

Gitterkonstante des Ag Substrates. Beim Schließen der ersten Lage, ab der nur noch der MgO Film in die Beugungsprofile eingeht, ändert sich der Abstand der beiden Reflexe noch nicht. Eine Änderung tritt erst nach dem Aufbringen von 2ML MgO auf. Der Abstand ändert sich um 0.5%BZ auf 99.5%BZ. Daraus folgt, daß MgO bei 700K zuerst in Doppellagen pseudomorph verspannt aufwächst. Nach dem Schließen der Doppellage beginnt der Film teilweise zu relaxieren. Statt sich um 3% BZ zu ändern, was dem Ausgleich der gesamten Gitterfehlanspassung entsprechen würde, ändert sich die Gitterkonstante nur um 0.5%BZ. Eine vollständige Relaxation der MgO-Schicht tritt bei Wachstumstemperaturen von 700K wahrscheinlich erst bei sehr viel höheren Bedeckungen auf.

Die Untersuchung der Änderung der Gitterkonstante beim Wachstum von MgO auf Ag(100) bei Raumtemperatur ist in Abbildung 4.8 dargestellt. Zu Beginn der Messung entspricht der Abstand zwischen dem (00)-Reflex und dem ( $\bar{1}0$ )-Reflex 100% der Ag-Gitterkonstante. Dieser bleibt für die ersten beiden aufgetragenen Monolagen konstant. Auch bei Raumtemperatur



**Abb. 4.7:** Vermessung der Gitterfehlpassung bei einer Wachstumstemperatur von 700K und Bedeckungen bis zu 3ML

wächst MgO demnach zunächst in einer Doppellage pseudomorph verspannt auf. Im weiteren Verlauf des Wachstums nimmt der Abstand der beiden Reflexe leicht ab und erreicht bei 6ML einen Wert von 98.5%BZ. Danach nimmt der Abstand der Reflexe etwas stärker ab um bei 10 ML in einen konstanten Wert überzugehen. Der MgO Film ist bei 10 ML Dicke fast vollständig relaxiert. Dieser Prozeß wird von der Energiebilanz zwischen Verspannungsenergie und Energie der Mosaikie getrieben. Schon nach wenigen Lagen ist die Verspannungsenergie, die durch das pseudomorphe Wachstum hervorgerufen wird, so groß, daß erste Mosaikie entstehen. Hierbei wird Verspannungsenergie in die Erzeugung von Mosaikie, die die MgO-Schicht entspannen, überführt. Für die Erzeugung der Mosaikie ist eine Mindestmenge an Energie notwendig, daher kommt es zuerst zu einem verspannten Wachstum. Die Gesamtenergie wird durch Erzeugung von Mosaikie reduziert.

## 4.1. SPA-LEED UNTERSUCHUNGEN

---

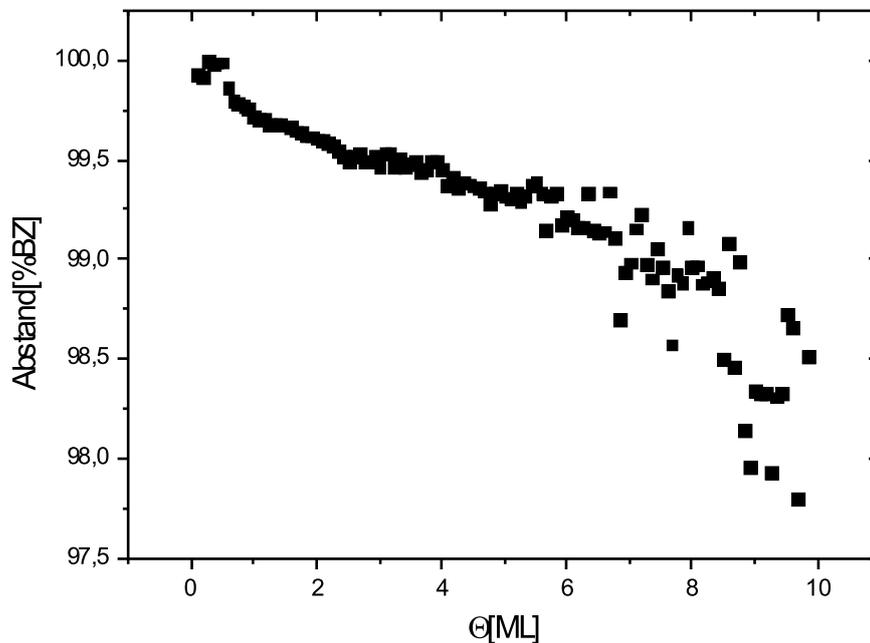


Abb. 4.8: Vermessung Misfit bei Raumtemperatur bis 10ML

### 4.1.4 Vergleich mit Messungen im Temperaturbereich 200K-500K

Bei SPA-LEED Messungen von D. Erdös [36] wurde das Wachstumsverhalten von MgO/Ag(100) im Temperaturbereich 300-500K studiert. Für die Wachstumsmodi von MgO auf Ag(100) wurde bei 200K ein gestörtes Lage-für-Lage Wachstum, bei 350K ein Lage-für-Lage Wachstum und bei 500K ein step-flow Wachstum beobachtet. Die oben beschriebenen Messungen zeigen im Gegensatz dazu für 500K und 700K ein gestörtes Lage-für-Lage Wachstum. Auf Grund der Messungen bei tiefen Temperaturen wäre für die hohen Temperaturen auch ein step-flow Wachstum erwartet worden. Bei den tiefen Temperaturen kommt es während des Wachstums auf Grund der unterschiedlichen Gitterkonstanten auch zu einem pseudomorph verspannten MgO-Film. Wie im vorherigen Abschnitt gezeigt, relaxiert auch dieser Film mit steigenden Bedeckungen durch Ausbildung von Mosaiken. Dieses zeigt sich in Beugungsbildern 4.4 dadurch, daß Satellitenreflexe in [11]-artigen Richtungen neben dem (00)-Reflex auftreten. Im Gegensatz zu den hohen Temperaturen ( $> 500K$ ), sind die Satellitenreflexe bei tieferen Temperaturen stärker ausge-

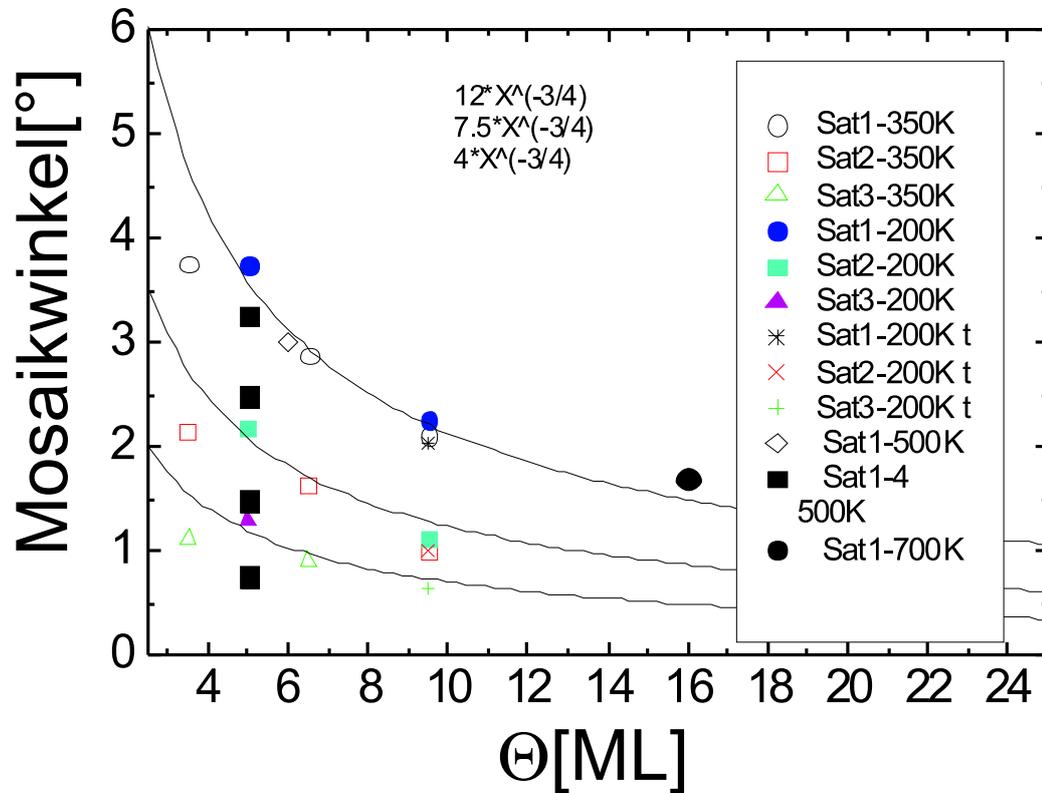


Abb. 4.9: Mosaikwinkel in Abhängigkeit der Bedeckung für verschiedene Temperaturen

prägt. Die von D. Erdös gemessenen Mosaikwinkel sind in Abhängigkeit von der Bedeckung in Abb.4.9 dargestellt. Das prinzipielle Verhalten ist, daß die Mosaikwinkel mit zunehmender Bedeckung kleiner werden. Dieses Verhalten folgt dem Potenzgesetz  $\Theta^{3/4}$ . Eine Potenz von  $3/4$  entspricht dem erwarteten Verhalten bei einer Balkenverbiegung der MgO-Schicht. In dieser Grafik sind zusätzlich mit schwarzen Karos die Mosaikwinkel der 6ML dicken MgO-Schicht bei 700K eingetragen. Mit schwarzem Kreis ist der Winkel der 16 ML in diese Grafik eingetragen. Für beide Temperaturen weisen die gemessenen Mosaikwinkel eine gute Übereinstimmung mit den Ergebnissen der Messungen bei Temperaturen unter 500K und den theoretisch aus dem Modell der Balkenverbiegung erwarteten Potenzgesetz mit einer Potenz von  $3/4$  auf.

Die Mosaikwinkel sind also nur von der Bedeckung und nicht von der Temperatur abhängig. Selbst für hohe Temperaturen, wie z.B. bei 700K, liegen die Mosaikwinkel auf den erwarteten Kurven.

In Abbildung 4.10 ist der Augerkoeffizient für Ag/O über der Frequenz des

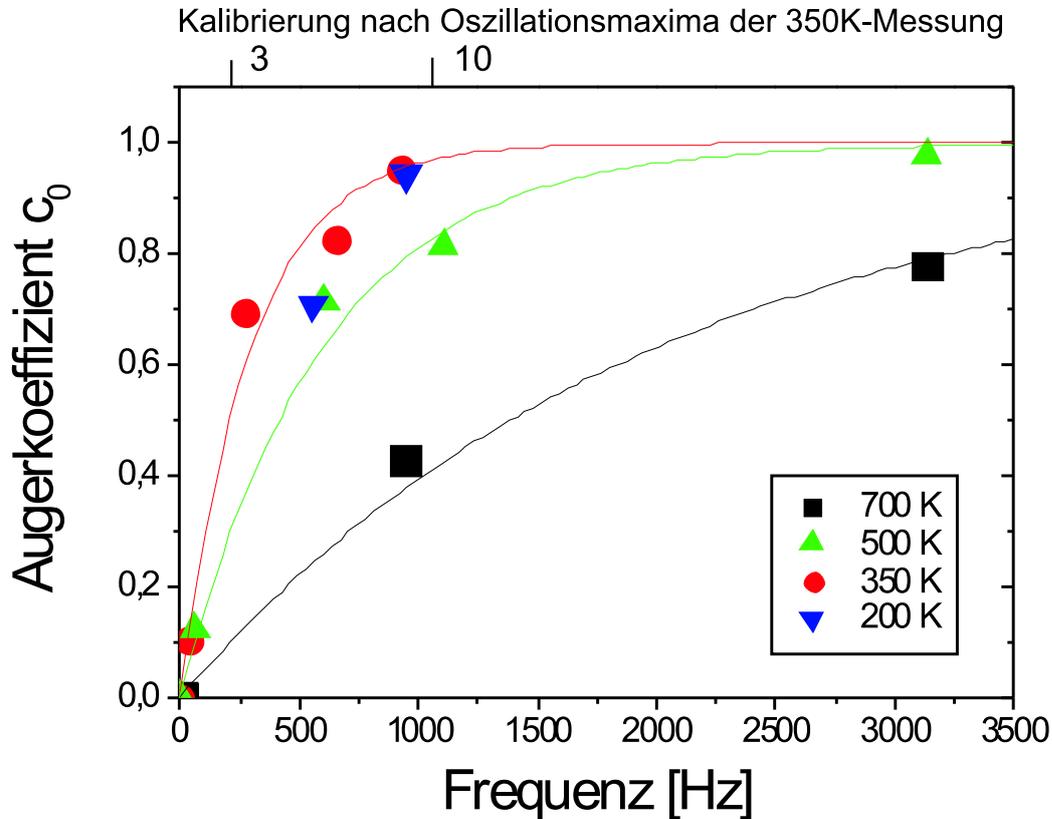


Abb. 4.10: Ergebnisse der Augermessungen

Schwingquarzes des Mg-Verdampfers für unterschiedliche Temperaturen aufgetragen. Die zu einer Temperatur gehörenden Meßwerte zeigen eine  $1 - e^{-f}$  Abhängigkeit von der Frequenz  $f$  des Schwingquarzes. Diese Funktion wird zu hohen Temperaturen hin immer flacher. Das bedeutet, daß zum Aufbringen einer Monolage MgO mit steigender Substrattemperatur immer mehr Mg angeboten werden muß. Eine Erklärung für diese Beobachtung ist, daß ein Teil des angebotenen Mg nicht am Wachstum teilnimmt. Einerseits könnte es nach Adsorption auf der Oberfläche sofort wieder desorbieren. Andererseits besteht die Möglichkeit, daß das Mg mit dem Ag-Substrat eine Legierung bildet.

## 4.2 XRD-Messungen

Die LEED-Untersuchungen von MgO Filmen können nur Aussagen über die obersten Lagen einer Schicht geben, da die Eindringtiefe der niederener-

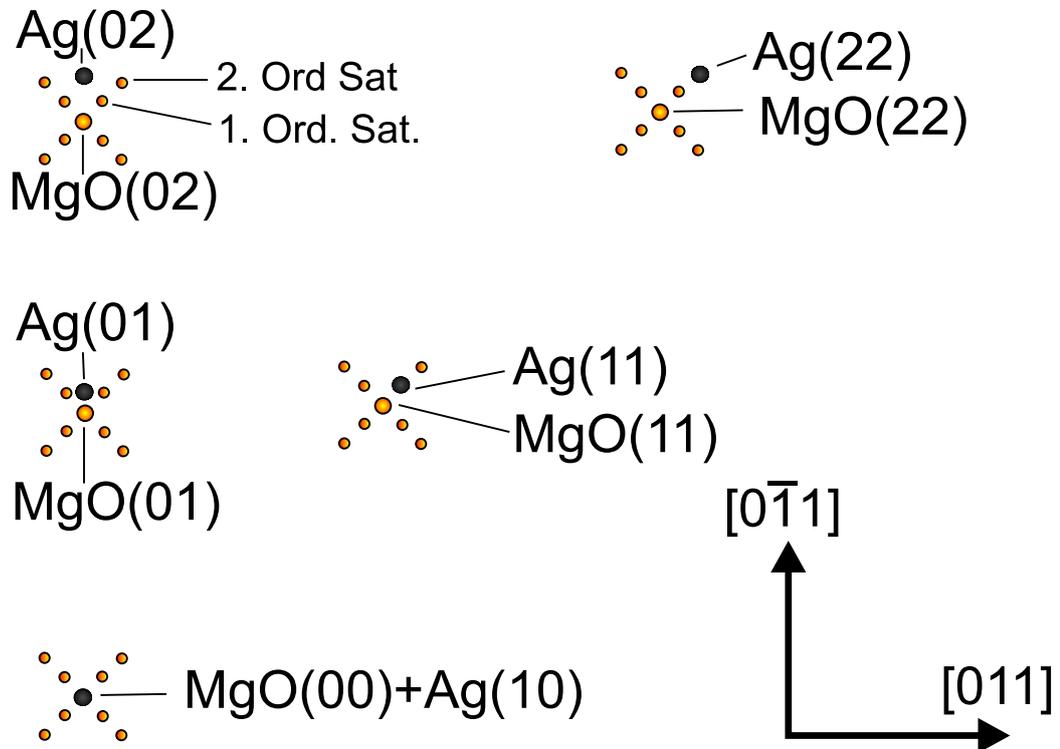


Abb. 4.11: Erwartete Position von Beugungsreflexen von MgO und Ag

getischen Elektronen nur wenige Atomlagen beträgt. Wie in den vorangehenden Abschnitten gezeigt wurde, entstehen beim Wachstum von MgO auf Ag(100) Mosaik. Dem LEED-Experiment bleibt dabei die Grenzfläche Ag/MgO verschlossen. Röntgenstrahlung hat eine größere Eindringtiefe als niederenergetische Elektronen und kann somit auch Informationen über die innere Struktur der Filme und der Grenzfläche liefern. Durch XRD-Messungen bei streifendem Einfall läßt sich die Empfindlichkeit der Röntgenbeugung auf oberflächennahe Bereiche deutlich erhöhen.

#### 4.2.1 Ergebnisse der XRD-Messungen

In Abbildung 4.11 ist die zu erwartende Situation im  $k$ -Raum bei der Röntgenbeugung an einer auf Ag(100) gewachsenen MgO Schicht dargestellt. An einer 8 ML dicken MgO Schicht auf Ag(100), die bei einer Temperatur von 300K gewachsen wurde, wurde die XRD-Messung durchgeführt. Ein Schnitt durch den Ag(11)-Reflex wird in Abb. 4.12 gezeigt. Der Schnitt geht in  $[11]$ -Richtung und endet am Ag(11)-Reflex. Das Maximum des Ag(11)-Reflexes

## 4.2. XRD-MESSUNGEN

---

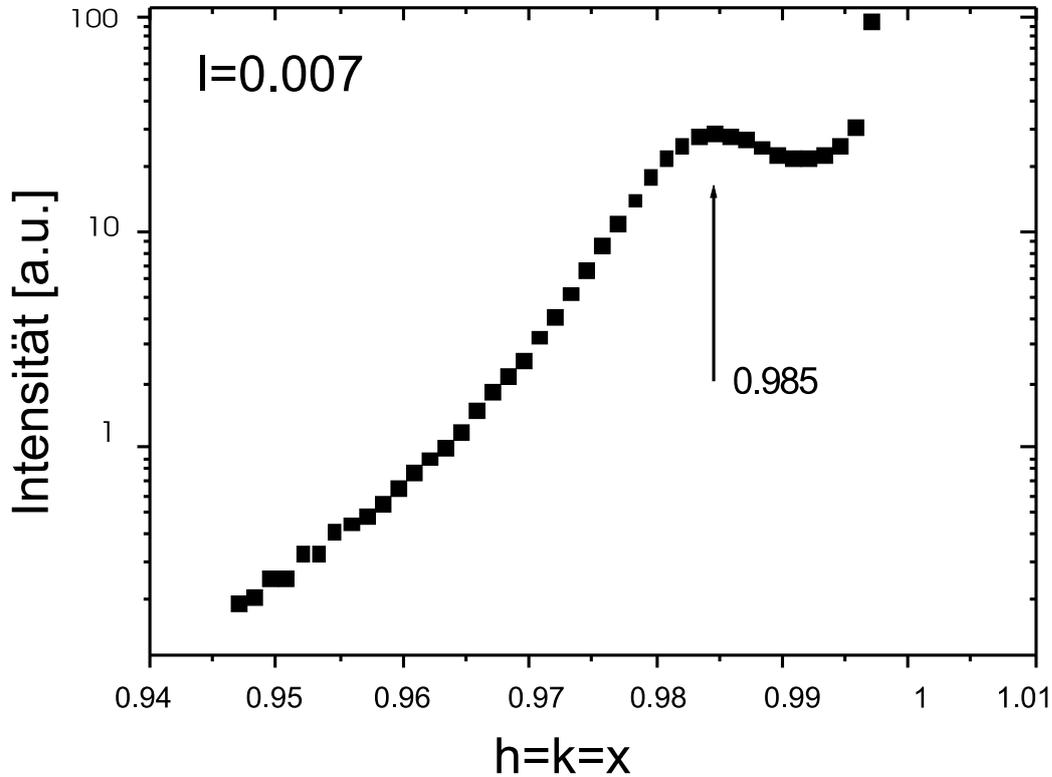


Abb. 4.12: Eindimensionaler Schnitt durch den 11 Reflex

ist in der Abbildung nicht mehr zusehen, da es ausgeblendet wurde, um den Detektor zu schützen. Bei der Position 0.985 ist ein Satellitenreflex zu beobachten. Dieser Satellitenreflex entspricht dem MgO(11)-Reflex. Die aufgrund des Modells erwarteten Mosaikreflexe bei kleineren Werten sind nicht zu erkennen. Die Position des MgO-Reflexes zeigt, daß der MgO Film verspannt aufgewachsen ist. Er ist statt um 3% nur um 1.5% relaxiert und somit nur teilweise entspannt. Dieser Wert der lateralen Gitterkonstante des MgO Filmes steht in guter Übereinstimmung mit den Messungen der Gitterkonstante in Abhängigkeit von der Bedeckung mit dem SPA-LEED. Auch dort wurde ein Wert von 1,5% für die Relaxation gemessen.

Die Messungen in  $k_{\perp}$ -Richtung, die auch als CTR bezeichnet werden, weisen für die MgO(11)-Stange, wie in Abb. 4.13 zu sehen ist, Oszillationen auf. Der CTR hat die im Kapitel 2 beschriebene  $1/\sin^2$  Form mit zusätzlichen Oszillationen. Die Anzahl der Oszillationsmaxima ist 8, woraus die Dicke der MgO Schicht zu 8ML bestimmt werden kann. Der in der gleichen Abbildung oben zu sehende Ag(11)-CTR weist ebenfalls Oszillationen auf, die aber erheblich schwächer als bei dem MgO(11)-CTR sind. Im Modell des re-

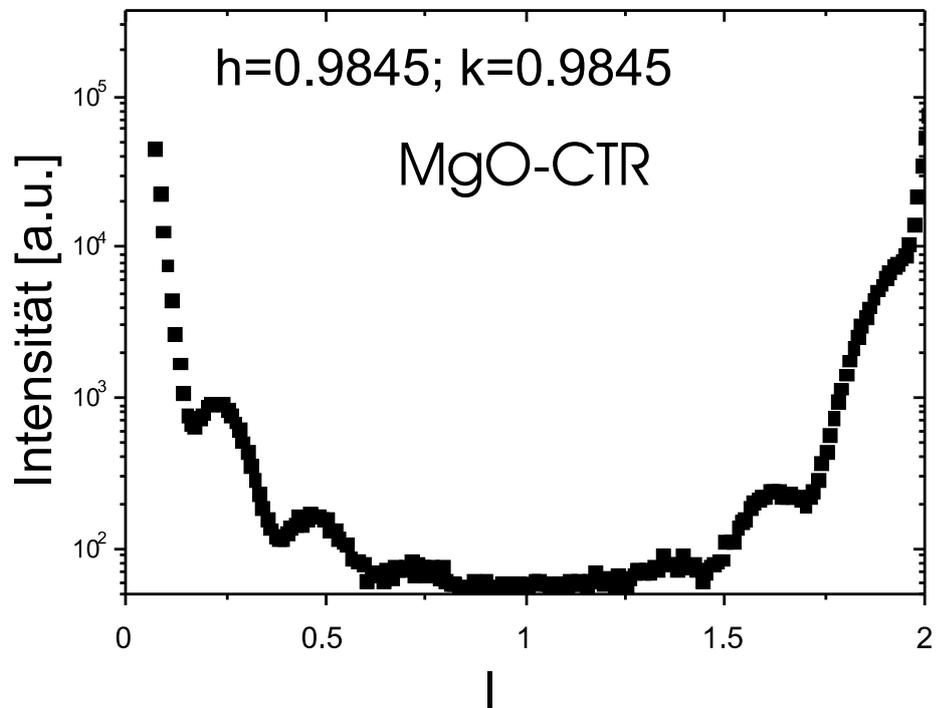
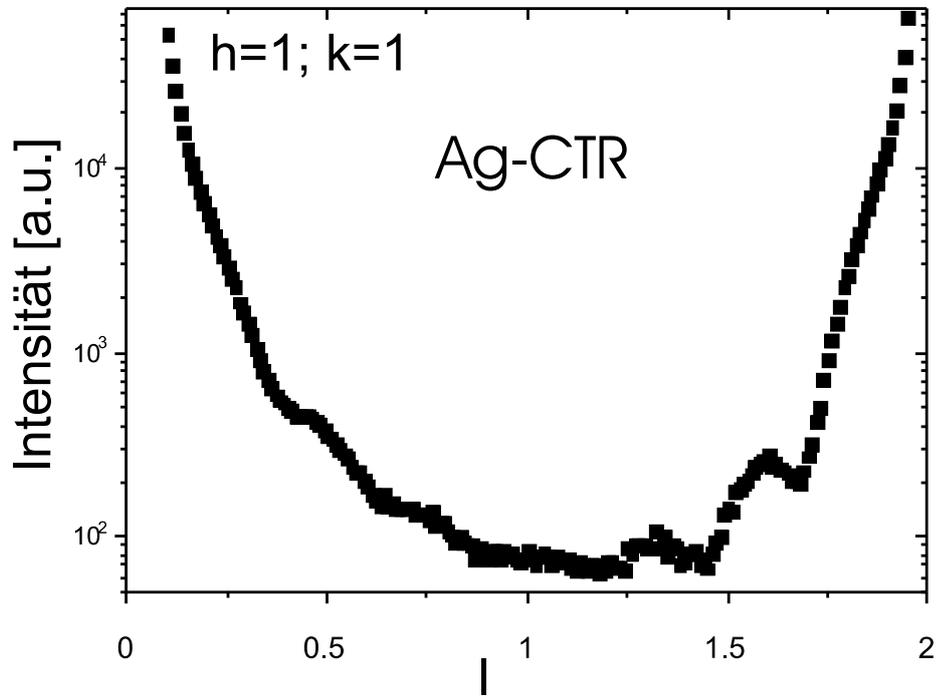


Abb. 4.13: CTR 11

## 4.2. XRD-MESSUNGEN

---

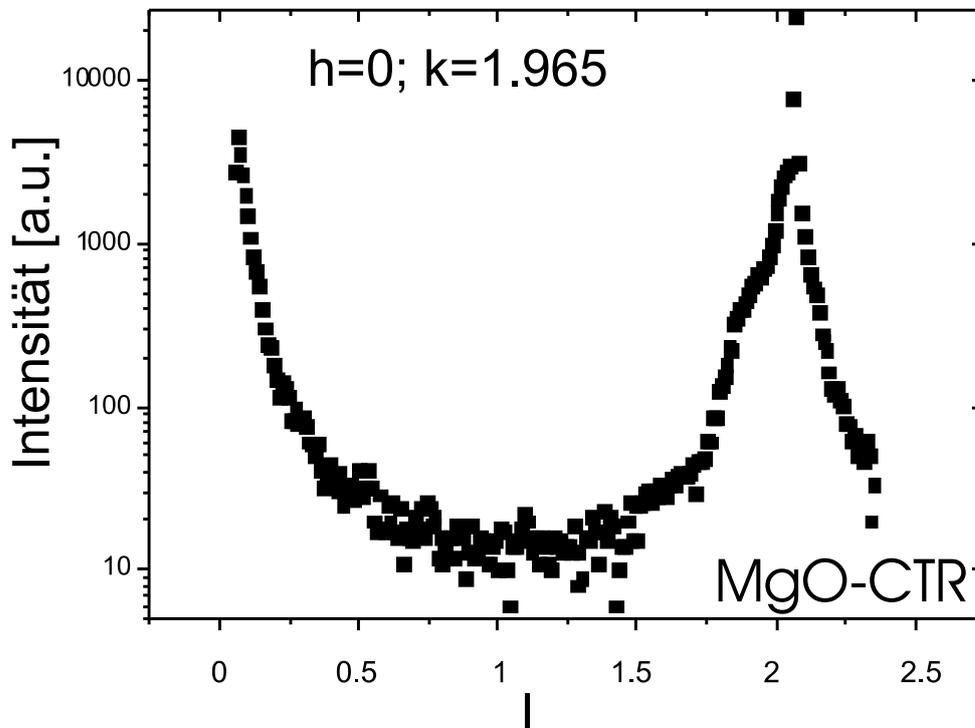
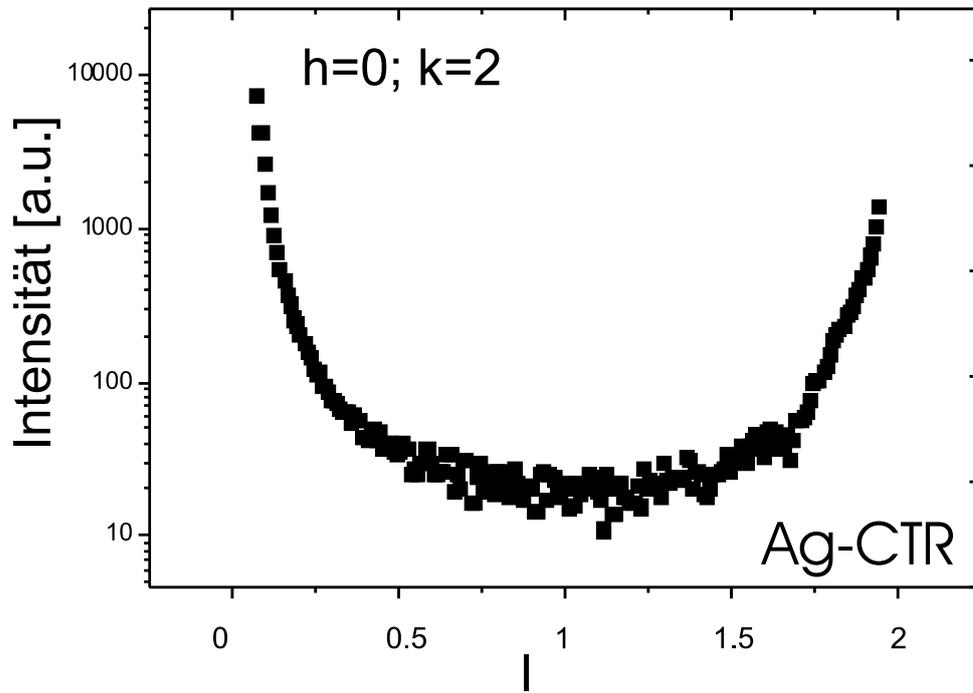


Abb. 4.14: CTR 02

ziproken Raumes ist zu sehen, daß der erste Mosaikreflex in [11]-Richtung des MgO(11)-Reflexes auf der gleichen Position wie der Ag(11)-Reflex zu liegen kommt. Damit kann die Oszillation des Ag(11)-CTR's erklärt werden, bei denen es sich um die Interferenz des 1. Satelliten vom Versetzungsnetzwerk des MgO handelt. Der MgO(02)-Reflex (Abb. 4.13 unten) weist nur äußerst schwache Oszillationen auf. In dem benachbarten Ag(02)-Reflex (Abb. 4.13 oben) sind die Oszillationen kaum zu erkennen.

### 4.2.2 Diskussion der SXR-D-Messungen

Im Gegensatz zu den in Abb. 4.11 erwarteten Reflexen sind keine Mosaikreflexe des MgO-Films zu beobachten. Erstaunlich ist außerdem, daß der MgO-Film verspannt auf dem Silber wächst. Eine weitere interessante Beobachtung stellt die Tatsache dar, daß die Verformung des MgO-Films keinen Einfluß auf die Beschaffenheit der Grenzschicht oder der oberen Silberlagen hat.

Das oben beschriebene Experiment betrachtet nur einen Punkt des Parameterraumes. Aus diesem Grund sind weitere Experimente SXR-D-Experimente nötig, die das Verhalten des MgO-Films bei unterschiedlichen Wachstumstemperaturen und Schichtdicken untersucht. Besonderes Augenmerk liegt hierbei auf der Vermessung der Gitterkonstanten des MgO-Films und somit dessen Verspannung. Hieraus ist ein besseres Verständnis der Mechanismen des Verspannungsabbaus zu erwarten. Diese würde dann auch zu einem besseren Verständnis der Entstehung der Mosaik führen.

## 4.3 STM Messungen

STM ist eine direkt abbildende Methode. Sie bildet die Topographie eines kleinen Bereiches auf der Probe ab. Im optimalen Fall ist das STM in der Lage, sowohl vertikale als auch horizontale Abstände in der Größe der atomaren Gitterkonstanten aufzulösen. Diese „atomare“ Auflösung wurde hier nur in vertikaler Richtung erreicht. Die horizontale Auflösung betrug  $\sim 1\text{nm}$ . Bei den Beugungsexperimenten wird über große Bereiche der Oberfläche gemittelt. Die exakte Geometrie einzelner Strukturen, wie z.B. Inseln, läßt sich durch Beugung nicht bestimmen. Um ein möglichst gutes Modell der Oberflächenstruktur zu entwickeln, sind die Kenntnisse von lokalen Strukturen, die mit dem STM gewonnen werden, hilfreich. Das Beugungsexperiment gibt den Rahmen der möglichen Strukturen vor, welche durch STM Bilder kon-

### 4.3. STM MESSUNGEN

---

kretisiert werden. Im Folgenden wird zuerst die reine Silber Oberfläche und die Auswirkung der STM auf diese gezeigt.

#### 4.3.1 Die reine Ag-Oberfläche und Einflüsse der STM-Spitze

Eine STM-Aufnahme der reinen Ag(100)-Fläche ist in Abbildung 4.15 zu sehen. Sie zeigt einen Ausschnitt von  $1000 \times 3000 \text{ \AA}^2$ . Die von oben nach unten und von links nach rechts verlaufenden Stufenkanten sind glatt. Sie verlaufen in  $[0\bar{1}1]$ - und  $[011]$ -Richtung. Diese Richtungen sind die energetisch günstigsten Stufenrichtungen für die Oberfläche eines fcc-Kristalls wie Ag(100). Die Terrassenlängen sind größer als  $500 \text{ \AA}$ . Auf den ebenen Bereichen sind einige Fremdadorbate zu sehen. Das Bild zeigt also eine leicht verunreinigte Ag(100)-Oberfläche. Im unteren Bereich ist ein kleines Stufenbündel zu sehen, daß annähernd in  $[100]$ -Richtung verläuft. Die Stufen haben einen Abstand von ca.  $100 \text{ \AA}$ . Die Stufenkanten in diesem Bündel sind ausgefranst, da es sich nicht um die bevorzugte Stufenrichtung handelt. Die im linken Bild mit einem Pfeil markierte schwache Linie, die in  $[100]$ -Richtung verläuft, ist eine Versetzungslinie. Diese Versetzungslinie im Silbersubstrat ist wahrscheinlich durch Einwirkung der Spitze während eines „Crash“ entstanden. Das rechte obere Teilbild zeigt einen  $600 \text{ \AA}^2$  großen Ausschnitt der Ag(100)-Oberfläche. Im linken oberen Bereich des STM-Bildes ist ein ebener Bereich der Ag(100)-Oberfläche zu sehen. Er geht ab der Mitte des Ausschnitts in ein ausgedehntes Stufenbündel über, das sich in  $[010]$ -Richtung neigt. Die Stufen verlaufen in  $[001]$ -Richtung und ihr mittlerer Abstand beträgt ca.  $100 \text{ \AA}$ . Im rechten unteren Teilbild, der Größe  $750 \times 850 \text{ \AA}^2$ , ist ein ausgedehntes Stufenbündel, das in  $[100]$ -Richtung verläuft, zu sehen. Die Terrassenbreite ist ca.  $100 \text{ \AA}$ . Das Stufenbündel wird von breiteren Terrassen mit einer Breite von  $400 \text{ \AA}$  unterbrochen.

Der Einfluß der STM-Messung auf die Oberfläche ist in Abbildung 4.16 an Hand einer Abfolge von 4 gleichen Ausschnitten der Größe  $880 \times 710 \text{ \AA}^2$  gezeigt. Die Bilder wurden mit  $3.5 \text{ V}$  Tunnelspannung gemessen. Diese hohe Tunnelspannung führt zu einer starken Wechselwirkung Spitze/Substrat. Die Messung beginnt mit dem oberen linken Ausschnitt. Der erste Teil des Ausschnitts ist ein ebener Bereich der Ag(100)-Oberfläche. Im unteren Bereich dieses Bildes sind erste Auswirkungen der Messung zu sehen. In diesem Bereich sind Löcher und Inseln auf der Oberfläche zu sehen. Es ist zu vermuten, daß die STM-Spitze Ag aus den Bereichen der Löcher entnommen hat und an Bereichen von Inseln wieder abgeschieden hat. Im weiteren Verlauf der

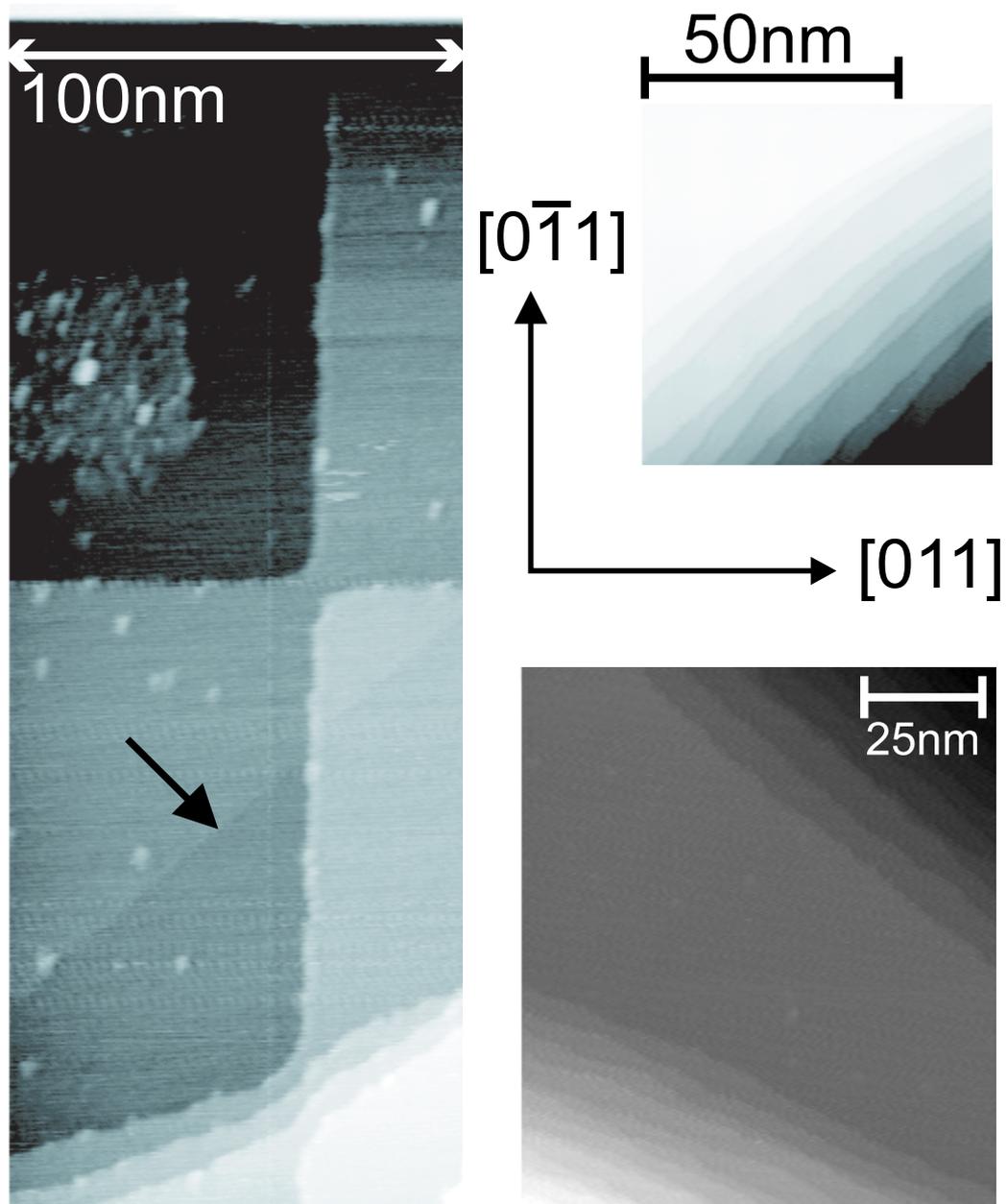
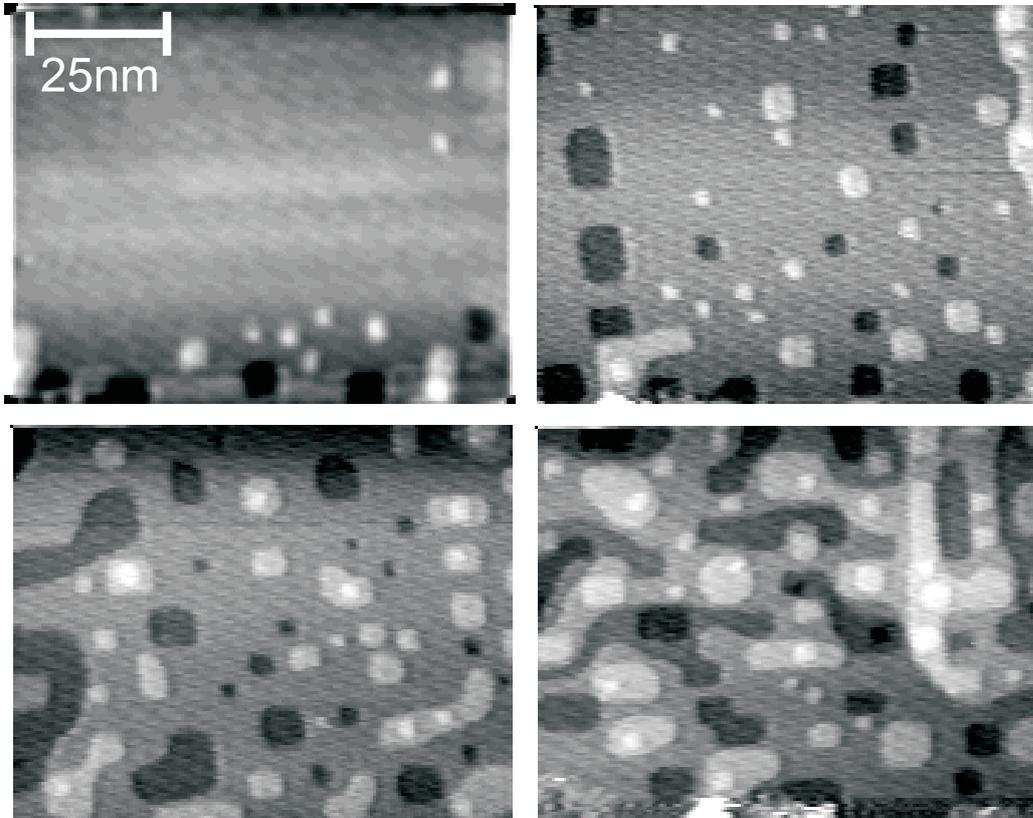


Abb. 4.15: Reine Ag(100) Fläche bei Raumtemperatur

### 4.3. STM MESSUNGEN

---

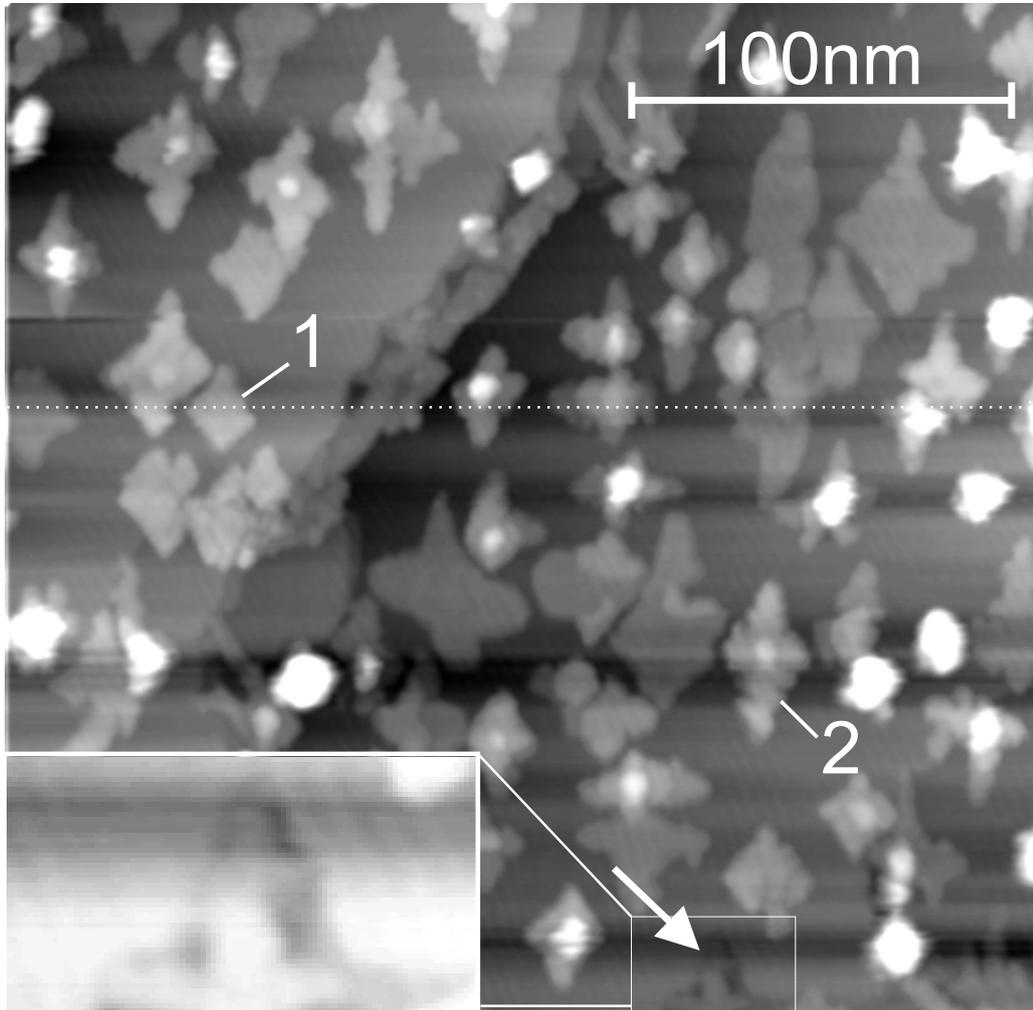


**Abb. 4.16:** Einfluß der Spitze auf Ag(100) bei Raumtemperatur. Tunnelspannung 3V

Meßabfolge (Bild oben rechts; 2min später) treten vereinzelte Löcher und Inseln über den gesamten Meßbereich auf. Weitere 2min später (Bild unten links), nimmt die Dichte der Inseln und Löcher stark zu. Dieser Prozeß setzt sich, wiederum 2 Minuten später (Bild unten rechts), weiter fort. Die STM-Messungen auf dem reinen Silber haben demnach einen erheblichen Einfluß auf die Morphologie der Oberfläche. Diese rauht mit wiederholten vermessen eines Ausschnitts immer stärker auf. Die STM-Spitze transportiert Silber und erzeugt dadurch Löcher und an anderen Stellen Inseln.

#### 4.3.2 1/3ML MgO Ag(100) @700K

Abb. 4.17 zeigt eine STM-Aufnahme eines 1/3ML dicken MgO-Films, der bei 700K auf Ag(100) aufgebracht wurde. Die Aufnahme zeigt einen Bereich von  $3000 \times 3000 \text{ \AA}^2$ . Auffällig ist zunächst die schräg von unten nach oben durch das Bild verlaufende Stufenkante. Im oberen mittleren Bereich verläuft die

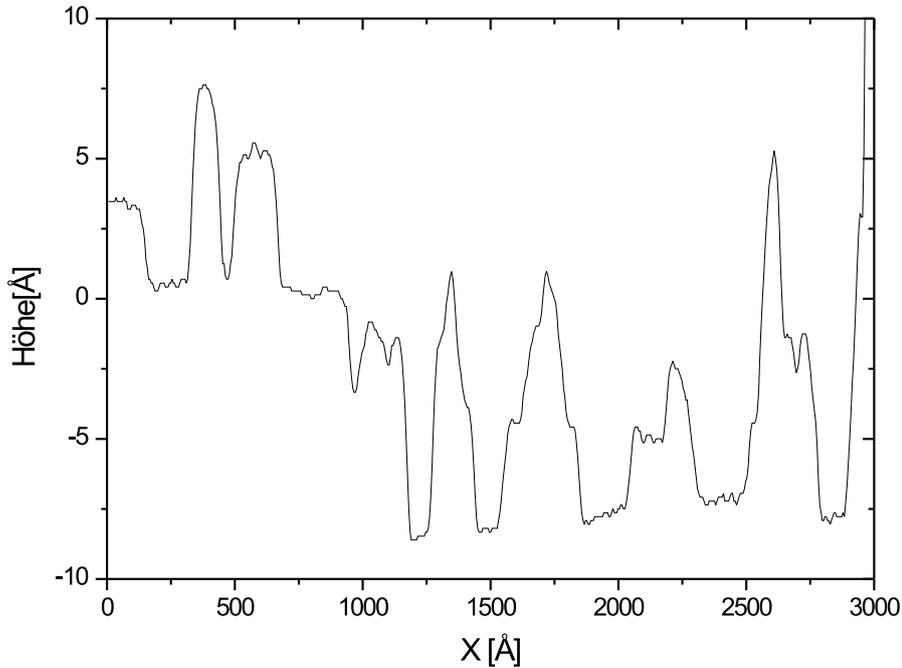


**Abb. 4.17:** 1/3 ML MgO/Ag(100). Tunnelspannung 3.5V

Stufenkante ungefähr in  $[0\bar{1}1]$ -Richtung. Nach dem oberen Viertel des Bildes verläuft sie in  $[100]$ -Richtung nach links unten, um ab der Hälfte des Bildes weiter in  $[0\bar{1}1]$ -Richtung zu verlaufen. Die nächste Stufenkante beginnt am rechten unteren Bildrand. Die ebenen Bereiche sind ungefähr zu einem Drittel mit MgO-Inseln bedeckt. Die rautenförmigen Inseln haben eine mittlere Größe von ca.  $300 \times 300 \text{ \AA}^2$ . Die in Abb. 4.17 mit 1 gekennzeichnete Insel weist einen nahezu perfekten rautenförmigen Umriß auf. Die Kanten dieser Insel verlaufen in die  $[100]$ - und  $[010]$ -Richtung und damit die unpolaren Kantenrichtungen des MgO. Dieses ist ein Hinweis dafür, daß es sich bei den Inseln um MgO-Inseln handelt. Für Silberinsel wurden im vorherigen Abschnitt quadratische Strukturen, die aber um  $45^\circ$  gedrehte Stufenkanten

### 4.3. STM MESSUNGEN

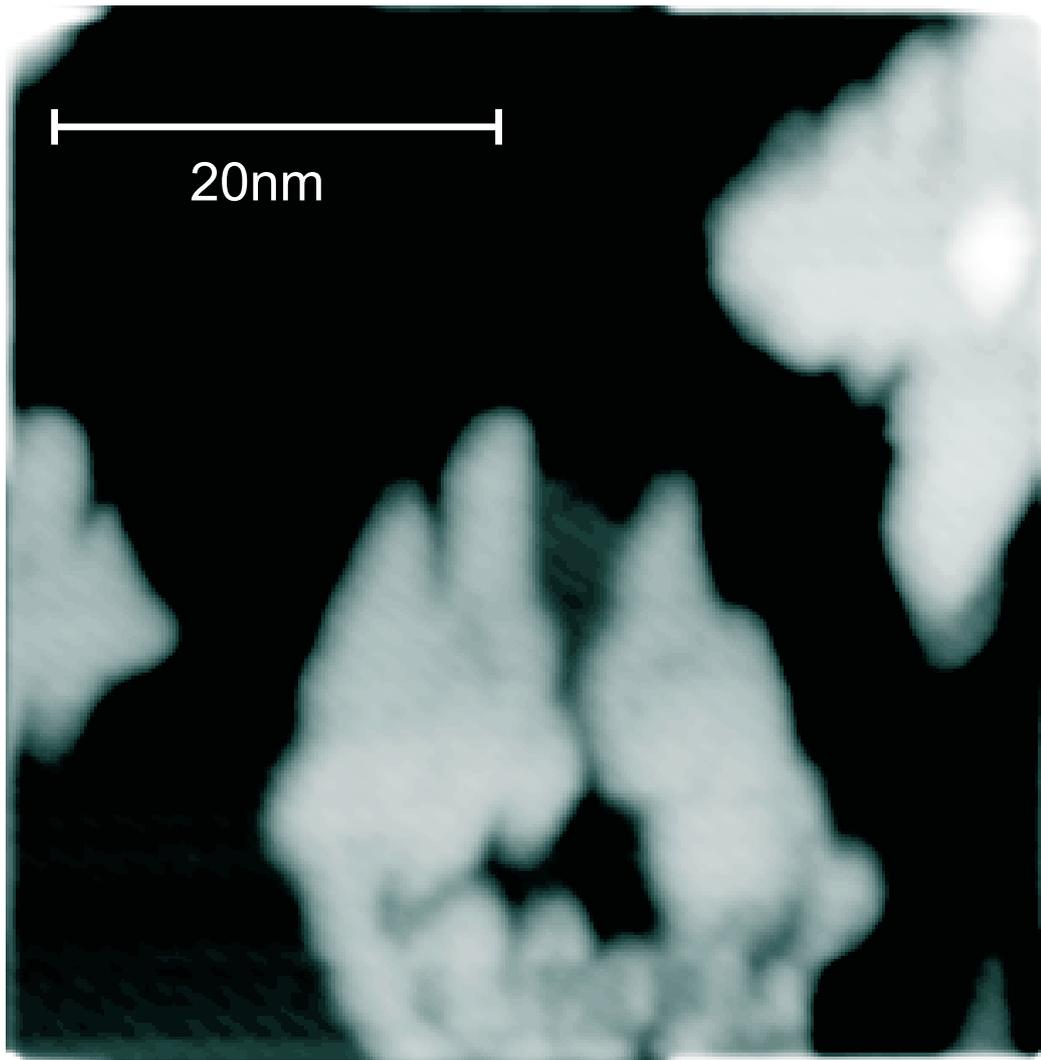
---



**Abb. 4.18:** In Bild 4.17 mit Punkten eingezeichneter Schnitt durch das STM-Bild

haben, beobachtet.

Die in der Abbildung mit 2 gekennzeichnete Insel besteht aus mehreren Teilstücken der Größe  $100 \times 100 \text{Å}^2$ , die nur an wenigen Punkten zusammenhängen. Die gesamte Insel ist annähernd rautenförmig und besitzt eine Ausdehnung von  $300 \times 300 \text{Å}^2$ . In Abb. 4.19 wird ein vergrößerter Ausschnitt gezeigt. Auch hier sind die einzelnen Teilstücke der Insel mit einer Größe von  $100 \times 100 \text{Å}^2$  deutlich sichtbar. Zurückkehrend auf das Bild 4.17 sind noch zwei weitere Objekte zu erwähnen. Am unteren rechten Bildrand an der zweiten Stufenkante ist eine mit einem Pfeil gekennzeichnete Insel zu erkennen. Diese wird fast gänzlich von den Stufenkanten „umflossen“. Das Silber scheint demnach bei 700K sehr mobil zu sein und umgibt die nicht mobile MgO-Insel. Ähnliche Effekte werden auch von Neddermeyer [38] für NiO/Ag(100) beobachtet. In Abb. 4.18 ist ein Schnitt entlang der in Bild 4.17 eingezeichneten gepunkteten Linie gezeigt. Es zu beobachten, daß zweistöckiges Wachstum von Insel auftreten. Die hohen rundlichen Inseln können nicht zugeordnet



**Abb. 4.19:** Insel 1/3 ML MgO/Ag(100). Tunnelspannung 3.5V

### 4.3. STM MESSUNGEN

---

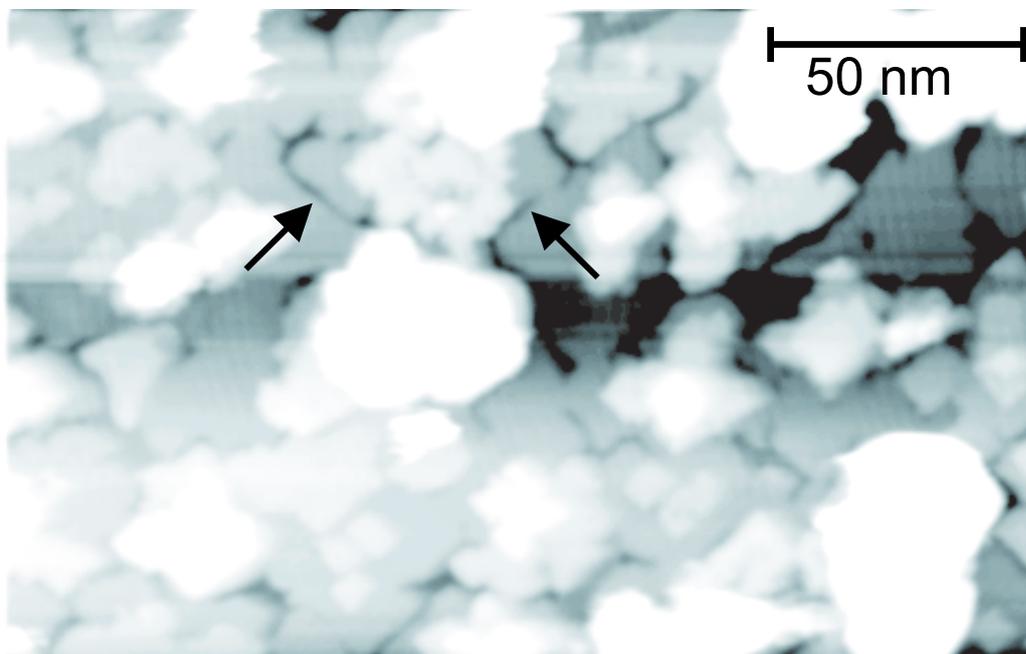


Abb. 4.20: 1 ML MgO/ Ag(100) Tunnelspannung 5V

werden. Ihre Höhe beträgt bis zu  $20\text{\AA}$  (im Bild bei  $3000\text{\AA}$ ).

#### 4.3.3 1ML MgO Ag(100)@ 700K

Nach dem Aufbringen von 1ML MgO auf Ag(100) bei einer Temperatur von 700K ergibt sich auf der Oberfläche die in Abb. 4.20 gezeigte Situation. Die MgO-Inseln aus Abb. 4.17 sind zusammengewachsen. Es bildet sich aber kein geschlossener Film, da an den Berührungslinien der Inseln Gräben zurückbleiben. Einige sind in der Abbildung mit Pfeilen gekennzeichnet worden. An einigen Stellen haben sich in der zweiten Lage schon neue Inseln gebildet, die eine mittlere Größe von  $100 \times 100\text{\AA}^2$  haben. Die Form der alten und der neuen Inseln ist rautenförmig. Die Richtung der Inselkanten entsprechen den unpolaren Stufenrichtungen des MgO ([100]- und [010]-Richtung). Die schon im vorherigen Abschnitt auftretenden, sehr hohen, runden Inseln treten auch hier auf. Ihre Höhe und Fläche hat stark zugenommen. Die Grabenabstände wurden für 3 Bilder ausgezählt und sind als Histogramm in Abb. 4.21 dargestellt. Für drei Grabenabstände tritt eine Häufung auf. Besonders häufig sind hiernach  $100\text{\AA}$  große Grabenabstände und  $150\text{-}200\text{\AA}$  große Grabenabstände. Eine etwas geringere Häufigkeit haben Grabenabstände von  $250\text{\AA}$ . Weiterhin ist deutlich zu erkennen, daß die Abstände zwischen den Gräben bis zu  $400\text{\AA}$

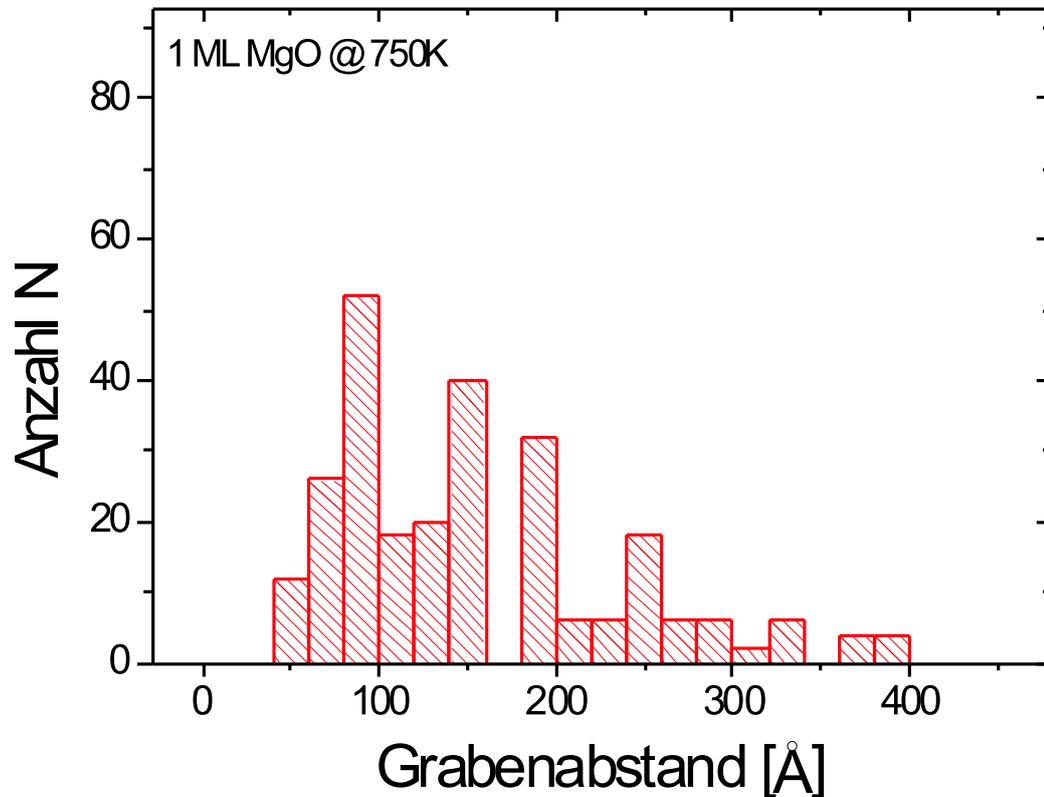


Abb. 4.21: Statistik der Terrassenbreiten 1ML MgO /Ag(100) (Mittelung drei Bilder)

betragen.

#### 4.3.4 3ML MgO Ag(100) @700K

In Abbildung 4.22 ist eine STM-Aufnahme einer 3ML dicken MgO-Schicht zu sehen, die bei 700K hergestellt wurde. Die Tunnelspannung betrug 5V, damit wird in das Leitungsband des MgO's getunnelt. Die Schicht ist noch dünn genug um das Leitungsband des MgO's über das Ag zu entvölkern. Im Bild ist deutlich zu erkennen, daß am Wachstum mehrere Lagen MgO beteiligt sind. Die Inseln sind rechteckig und ihre Kanten sind entlang der [100]- und [010]-Richtung (die unpolaren Richtungen des MgO's) gerichtet. Nur wenige Inseln sind zusammengewachsen. Der überwiegende Teil der Inseln wird durch Gräben getrennt, die eine Tiefe von 2Å haben. Der in Abb. 4.23 gezeigte Schnitt längs der in Abb. 4.22 eingezeichneten Linie zeigt zwei dieser Gräben. Die Ränder der Gräben sind genigt und weisen einen Winkel von

### 4.3. STM MESSUNGEN

---

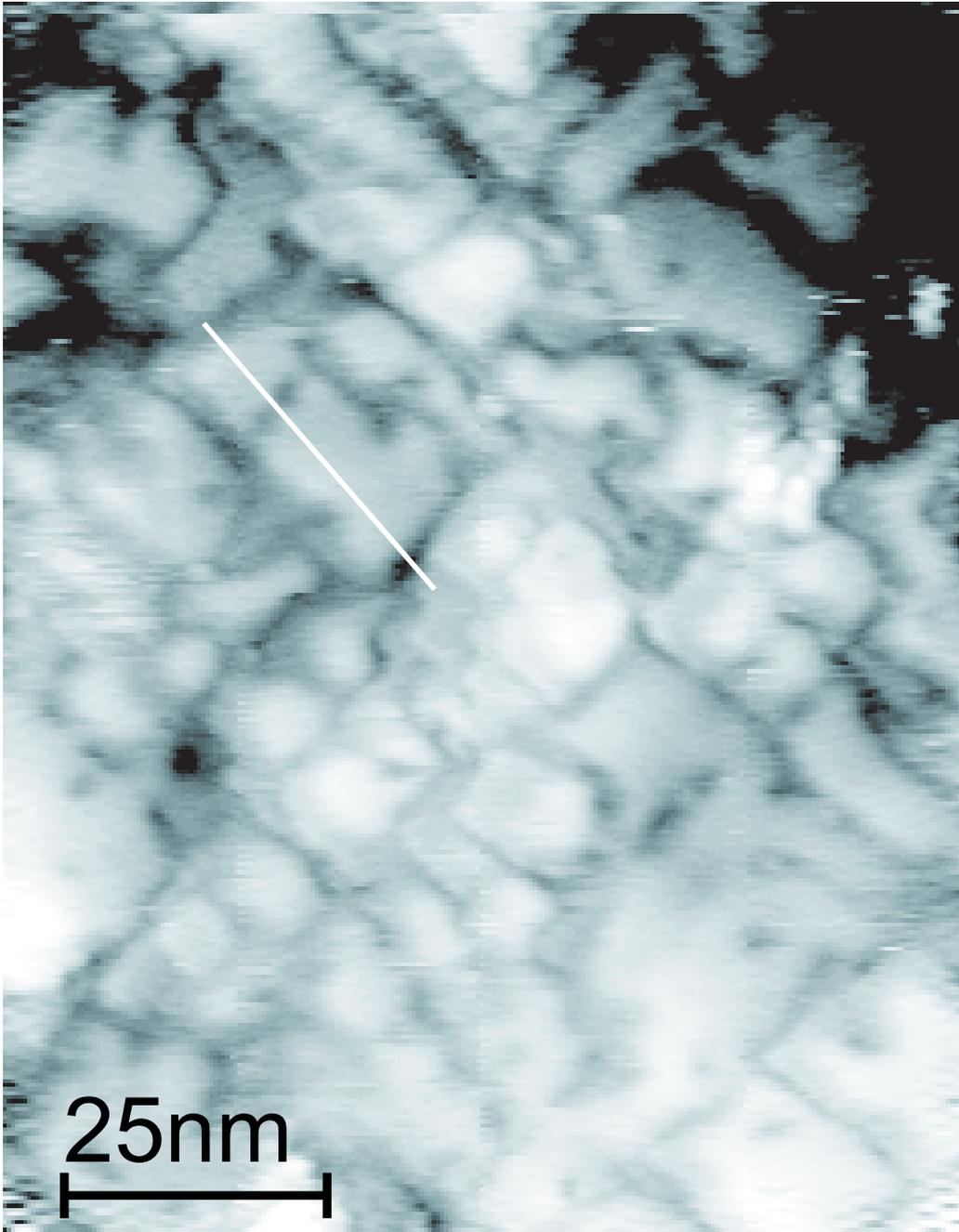
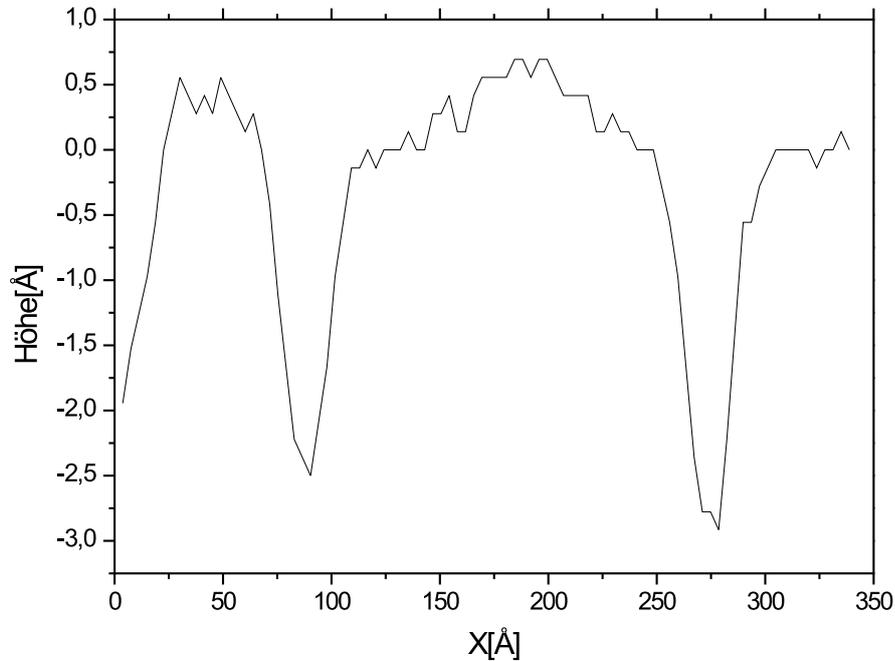


Abb. 4.22: 3 ML MgO/Ag(100) Tunnelspannung 5V



**Abb. 4.23:** Eindimensionaler Schnitt aus 4.22 der entlang der eingezeichneten Linie genommen wurde

$\vartheta=4^\circ$  auf. Dieses entspricht dem mit SPA-LEED gemessenen Verhalten für die Mosaikwinkel siehe Abb. 4.9 Eine genauere Untersuchung der Inselbreiten ist in Abb. 4.24 als Histogramm dargestellt. Die Verteilung der Inselbreiten läßt sich durch eine Gaußverteilung beschreiben. Das Maximum der Verteilung liegt bei  $75\text{\AA}$ . Der größte gemessene Abstand beträgt  $200\text{\AA}$ . Die in Kapitel 4.1 beschriebenen SPA-LEED Messungen haben Strukturen mit einem regelmäßigen Abstand von  $80\text{\AA}$  nachgewiesen. Es ist davon auszugehen, daß der vom SPA-LEED detektierte häufige Abstand  $80\text{\AA}$  zu der hier beobachteten Häufung der Inselbreite von  $75\text{\AA}$  gehört. Das aus SPA-LEED Messungen und Modellen erwartete Versetzungsnetzwerk kann mit STM nicht beobachtet werden. Die STM-Messungen zeigen eine Insel/Graben Struktur, wobei die mittlere Inselbreite ungefähr dem erwarteten Abstand der Versetzungslinien entspricht. Um Versetzungen zu beobachten, wurde die Bedeckung mit MgO auf 13ML erhöht.

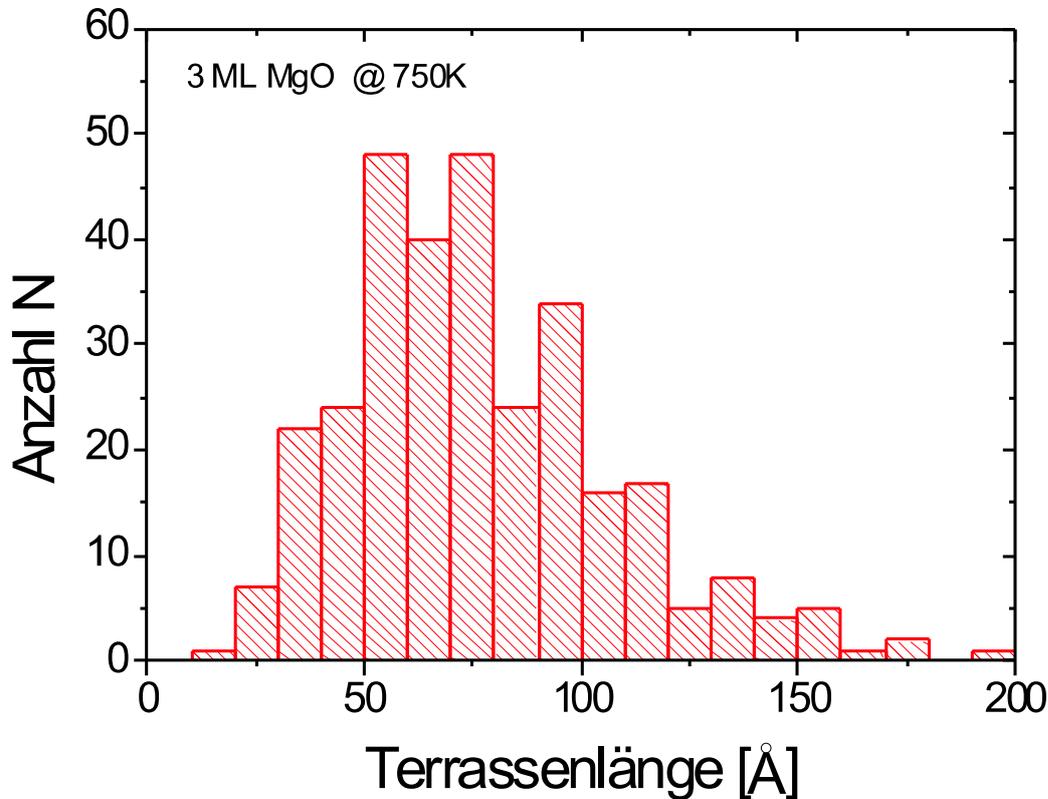


Abb. 4.24: Statistik der Terrassenbreiten 3ML MgO/Ag(100) (Mittelungsieben Bilder)

#### 4.3.5 13ML MgO Ag(100) @700K

Die Abbildung 4.25 zeigt eine 13ML dicke MgO-Schicht. Auf Grund der Probleme, die beim Tunneln an dicken Isolatorschichten auftreten, sind die einzigen beiden gewonnenen Bilder von sehr schlechter Qualität. Es ist demnach deutlich zu sehen, daß rechteckige Inseln mit Kanten in die [100]- und [010]-Richtungen auftreten, entsprechend den unpolaren Stufenrichtungen des MgO's. Die Größe der Inseln beträgt ungefähr  $100 \times 100 \text{Å}^2$ . Damit hat sich an den Größen der Inseln keine wesentliche Änderung ergeben. Ein Schnitt entlang der eingezeichneten Linie zeigt, daß nur 1 Lage am Wachstum beteiligt ist. Dieses ist auch in den SPA-LEED Messungen, die ein Lage-für-Lage-Wachstum für MgO bei diesen Temperaturen zeigen, zu sehen. Ein Schnitt Abb. 4.26 entlang der in Bild 4.25 eingezeichneten Linie zeigt, daß die Schicht nur noch eine Variation von ca.  $1 \text{Å}$  aufweist. Im linken Teil des Bildes ist eine MgO-Stufe mit ca.  $2 \text{Å}$  zu sehen. Die bei niedrigeren Bedeckungen aufgetretenen Mosaik werden also immer flacher ( hier  $2^\circ$  ) und reichen

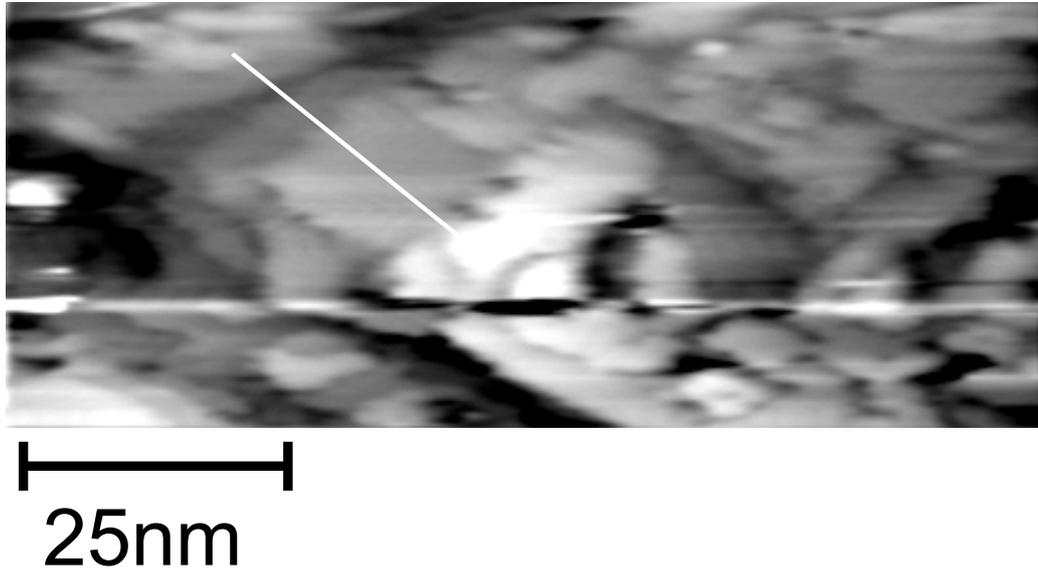


Abb. 4.25: 13 ML MgO/Ag(100). Tunnelspannung 5V

in der Höhe nicht mehr über eine Stufenhöhe. Die Strukturen werden also überwachsen.

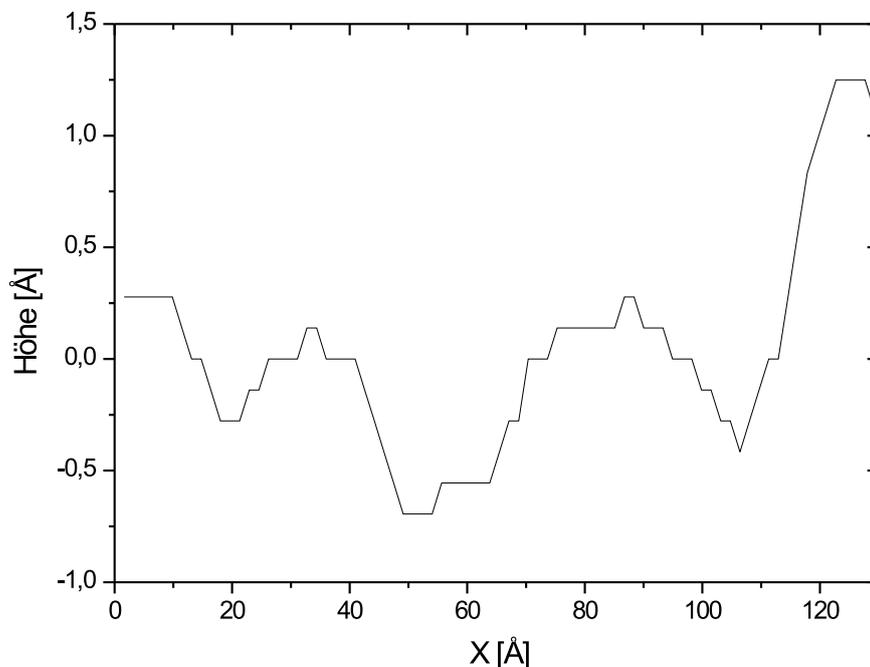
### 4.4 MgO auf verschiedenen fcc Substraten

In diesem Abschnitt wird der Einfluß der Gitterfehlانpassung auf das Wachstum von MgO untersucht. Als Substrate sind Ag(100), Pd(100) und Ni(100) verwendet worden.

Beim Ausgleich der Gitterfehlانpassung kommt es nicht nur zur Ausbildung von Mosaiken, sondern mit ihnen verbunden zur Ausbildung eines regelmäßigen Versetzungsnetzwerks. Dieses regelmäßige Versetzungsnetzwerk verursacht eine Schulter an den Hauptreflexen, die eine phasenunabhängige Position hat. Die Position der Schulter für Phase  $S = 2$  ist in Abb. 4.27 gezeigt. Für MgO/Ag(100) ist der konstante Satellit bei 3% BZ. Dieses entspricht einem mittleren Versetzungslinienabstand von  $100\text{\AA}$ . Der äußere Satellit, der mit der Phase wandert, gehört zu einem Mosaikwinkel von ca.  $3^\circ$ . Eine Erhöhung des Misfits auf 8.2% für MgO/Pd(100), führt dazu, daß die Position des phasenunabhängigen Satelliten auf 8%BZ ansteigt. Diese Position entspricht einem Versetzungslinienabstand von  $38\text{\AA}$ . Der äußere phasenabhängige Satellit gehört zu Mosaiken mit einem Winkel von  $4.8^\circ$  (Pd-Daten aus F.Schäfers Diplomarbeit [35]). Eine Steigerung des Misfits auf 19% für MgO/Ni(100)

## 4.5. ZUSAMMENFASSUNG UND DISKUSSION

---

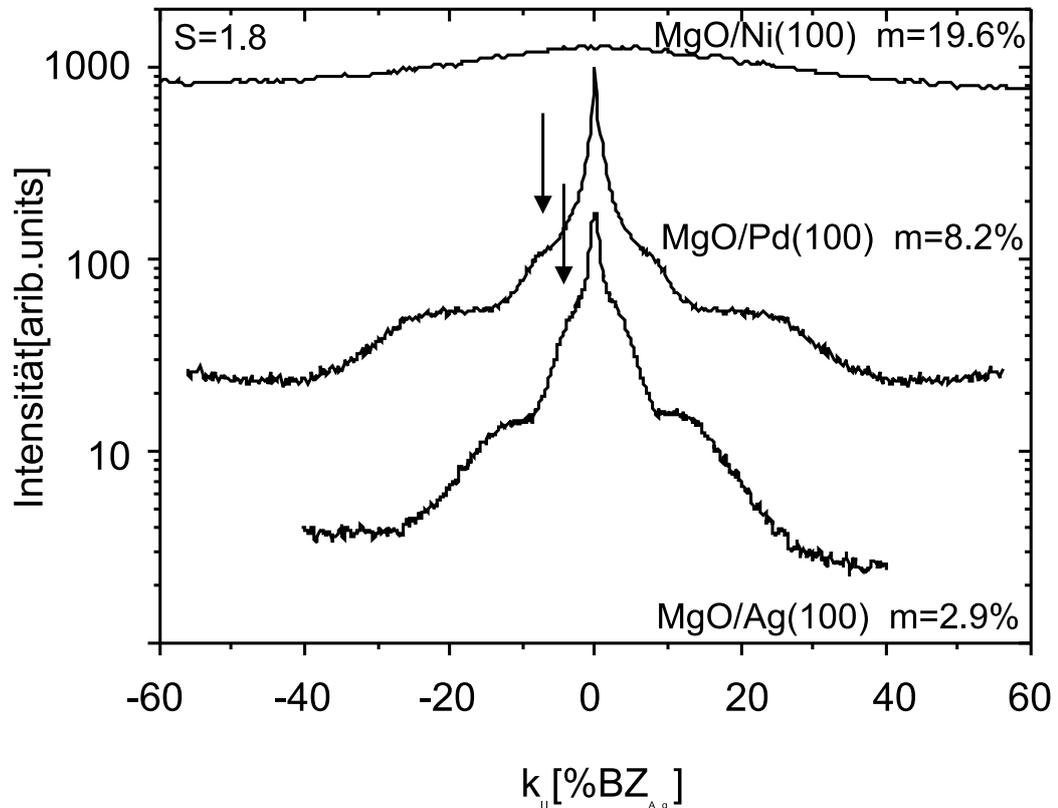


**Abb. 4.26:** Eindimensionaler Schnitt aus 4.25 der entlang der eingezeichneten Linie genommen wurde

führt dazu, daß das Wachstum von MgO sehr stark gestört ist. Der Schnitt durch den (00)-Reflex zeigt keine Struktur. Der Reflex ist stark verbreitert. Aus diesem Grund ist eine konstanter Satellit nicht mehr aufzulösen. Auch ein phasenabhängiger Satellit ist nicht zu beobachten. Die Halbwertsbreite des (00)-Reflexes nimmt aber linear mit der Phase zu. Damit läßt sich nach Gleichung 1.50 die Standardabweichung des  $0^\circ$  Mosaiks, also der ungestörten Fläche, zu  $\Delta\vartheta = 3^\circ$  bestimmen. Es treten also alle Mosaikwinkel von  $0^\circ$  bis zu großen Winkeln auf. Die Häufigkeit der einzelnen Richtungen nimmt kontinuierlich zu großen Winkel ab.

## 4.5 Zusammenfassung und Diskussion

Das Wachstum von MgO auf Ag(100) wurde im Temperaturbereich von Raumtemperatur bis zu 700K mit SPA-LEED, SXRD und STM untersucht.



**Abb. 4.27:** Profile in [11]-Richtung durch den (00)-Reflex bei  $S=1.8$  für MgO auf Ag(100),Pd(100) und Ni(100). Die Gitterfehlpassung steigt von  $m=2.9\%$  auf  $19\%$

Bei hohen Temperaturen und einer Bedeckung von 0.5ML zeigen die STM-Messungen, daß sich quadratische Inseln gebildet haben, deren Stufenkanten in [11]-Richtung zeigen und somit den unpolaren Stufenkanten des MgO entsprechen. Diese Inseln haben eine Größe von  $300 \times 300 \text{Å}^2$ . Ihre Höhe beträgt ca.  $4 \text{Å}$ , entsprechend doppelstöckigen Inseln. Ein Doppellagenwachstum wird D.Erdös [36] bei Temperaturen unter 500K mit SPA-LEED beobachtet. Bei höheren Temperaturen (in dieser Arbeit) wird ein Doppellagenwachstum nicht beobachtet und steht im Widerspruch zu den STM-Messungen. Schon bei dieser geringen Bedeckung sind die Inseln zum Teil in einzelne Bereiche, mit einer Größe von ca.  $100 \times 100 \text{Å}^2$  zerfallen. Wenn die Doppellage geschlossen ist, also 2 Monolagen aufgewachsen sind, ist die gesamte Fläche mit Inseln bedeckt, die durch Gräben einer Breite von  $100 \text{Å}$  und einer Tiefe von  $4 \text{Å}$  getrennt sind. Die Gräben bestehen aus zwei Mosaiken, die in den Gräben hinein abfallen. Hierdurch hat der Graben eine V-Form. Der Winkel der Mosaike beträgt  $\vartheta = 4^\circ$ . Bei einer Bedeckung von 3ML ist die Graben-

## 4.5. ZUSAMMENFASSUNG UND DISKUSSION

---

struktur stark ausgeprägt. Die Tiefe der Gräben ist  $2\text{\AA}$  (teilweise auch  $4\text{\AA}$ ) und entspricht damit der Stufenhöhe (für  $4\text{\AA}$  der doppelten) des MgO. Die Terrassengrößenverteilung hat bei dieser Bedeckung ihr Maximum bei  $80\text{\AA}$ . Dieser Abstand entsteht durch die Gitterfehlpassung von 3% zwischen Ag und MgO. Diese Strukturen bleiben auch bei höheren Bedeckung von bis zu 13ML erhalten. Die Grabentiefe verkleinert sich allerdings im Laufe des Wachstums auf  $1\text{\AA}$ . Der Winkel der Mosaik beträgt dann nur noch  $\vartheta = 2^\circ$ .

Die Vermessung der Gitterfehlpassung mit Hilfe des SPA-LEED zeigt, daß bei 700K bis zu 3ML pseudomorph verspannt aufwachsen. Lediglich eine geringfügige Entspannung von 0.5% tritt nach zwei Monolagen auf. Diese rührt vom Schließen der zuerst aufwachsenden Doppellage MgO her. An diesem Punkt bilden sich die ersten Mosaik, die für eine geringe Entspannung des MgO-Films sorgen. Die Oszillation der Intensität des (00)-Reflexes zeigt, daß der MgO-Film in einem gestörten Lage-für-Lage Modus wächst. Die Untersuchung der Phasenabhängigkeit der Profile durch den (00)-Reflex zeigt für 1.5ML MgO bei 700K keine Änderung der Halbwertsbreite und somit keine Mosaik. Bei 6ML MgO sind hingegen an dem Profil des (00)-Reflexes Satelliten zu sehen. Es haben sich Mosaik mit einem Winkel von  $\vartheta = 3.2^\circ$  ausgebildet.

Bei der niedrigeren Temperatur von 500K wächst MgO ebenfalls in einem gestörten Lage-für-Lage Modus. Bei einer Bedeckung von 16ML sind am (00)-Reflex energieabhängige Satelliten zu beobachten. Der Schwankung der Mosaikwinkel um  $0^\circ$  beträgt hier  $\Delta\vartheta = 1.7^\circ$ . Damit liegen die auftretenden Mosaikwinkel im wesentlichen unter  $1.7^\circ$ . Im STM werden bei einer Bedeckung von 13ML und einer Temperatur von 700K Mosaikwinkel von  $\vartheta = 2^\circ$  beobachtet. Die in Abb. 4.9 eingezeichneten Kurven für den Verlauf der Mosaikwinkel über der Bedeckung lassen solche Winkel erwarten.

Aus der Profilanalyse der MgO-Schichten ergibt sich für die Mosaikwinkel folgendes Verhalten. Die Mosaikwinkel zeigen eine starke Abhängigkeit von der Bedeckung. Bei niedrigen Bedeckung ist der Mosaikwinkel (bei 5ML mit  $4^\circ$ ) recht steil. Der Mosaikwinkel  $\theta$  fällt mit steigender Bedeckung  $\Theta$  gemäß dem Potenzgesetz  $\theta \propto \Theta^{\frac{3}{4}}$  ab und erreicht bei 13ML einen Wert von  $1.7^\circ$ . Dieses Verhalten der Mosaikwinkel ist von der Temperatur unabhängig. Die Temperaturunabhängigkeit der Mosaikwinkel zeigt, daß die Bildung der Mosaik und das Wachstum der MgO-Schichten nicht kinetisch gehemmt sind. Das Wachstumsverhalten und die Entstehung der Mosaik ist nur von Bedeckung abhängig. Daher wird die Entstehung der Mosaik ausschließlich durch die Verspannungsenergie der Gitterfehlpassung bewirkt. Die Energie wird durch Erzeugung von Mosaiken und den damit verbundenen Versetzungen

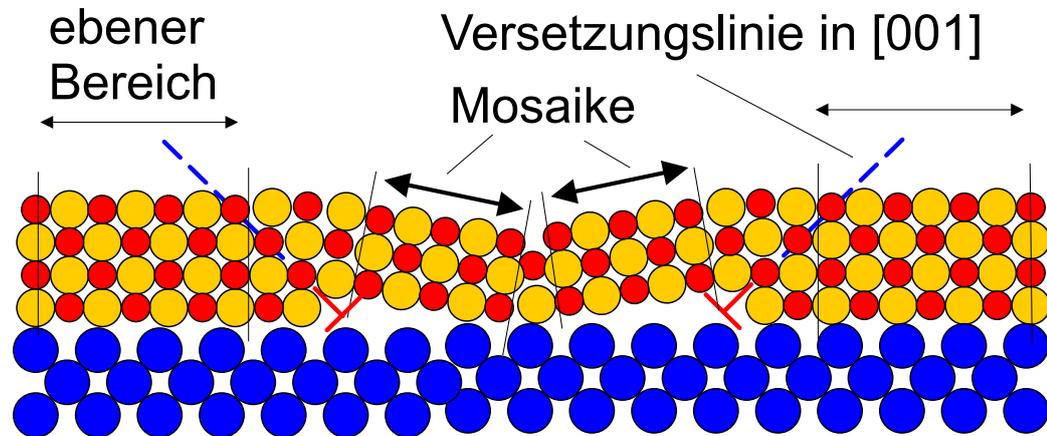


Abb. 4.28: Modell für Versetzungslinien

minimiert. Eine Erhöhung der Temperatur hat auf diesen Prozeß keinerlei Einfluß. Er wird also nicht durch höhere Temperatur aktiviert und ist somit nicht kinetisch gehemmt.

D. Erdös hat das Wachstum von MgO auf Ag(100) im Temperaturbereich von 200-500K untersucht.[36] Für die Wachstumsmodi wurden für 200K ein gestörtes Lage-für-Lage Wachstum, für 350K ein Lage-für-Lage Wachstum und für 500K ein Stufenfluß-Wachstum beobachtet. Im Gegensatz hierzu stehen die oben beschriebenen Messungen. Hier wird bei gleicher Temperatur von 500K ein gestörtes Lage-für-Lage Wachstum beobachtet, welches auch bei 700K auftritt. Beide Messungen wurden mit derselben Apparatur durchgeführt. Nur die Positionen der Meßgeräte innerhalb der Kammer wurden getauscht. Dies führt in externer Geometrie zu einer Änderung des Einfallswinkels des Elektronenstrahls auf der Probe in externer Geometrie. Da dieser Winkel für die Bestimmung der Phase benötigt wird, siehe Gleichung 1.22, kann dies zu Fehlern führen. Wird die Gegenphasebedingung nicht genau erreicht, kann es zu Veränderungen im Oszillationsverhalten kommen. In der Regel führt eine Abweichung von der Gegenphasebedingung aber nur zu einer Abschwächung der Intensität und sollte daher nicht die Ursache der Diskrepanz sein. Der geänderte Einfallswinkel kann aber noch andere Folgen haben. Der Formfaktor der Atome kann für diesen Einfallswinkel der Elektronen anders sein. Dies könnte unter Umständen zu einer Veränderung in der Oszillation der (00)-Intensität führen.

#### 4.5. ZUSAMMENFASSUNG UND DISKUSSION

---

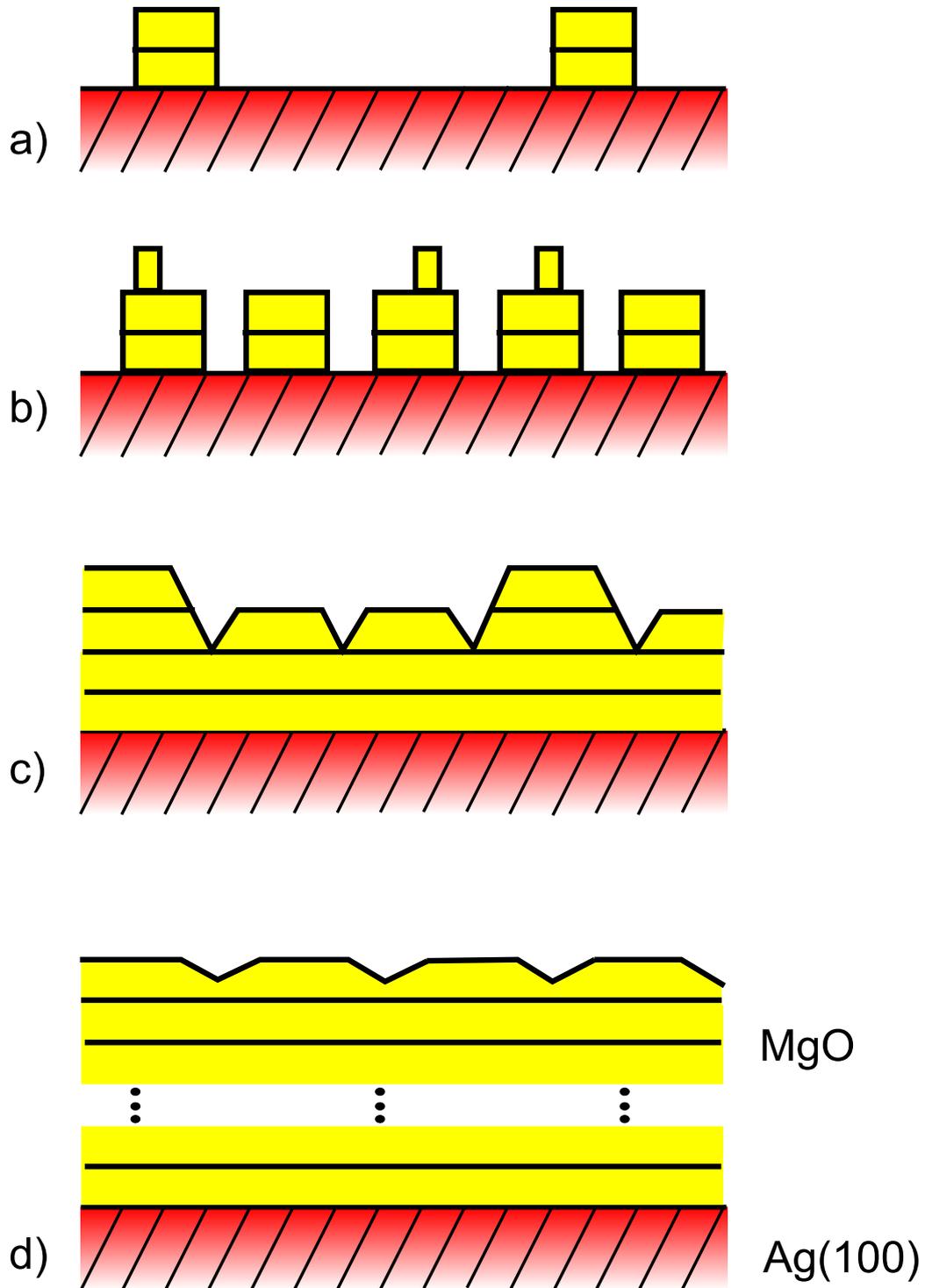
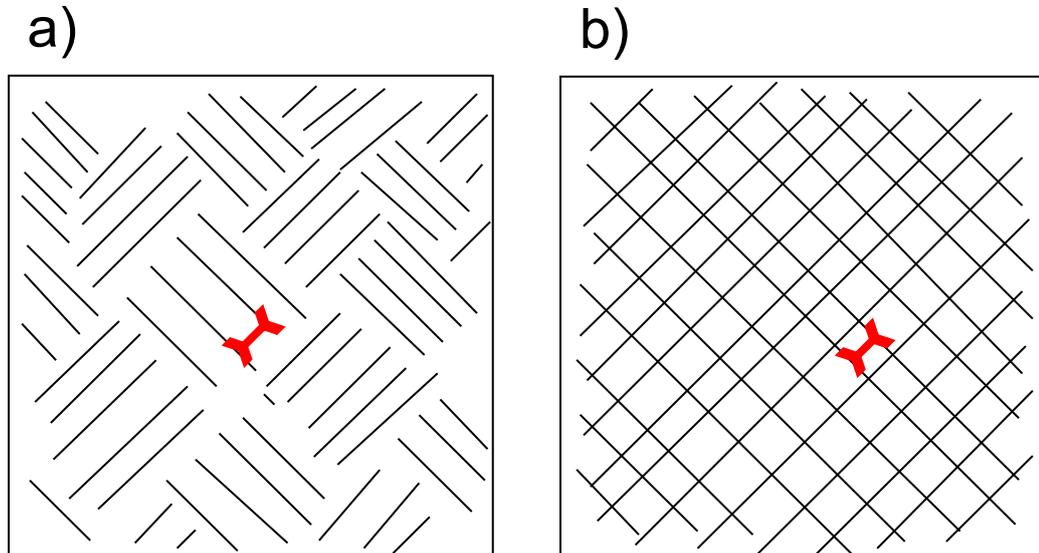


Abb. 4.29: Wachstumsmodell für MgO/Ag(100)



**Abb. 4.30:** Mögliche Modelle für die Anordnung der Mosaik an der Oberfläche. Die Linien symbolisieren jeweils ein Paar Mosaik, die zusammen einen Graben bilden. In a) ist die Domänenstruktur gezeigt. Es wechseln sich Bereiche mit um  $90^\circ$  gedrehten Mosaiken ab. Die einzelnen Domänen haben eine Wellblechstruktur. Im b) ist die Schachbrettstruktur gezeigt. Diese Struktur führt im Beugungsbild zu höheren Ordnungsreflexen.

#### 4.5.1 Modell

Als erstes soll ein Modell für die Versetzungen und Mosaik entwickelt werden. Stoßen zwei MgO-Inseln aneinander so kann es vorkommen, daß Ionen gleicher Polarität nebeneinander liegen. Die MgO-Schicht kann an solchen Kontaktstellen nicht zusammenwachsen. Eine mögliche Verbindung kann durch Einbau einer Versetzung entlang der  $[001]$ -Richtung, was praktisch einer Verbiegung des Films entspricht, indem eine Seite um eine Stufenhöhe angehoben. An der Verbindungsstelle zur Nachbarinsel und an der Verbindung zum Substrat ist der Film sehr stark verbogen. Das Zwischenstück ist unverbogen, ist aber gegen das Substrat verkippt. Dieses Teilstück kann als Mosaik, wie es im SPA-LEED beobachtet wird interpretiert werden. Eine solche Situation ist in Abb. 4.28 dargestellt. Im SPA-LEED sind von einer solchen Konfiguration nur die ungestörten Bereiche sichtbar, das heißt die zwei ebenen Bereiche und das verkippte Zwischenstück. Über die gekrümmten Übergangsbereiche an den Kontaktstellen sind mit dem SPA-LEED und SXRD keine Informationen zu gewinnen. Da diese Kontaktstelle einer Abfolge von kleinen verkippten Bereichen entspricht, deren Winkel kontinuierlich zwischen Null

## 4.5. ZUSAMMENFASSUNG UND DISKUSSION

---

und dem Kippwinkel des Mosaiks variiert, ergibt diese in der Beugung einen breiten lorentzförmigen Untergrund von Mosaiken ohne Vorzugsrichtung.

Aus den oben angeführten Meßergebnissen kann für das Wachstum der MgO-Schicht und die Entstehung der Versetzungen und Mosaikfolien in Grafik 4.29 dargestellter modellhafter Ablauf skizziert werden. Zu Beginn des Wachstums entstehen auf der Ag(100)-Oberfläche zweistöckige MgO-Inseln (Abb. 4.29 Teil a). Diese haben eine Größe von  $300 \times 300 \text{ \AA}$ . Der Inselabstand beträgt einige  $100 \text{ \AA}$ . Im weiteren Verlauf des Wachstums bedecken die Inseln die gesamte Oberfläche (Abb. 4.29 Teil b), wobei die Inseln durch Gräben von einigen  $10 \text{ \AA}$  getrennt sind. Die Gräben haben eine Tiefe von ca.  $4 \text{ \AA}$  und reichen somit bis auf die Substratoberfläche. Auf den doppelstöckigen Inseln nukleieren erste kleine einstöckige Inseln. Im weiteren Verlauf schließt sich die Doppellage und die dritte Lage beginnt sich zu schließen (Abb. 4.29 Teil c). Die aufgewachsenen Inseln haben eine mittlere Größe von  $80 \text{ \AA}$  und werden von Gräben begrenzt, die sich aus zwei Mosaiken zusammensetzen. Der Winkel der Mosaikfolie beträgt  $4^\circ$  die Breite der Gräben beträgt also  $60 \text{ \AA}$ . Teilweise erstrecken sich die Mosaikfolien über zwei Lagen, da einige Inseln auch schon in der vierten Lage aufwachsen. Bei einer sehr hohen Bedeckung (Bild Teil d) kommt es schon zu einem Überwachsen der Strukturen. Die Inseln haben eine Größe von ca.  $50 \text{ \AA}$  und sind von Gräben getrennt, die jetzt nur noch  $1 \text{ \AA}$  tief sind, welches einer halben Monolage entsprechen würde. Da eine solche Tiefe nicht durch einen kristallinen Aufbau entstehen kann, muß davon ausgegangen werden, daß hier Strukturen überwachsen wurden.

Das oben angeführte Modell beschreibt eine eindimensionale (1D) Situation. Offen bleibt die zweidimensionale (2D) Struktur der Oberfläche. Die Betrachtung des Beugungsbildes 4.4 zeigt, daß Reflexe nur in  $[11]$ -Richtung auftreten. In  $[01]$ -Richtung sind im Beugungsbild keine Satellitenreflexe beobachtbar. Das Ausbleiben von Satellitenreflexen in  $[01]$ -Richtung ist nur durch eine Domänenstruktur wie sie in Bild 4.30a zu sehen ist erklärbar. Die Oberfläche setzt sich aus Bereichen zusammen, die einzeln eine Abfolge von länglichen Mosaiken und länglichen ebenen Bereichen darstellt. Diese Struktur hat Ähnlichkeit mit einem Wellblech. Die Orientierung der einzelnen gewellten Domänen ist um  $90^\circ$  gedreht. Dadurch sind sowohl Reflexe in  $[11]$ - als auch in  $[\bar{1}1]$ -Richtung zu beobachten. Da sich die Oberfläche aus nur aus gewellten Bereichen zusammensetzt ergibt sich keine quadratische Struktur, die höhere Ordnungs-Reflexe in  $[01]$ -Richtung verursachen würde.

Dem oben vorgestellten Modell, welches die SPA-LEED Messungen vollständig beschreibt stehen die STM-Messungen entgegen (s. Abb. 4.17). Die STM-Bilder zeigen deutlich, daß sich die Oberfläche aus ebenen viereckigen Berei-

chen zusammensetzt, die durch Gräben, die aus zwei Mosaiken bestehen, getrennt sind. Diese Struktur, wie sie in Abb.4.30 b prinzipiell gezeigt ist, bildet ein quadratisches Übergitter, welches in einem Beugungsexperiment durch höhere Ordnungs-Reflexe in Erscheinung tritt.

Da die quadratischen Strukturen im STM-Experiment immer auftreten, ist davon auszugehen, daß im SPA-LEED-Experiment die höheren Ordnungs-Reflexe nicht aufgelöst wurden. Eine genauere Betrachtung des Beugungsbildes zeigt, daß das Profil in [01]-Richtung verglichen mit dem Profil in [12]-Richtung eine breite lorentzförmige Schulter aufweist. Dies zeigt, daß die quadratische Struktur nur schlecht geordnet ist und somit höhere Ordnungs-Reflexe stark verbreitert und in der Intensität sehr schwach sind. Dem übernächsten Kapitel vorgehend sei bemerkt, daß bei dem System NiO/Ag(100), welches eine Gitterfehlpassung von nur 2% hat, im Beugungsbild höhere Ordnungs-Reflexe gut ausgeprägt sind. Die 2D-Struktur der MgO-Filme entspricht also der in Abb.4.30 b dargestellten Situation.

---

# Kapitel 5

## Simulation

Die vorangegangenen Messungen zeigen, daß sich aus den Ergebnissen der STM-Messungen und der SPA-LEED-Messungen kein gefestigtes Modell der auf der Oberfläche herrschenden Morphologie erstellen läßt. Daher werden an dieser Stelle Simulationen vorgestellt, die die gewonnenen Erkenntnisse berücksichtigen und mit ihrer Hilfe aus realen Strukturen die Beugungsbilder berechnen. Die so gewonnenen Ergebnisse werden im Rahmen der NiO-Experimente genauer diskutiert.

### 5.1 Modell und Art der Simulation

Als Basis der Simulationen dienen eindimensionale Abfolgen von ebenen Bereich und verkippten Mosaikbereich. Die einzelnen Bereiche bestehen aus Ab-

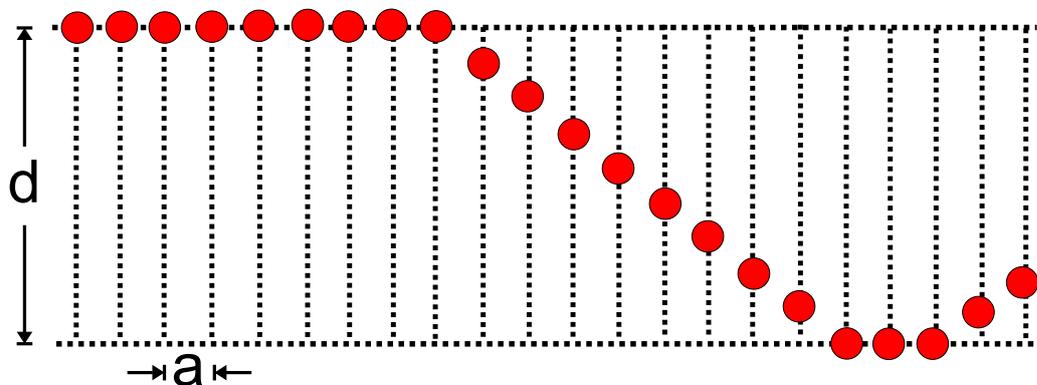


Abb. 5.1: Modell der Simulation

folgen von Atomen, die horizontal auf Gitterplätzen sitzen, vertikal hingegen ein beliebige Position in Bezug auf das Gitter einnehmen können, s. Abb. 5.1. Die ebenen Bereiche werden also perfekt dargestellt. Die Mosaikbereiche werden nicht exakt dargestellt, da hierbei die Atome eigentlich auch horizontal nicht mehr auf Gitterplätzen sitzen dürften. Da die Verkippungswinkel der Mosaikbereiche klein sind, ist der Fehler der horizontalen Positionierung klein und kann vernachlässigt werden. Als Parameter der Simulation stehen folgende Größen zur Verfügung:

- Terrassenbreite der ebenen Bereiche
- Variation der Terrassenbreite der ebenen Bereiche
- Größe und Anzahl der Mosaikwinkel
- Variation der Winkel
- Variation der Höhe der Mosaikbereiche (1,2 oder mehr Lagen)
- Anzahl der Mittelungen (üblicherweise 1000)

Mosaikbereiche verlaufen immer von einer Lage zur einer anderen Lage, wobei auch mehrere Lagen dazwischen liegen können. Die Variation der Mosaikwinkel führt also immer gleichzeitig zu einer Veränderung der horizontalen Breite der Mosaikbereiche.

Für die Simulation wurde folgendes Modell verwendet. Auf einem ebenen Bereich folgen ein absteigender Mosaikbereich, an den sich sofort ein aufsteigender anschließt. Dieses setzt sich nun periodisch, beginnend mit einem ebenen Bereich, fort. Werden Variationen der Größen eingeführt, so ist es nötig, daß über eine Vielzahl von Einzelmodellen gemittelt wird. Die Phasenfaktoren  $\exp(ik_{\perp}h(x))$  werden fouriertransformiert und anschließend das Betragsquadrat gebildet. Als Ergebnis ergibt sich  $|\mathcal{FT}(\exp(ik_{\perp}h(x)))|^2$ . Dieses entspricht dem mit dem SPA-LEED gemessenen Schnitten im Beugungsbild. Diese Prozedur wird für unterschiedliche Phasen durchgeführt und somit ein Schnitt  $k_{\parallel}$  gegen  $k_{\perp}$  ausgerechnet. Dieser läßt sich mit Schnitten, die mit dem SPA-LEED gemessen wurden, vergleichen.

## 5.2 Ergebnisse der Simulation

Im Folgenden werden Ergebnisse der Simulationen gezeigt. Alle Simulationen sind ohne eine Variation der Mosaikwinkel gerechnet. Jede Zeile setzt sich aus einer Mittelung über 1000 einzelne Modelle zusammen.

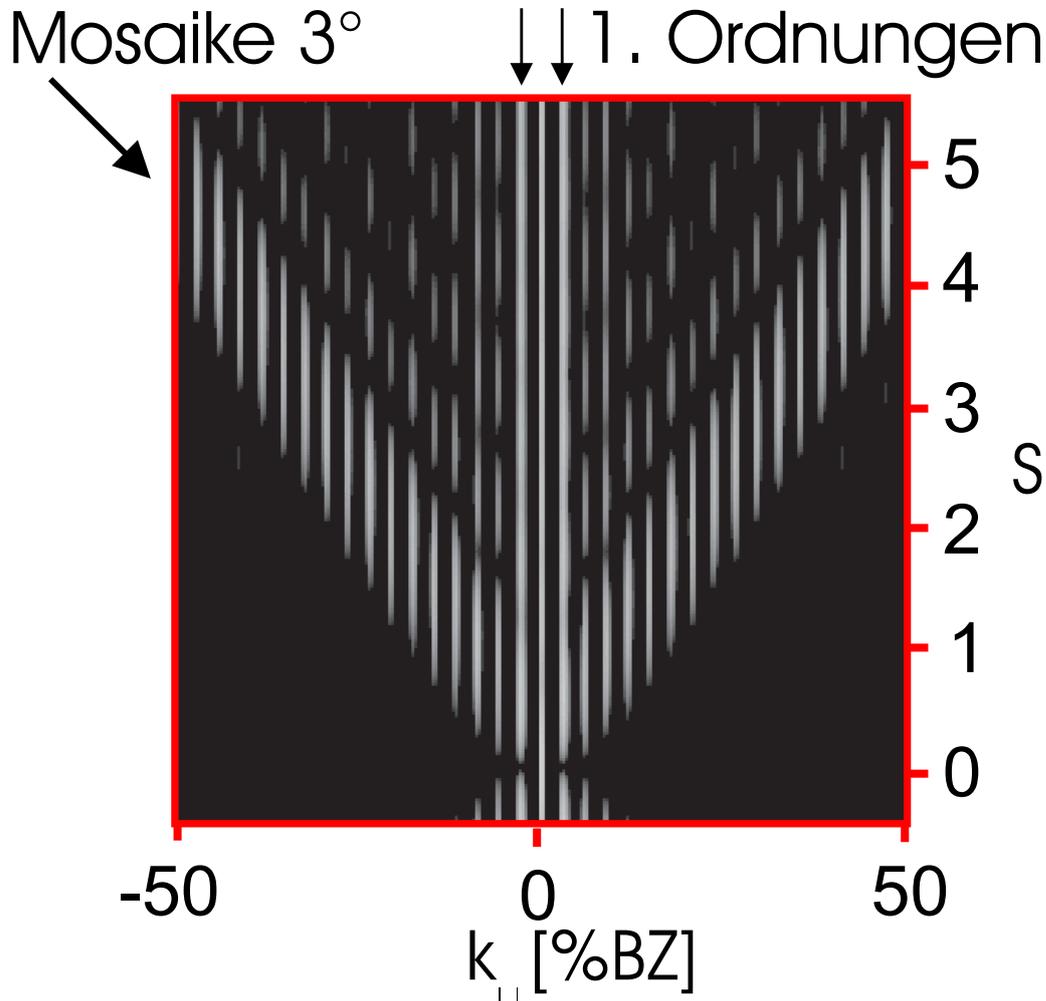


Abb. 5.2: Ergebnis der Simulation ohne Variationen

### 5.2.1 Ein Mosaikwinkel

Der einfachste Fall ist das Auftreten eines Mosaikwinkels (hier  $3^\circ$ ). Das Ergebnis der Simulation ohne Variation, ist in Abb. 5.2 gezeigt. Der gezeigte Schnitt im K-Raum geht in  $k_{||}$ -Richtung von -50 - +50 % BZ und in  $k_{\perp}$ -Richtung von  $S=-0.5$  bis 5.5. Auffallend ist der streifige Charakter des Bildes. Dieses kommt vom regelmäßigen Abstand der Terrassenbreite, der hier 30 Atome beträgt. Hierdurch treten im reziproken-Raum bei  $1/30$  und vielfachen Intensitäten auf. Deutlich sind auch die auslaufenden Intensitäten der beiden Mosaikrichtungen zu sehen, diese zeigen aber nur Intensität an den Stellen, an denen auch höhere Ordnungen des regelmäßigen Abstands

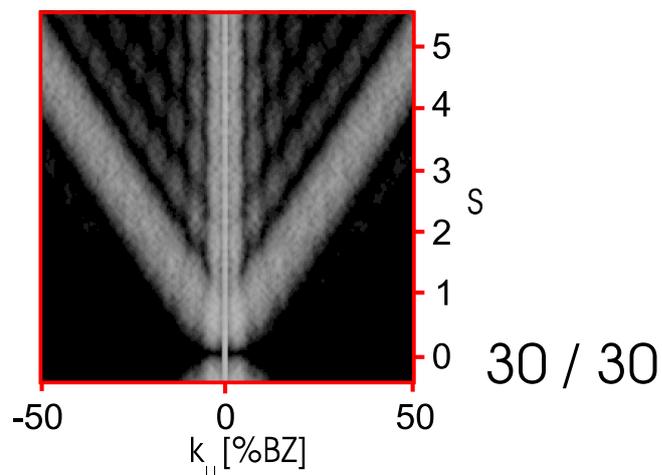
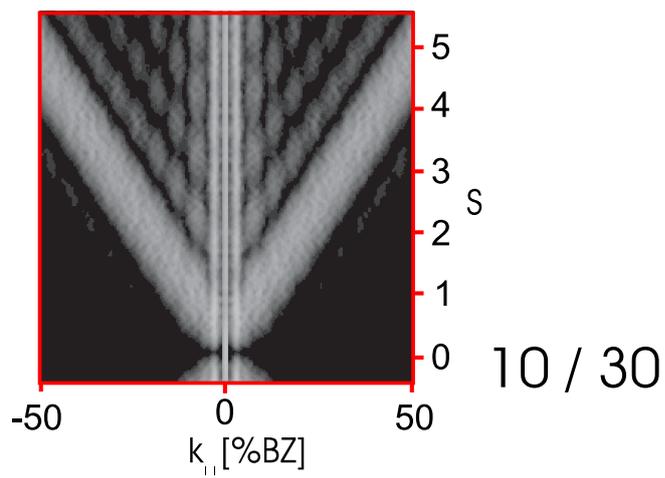
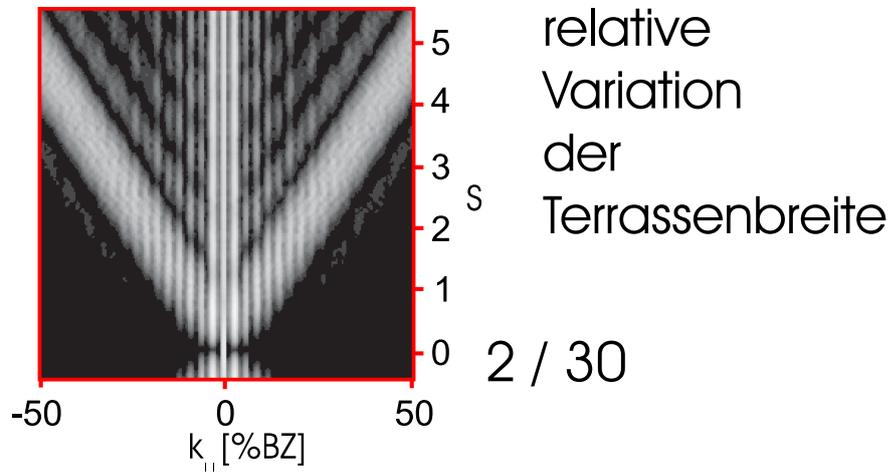
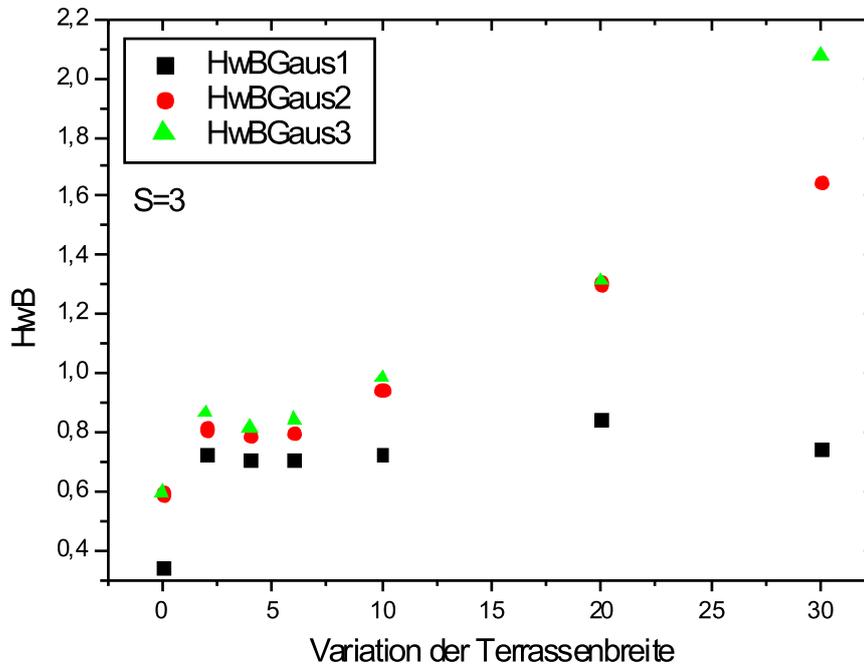


Abb. 5.3: Ergebnis der Simulation/Variation der Terrassenbreite

---

## 5.2. ERGEBNISSE DER SIMULATION

---



**Abb. 5.4:** Auswertung der Simulationsergebnisse: Halbwertsbreite der inneren Satellitenreflexe über der Variation der Terrassenbreite bei Phase  $S=3$

der Terrassenbreite auftreten. Dies wird durch die Multiplikation der Intensitäten der einzelnen Anteile verursacht. Dadurch kommt es entlang der Mosaikstange zu Intensitätsauslöschungen zwischen den höheren Ordnungen des regelmäßigen Abstandes der Terrassenbreite. Neben der (00)-Reflex-Stange verlaufen links und rechts davon zwei durchgehende Stangen, die die ersten Ordnungen des regelmäßigen Abstands der Terrassenbreite sind.

Erstaunlich ist der Bereich zwischen (00)-Stange und Mosaikstangen. Es treten unerwarteterweise Intensitäten auf. Die Intensitäten verlaufen parallel zu den Mosaiken und werden wie die Mosaikselbst von den höheren Ordnungen unterbrochen.

In Abb. 5.3 sind drei Simulationen mit einem Mosaikwinkel von  $3^\circ$  gezeigt, bei denen eine Variation der Terrassenbreite eingeführt wurde. Diese Variation nimmt von oben nach unten von 2 auf 30 Atomen zu. Der streifige Charakter des Bildes 5.2 (ohne Variationen) ist im obersten Bild (Variation

## KAPITEL 5. SIMULATION

---

2 Atome) schon stark geschwächt. Nur für kleine  $k_{||}$ -Werte sind noch Streifen zu sehen. Zu größeren  $k_{||}$ -Werten sind die einzelnen Intensitätstangen nicht mehr unterbrochen und verlaufen kontinuierlich. Der Übergang vom streifigen Bereich zum kontinuierlichen Bereich ist hier bei 20% Brillouinzone. Beim mittleren Bild mit einer Variation der Terrassenbreite von 10 Atomen ist der streifige Charakter kaum mehr vorhanden. Die Intensitätsstangen der Mosaik sind kontinuierlich. Die zu diesen parallel verlaufenden Intensitäten sind noch unterbrochen. Die Bereiche mit Intensität haben aber eine größere Breite als im obersten Bild. Im untersten Bild beträgt die Variation der Terrassenbreite 30 Atome. An der eigentlichen Struktur des Bildes ändert sich nicht mehr viel. Es ist aber deutlich zu sehen, daß sich die Halbwertsbreite der ersten Ordnungstange vergrößert hat. Die Halbwertsbreite der inneren Satellitenreflexe und des Zentralreflexes bei Phase  $S=3$  über der Variation der Terrassenbreite ist in Abb. 5.4 zu sehen.

Die Halbwertsbreite des zentralen Reflexes ändert sich mit der Variation der Terrassenbreite nicht und hat einen Wert von 0.7% BZ. Die Halbwertsbreite der innersten Satellitenreflexe ist bis zu einer Variation von 6 Atomen konstant mit einem Wert von 0.8 %BZ und steigt ab dort linear. Die Halbwertsbreite erreicht bei einer Variation von 30 Atomen einen Wert von 1.6% BZ und hat sich somit verdoppelt.

In Abbildung 5.5 sind drei Simulationsergebnisse zu sehen. Die Höhenvariation der Mosaik nimmt vom obersten Bild mit 0.1 Atomen über 0.4 im mittleren Bild zum untersten Bild mit 1 Atom zu. Die Variation der Höhe der Mosaik bewirkt, daß ein Mosaik nicht nur von einer Lage zur anderen Lage führt, sondern auch über 2 oder mehr Lagen führen kann. Die Höhen der Mosaik können nur ganze Lagenabstände einnehmen. Die ebenen Bereiche liegen nun nicht mehr alle in einer Ebene, da z.B ein Mosaik nach unten über 1 Lage und das folgende Mosaik nach oben über zwei Lagen geht, sodaß der anschließende ebene Bereich eine Lage höher liegt als der Bereich vor dem Mosaikgraben. Dieses führt zu einer Rauigkeit der Oberfläche. Es kommt zu destruktiver Interferenz der einzelnen Teilwellen, die an den einzelnen unterschiedlich hohen Lagen reflektiert werden. Als Folge zeigen die simulierten Schnitte eine starke Phasenabhängigkeit. In den simulierten Schnitten durch den K-Raum (Abb. 5.5) ist bei Inphase-Bedingungen deutlich eine scharfe zentrale Spitze und Satelliten 1. Ordnung zu erkennen, bei Gegenphasebedingung dagegen keine zentrale Spitze, so daß der Reflex der (00)-Stange sehr diffus ist. Die Mosaikstange wird weiterhin von den höheren Ordnungen des durch den regelmäßigen Abstand der Terrassen auftretenden Reflexes unterbrochen. Diese Unterbrechungen sind aber nicht mehr bei festen  $k_{||}$ -Werten, sondern ändern ihre Position mit steigender Phase. Die Steigerung der Varia-

## 5.2. ERGEBNISSE DER SIMULATION

---

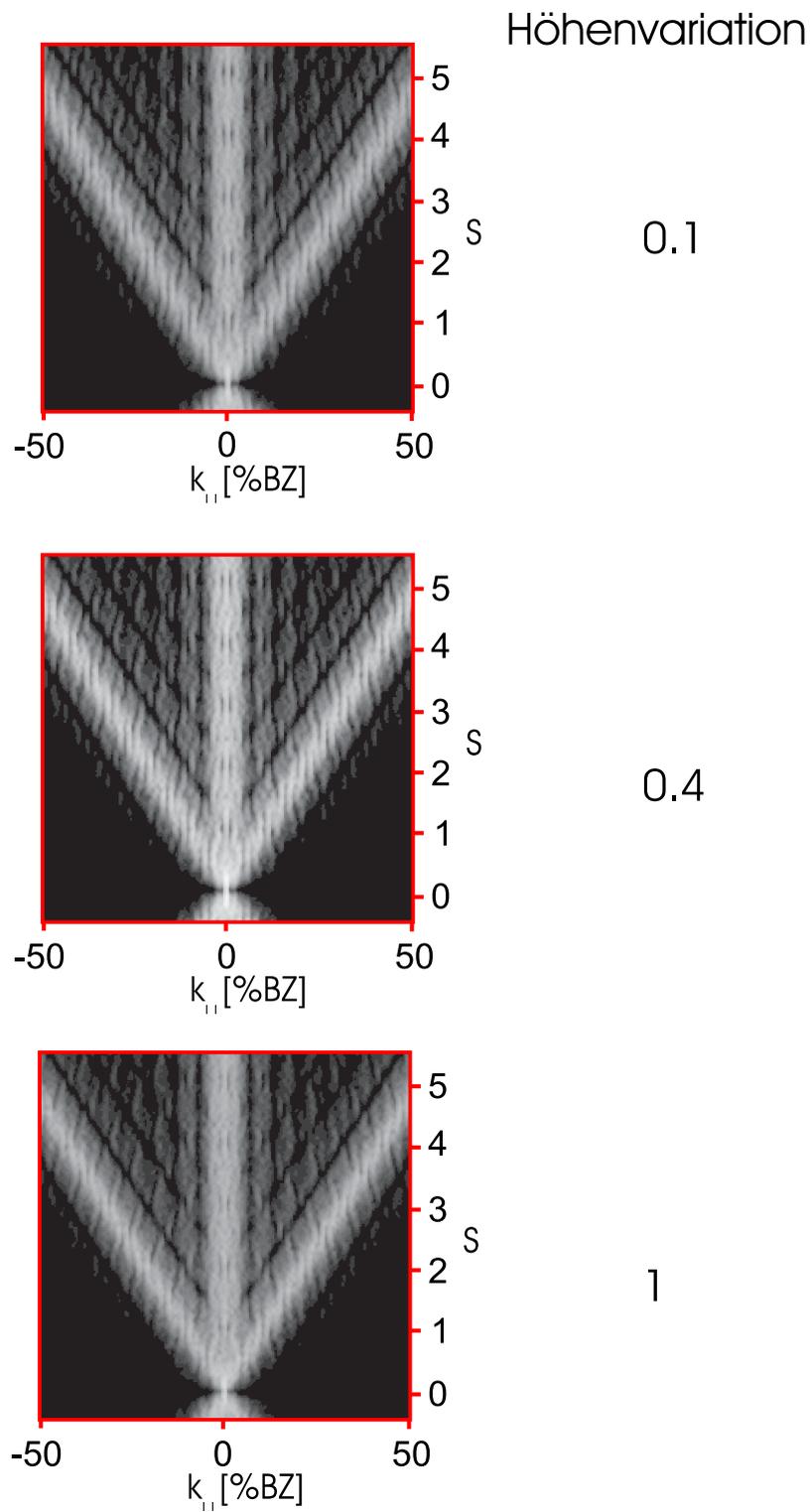


Abb. 5.5: Ergebnis der Simulation/Variation der Höhe

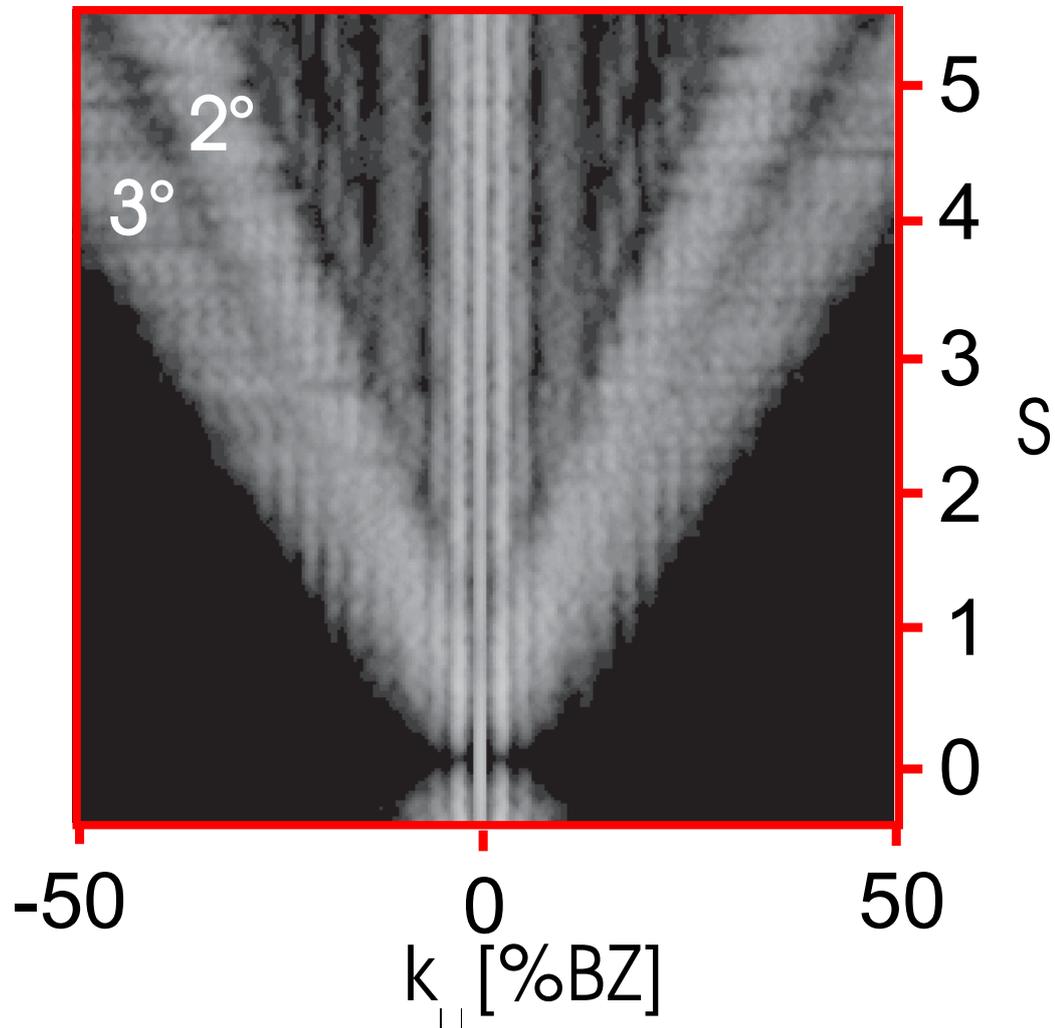


Abb. 5.6: Ergebniss der Simulation: 2 Mosaikwinkel

tion der Höhe von 0.1 zu 1 hat keine erkennbaren Auswirkungen in den Bildern. Ausschließlich die Einführung einer Höhenvariation führt zu den oben beschrieben Veränderungen, welche ein starke Abweichung des simulierten Beugungsbildes von dem simulierten Beugungsbild in Abb. 5.2 darstellt.

### 5.2.2 Mehrere Mosaikwinkel

Im Folgenden werden nun mehrere Mosaikwinkel eingeführt. Zuerst einmal werden zwei Mosaikwinkel mit  $2^\circ$  und  $3^\circ$  eingeführt. Das Ergebnis ist in Bild 5.6 zu sehen. Zuerst einmal sind deutlich die (00)-Reflexstange und die Mosa-

## 5.2. ERGEBNISSE DER SIMULATION

---

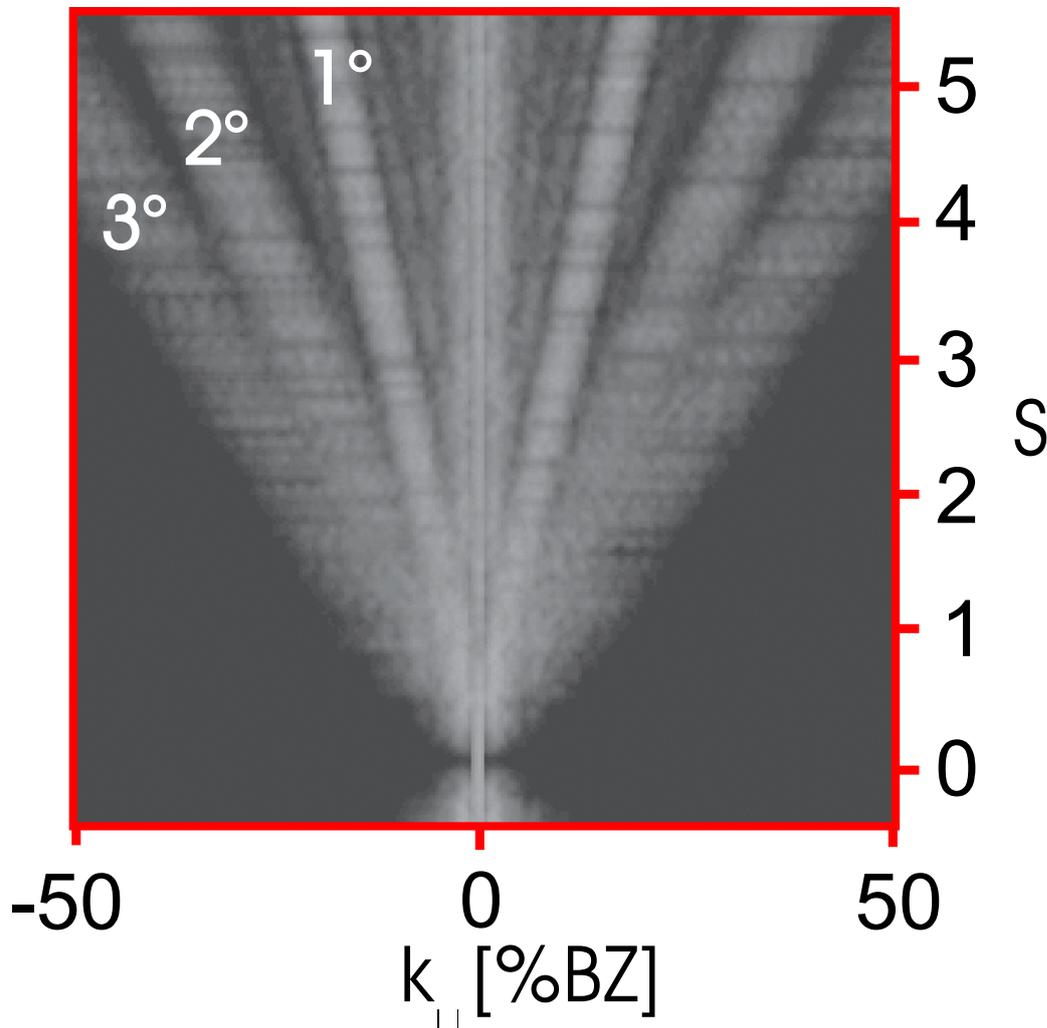


Abb. 5.7: Ergebnis der Simulation: 3 Mosaikwinkel

ikstangen für  $2^\circ$  und  $3^\circ$  zu sehen. Zwischen der  $2^\circ$ -Mosaikstange und der (00)-Reflexstange treten auch wie bei einem Mosaikwinkel Intensitäten auf, von den einige parallel zu der  $2^\circ$ -Mosaikstange verlaufen, andere parallel zu der (00)-Reflexstange verlaufen. Letzteres trat bei einem Mosaikwinkel nicht auf. Die Mosaikstangen beeinflussen sich gegenseitig nicht, obwohl sie kohärent überlagert werden. Links und rechts der (00)-Reflexstange treten jeweils zwei durchgehende Stangen höherer Ordnungen des Reflexes auf, der durch den regelmäßigen Abstand der Terrassenbreite hervorgerufen wird. Diese überlagern auch die beiden Mosaikstangen bei niedrigen Phasen ( $S < 2$ ).

Der Fall für drei Mosaikwinkel ist in Abb. 5.7 zu sehen. Die Winkel be-

## KAPITEL 5. SIMULATION

---

tragen  $1^\circ$ ,  $2^\circ$  und  $3^\circ$ . Das Bild ist ohne Höhenvariation der Mosaikstange, hat aber eine Terrassenvariation von 11 Atomen. Die Intensitätsstangen für die drei Mosaikstangen sind deutlich zu sehen. Zwischen (00)-Reflexstange und der  $1^\circ$ -Mosaikstange treten auch zusätzliche Intensitäten auf, die parallel zu der Mosaikstange verlaufen. Auch zwischen  $1^\circ$ -Mosaikstange und  $2^\circ$ -Mosaikstange sind zusätzliche Intensitäten zu beobachten, von denen ein Teil parallel zu der  $1^\circ$ -Mosaikstange verläuft, der andere parallel zu der  $2^\circ$ -Mosaikstange.

---

# Kapitel 6

## NiO/Ag(100)

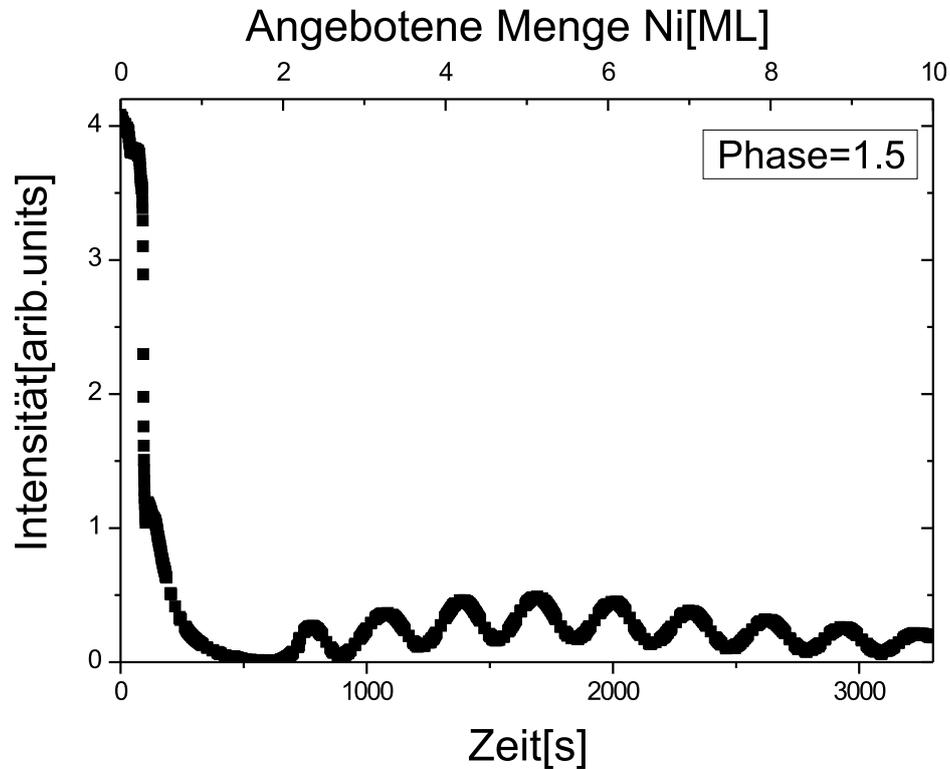
Das Wachstum von NiO auf Ag(100) wurde im Temperaturbereich von 293K-473K und einer Bedeckung von 10ML studiert.

### 6.1 SPA-LEED Messungen

Für unterschiedliche Schichtdicken und Temperaturen wurde die Intensität des (00)-Reflexes während des Wachstums gemessen. Außerdem wurde nach Beendigung des Aufdampfens die Phasenabhängigkeit des (00)-Reflexes vermessen.

#### 6.1.1 10 ML NiO/Ag(100) bei Raumtemperatur

NiO wurde mit einer Rate von 0.18 ML/min aufgebracht. Der O<sub>2</sub>-Partialdruck betrug  $1 \times 10^{-7}$  mbar. In Grafik 6.1 ist die Intensität des (00)-Reflexes gegen die Bedeckung  $\Theta$  bei Gegenphasebedingung aufgetragen. Die Intensität fällt am Anfang des Wachstums stark ab. Zu 2ML NiO steigt die Intensität des (00)-Reflexes leicht an und bildet bei 2ML ein Maximum aus. Im weiteren oszilliert die Intensität mit der Periode 1ML und hat bei ganzen Lagen Maxima. Das Aufdampfen des NiO wurde beim Erreichen des 9. Maximums, also bei 10ML, abgebrochen. Die Amplitude der Oszillation steigt bis zu 5ML leicht an und fällt zu 10ML hin wieder leicht ab. Das verzögerte erste Maximum der Oszillationsmessung zeigt, daß NiO zuerst in Doppellagen auf NiO aufwächst. Die weiteren Lagen, die dann auf der NiO Doppellage wachsen, sind einlagig.



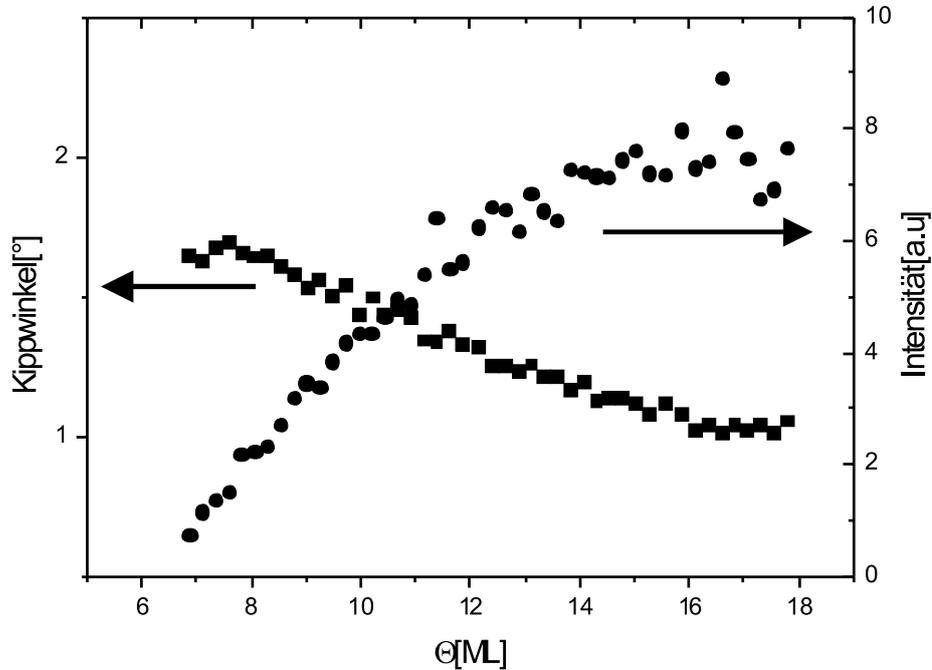
**Abb. 6.1:** Intensität des (00)-Reflexes während des Aufdampfens bei einer Temperatur von  $T=293\text{K}$  und einer Rate von  $0.18\text{ML}/\text{min}$

Der starke Einbruch der Intensität am Anfang der Messung kann einerseits von der Änderung des Formfaktors  $F_{\text{Ag}} \rightarrow F_{\text{NiO}}$  herrühren. Andererseits kann die Intensität durch eine Aufrauung der Fläche einbrechen. Die Oszillation der Intensität zeigt, daß NiO im Lage-für-Lage Modus wächst. Damit ist davon auszugehen, daß die Formfaktoränderung den starken Intensitätsabfall von der Ausgangsintensität zum 1. Maxima bewirkt. Eine gewisse Aufrauung der Fläche muß aber auch stattgefunden haben, da die Intensität der Maxima zunächst ansteigt, also eine Glättung der Oberfläche stattfindet.

Während des Aufdampfens wurden Schnitte durch den (00)-Reflex in [11]-Richtung aufgenommen. Diese zeigen, daß neben der zentralen Spitze ab 6ML auch Satelliten auftreten. Durch Anpassung einer Lorentzfunktion für die zentrale Spitze und jeweils eine Lorentzfunktion für die Satelliten, wurde die Intensität und die Position der Satelliten bestimmt. Aus der Position der Satelliten bestimmt sich, nach Gl.1.51, der Winkel der Mosaik. Dieser und

## 6.1. SPA-LEED MESSUNGEN

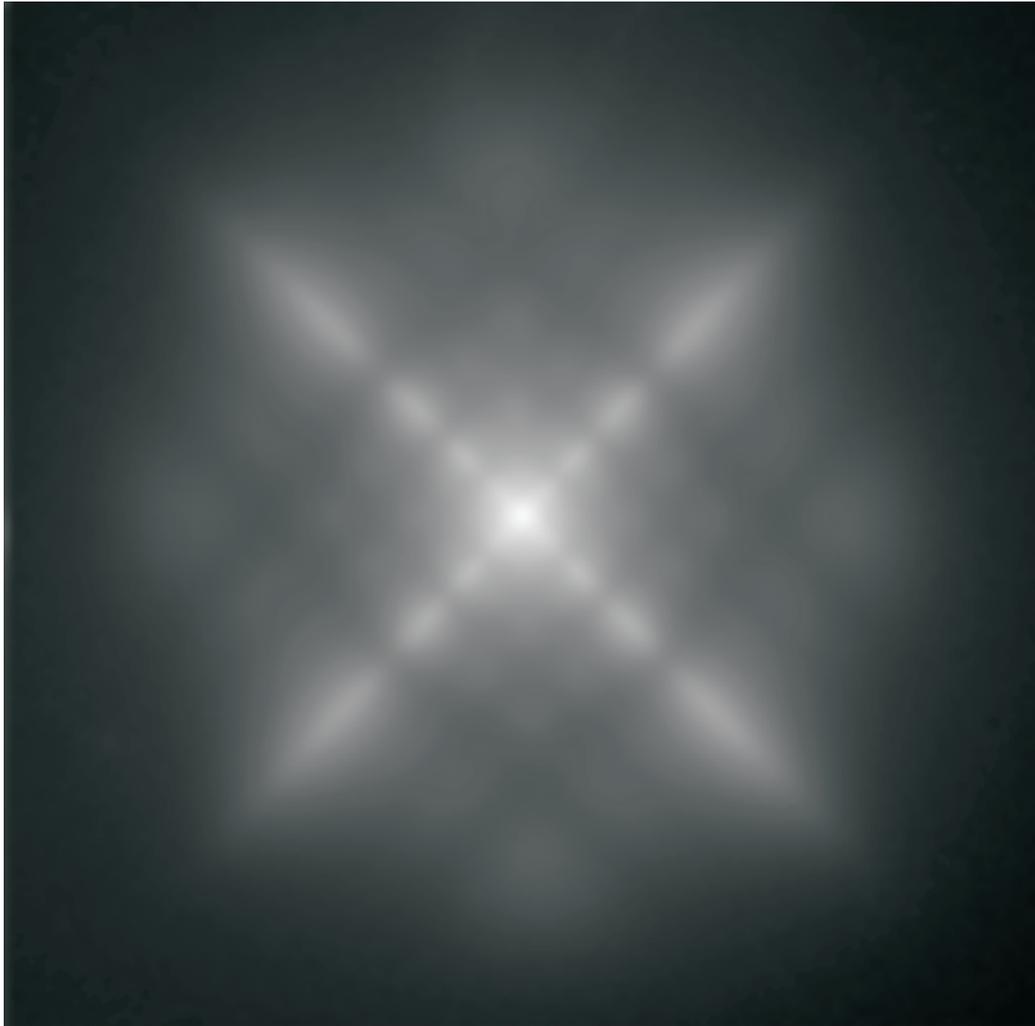
---



**Abb. 6.2:** Intensität des (00)-Reflexes während des Aufdampfens bei einer Temperatur von  $T=293\text{K}$  und einer Rate von  $0.18\text{ML/s}$

die Intensität der Satellitenreflexe sind in Abb. 6.2 gegen die Bedeckung aufgetragen. Ab  $6.5\text{ML}$  treten die Satellitenreflexe mit einer geringen Intensität auf. Der Winkel der Mosaik ist hier  $1.7^\circ$ . Mit steigender Bedeckung nimmt die Intensität der Satelliten zu, die Position der Satelliten verschiebt sich zu kleineren  $k_{\parallel}$ -Werten. Der Winkel der Mosaik wird flacher und erreicht bei  $18\text{ML}$  einen Wert von  $\vartheta = 1.1^\circ$ . Die Spitzenintensität der Satellitenreflexe steigt mit der Bedeckung kontinuierlich an.

In Bild 6.3 ist das Beugungsbild der  $10\text{ML}$  dicken NiO-Schicht bei einer Energie von  $124.5\text{eV}$  (Phase=3.8) zu sehen. Es zeigt einen Bereich von  $50 \times 50\% \text{BZ}$  um den (00)-Reflex. In [11]- und äquivalenten Richtungen sind intensitätsstarke Satelliten zu beobachten. Auch in der dazu um  $45^\circ$  gedrehten [10]-Richtung sind Satelliten zu beobachten. Diese sind in ihrer Intensität deutlich schwächer, als die Satelliten in der [11]-Richtung.



**Abb. 6.3:** Beugungsbild des (00)-Reflexes bei  $S=3.8$ . Das Bild zeigt einen Bereich von  $50 \times 50\% \text{BZ}$ . Deutlich sind starke Satellitenreflexe in  $[11]$ -Richtung zu sehen, aber auch in  $[10]$ -Richtung sind Satellitenreflexe zu sehen, die aber deutlich schwächer ausgeprägt sind.

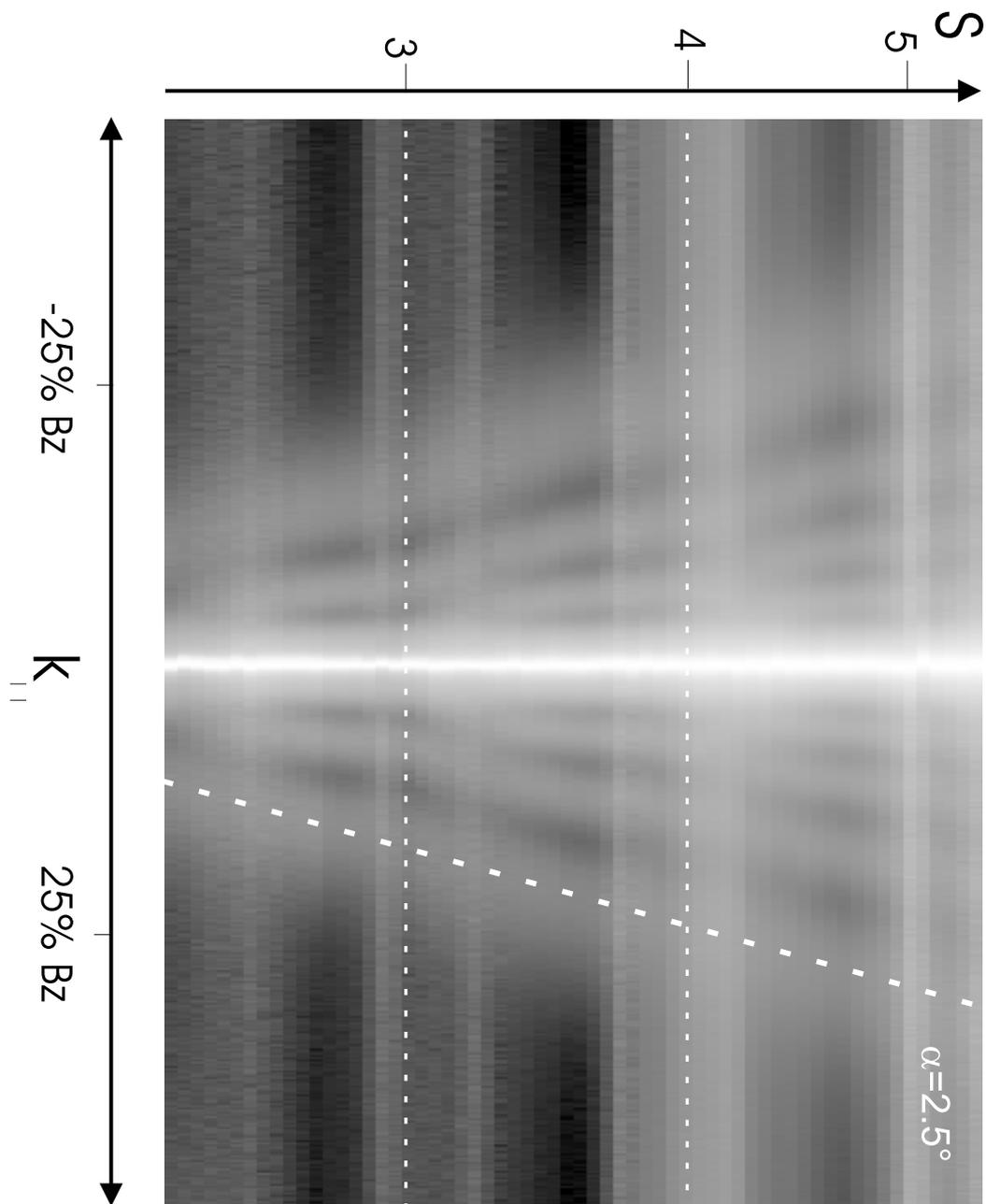
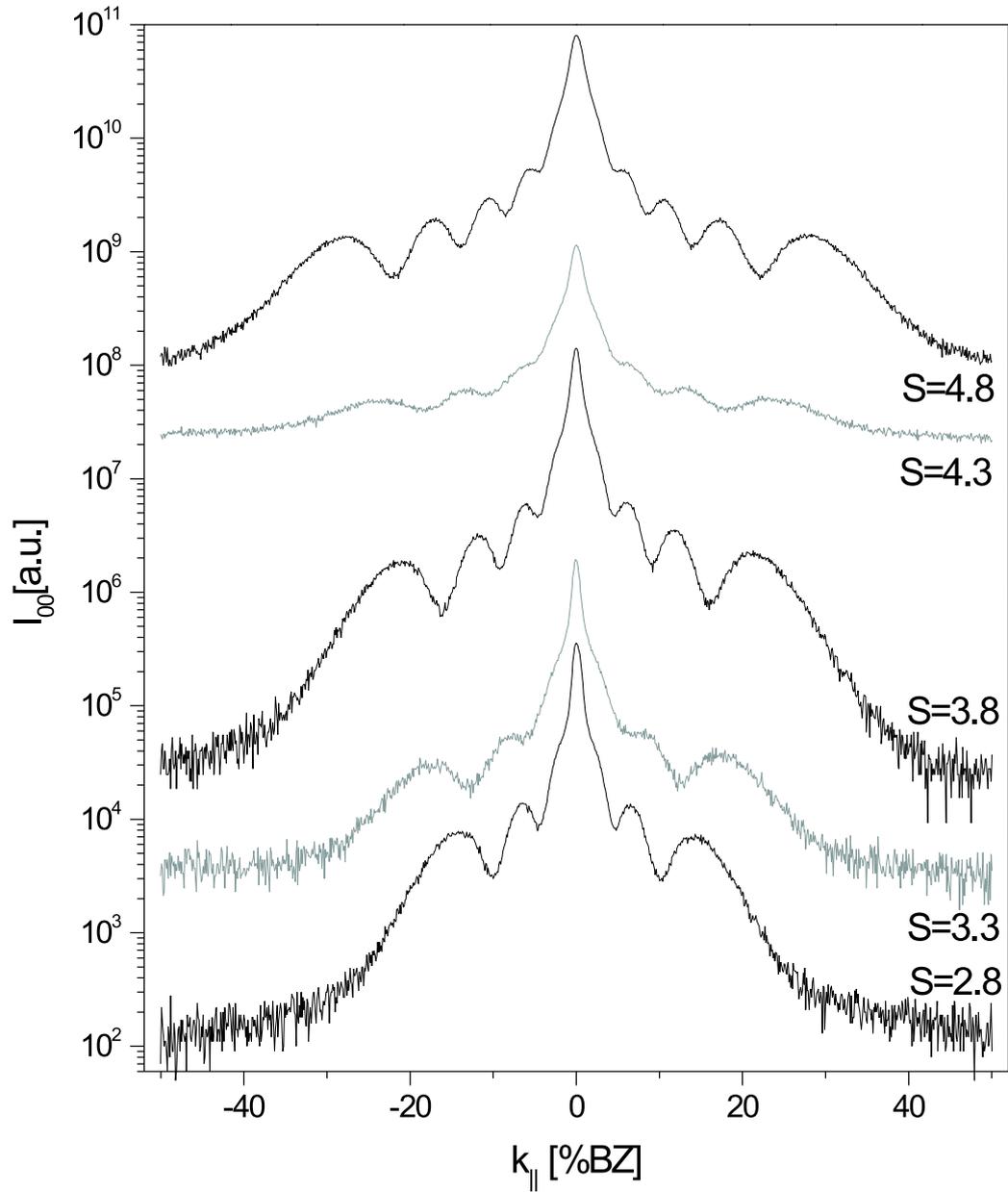


Abb. 6.4: Phasenabhängigkeit von Schnitten in [11]-Richtung durch den 00-Reflex.



**Abb. 6.5:** Profile des (00)-Reflexes in [11]-Richtung bei unterschiedlichen Streuphasen.

## 6.1. SPA-LEED MESSUNGEN

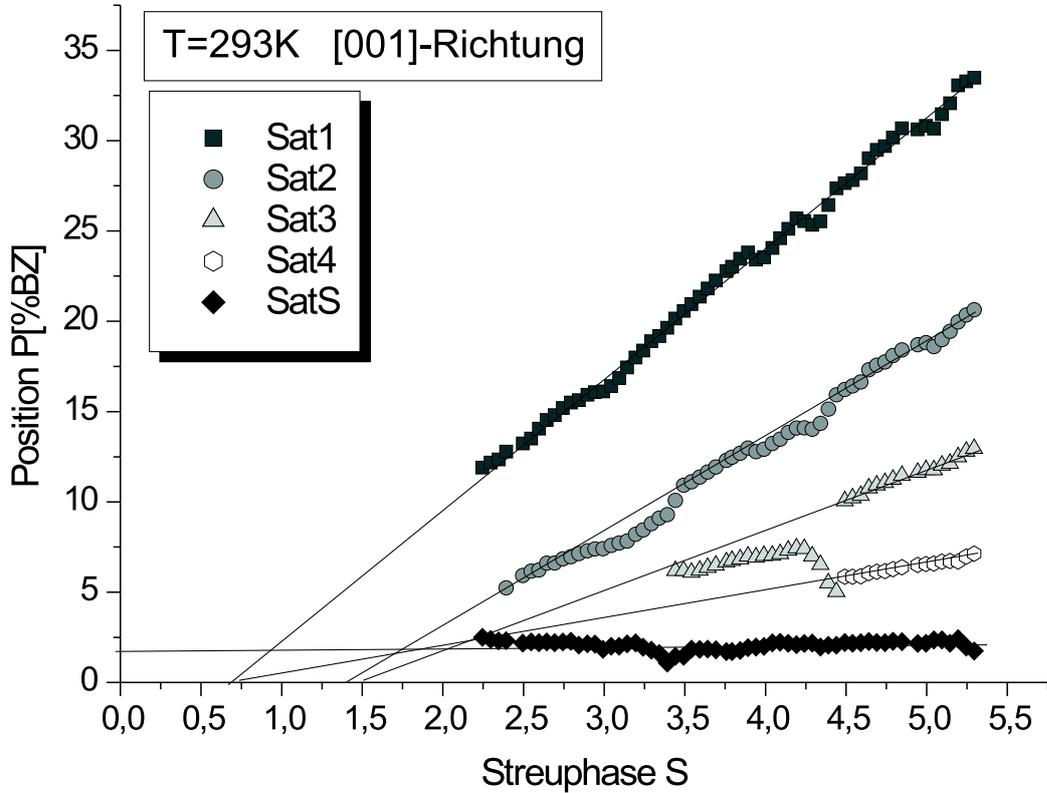


Abb. 6.6: Positionen der Satellitenreflexe über der Phase in [11]-Richtung

### Auswertungen in [11]-Richtung

Eine Phasenabhängigkeit von Schnitten durch den (00)-Reflex in [11]-Richtung ist in Bild 6.4 aufgetragen. Auf der x-Achse ist die [11]-Richtung aufgetragen. Auf der y-Achse ist die Streuphase von 2.2 bis 5.2 aufgetragen. Die Grauwerte geben die Intensität wieder. Um so heller das Grau, um so mehr Intensität. Mit zunehmender Phase wandert der äußere Satellit weiter nach außen. Bei Phase 2.5 erscheint zwischen äußerem Satelliten und dem (00)-Reflex ein weiterer Satellit. Auch dieser wandert mit zunehmender Phase zu größeren  $k_{\parallel}$ -Werten. Bei Phase 3.5 spaltet dieser in zwei Satelliten auf, die mit zunehmender Streuphase auch zu höheren  $k_{\parallel}$ -Werten wandern. Der innere dieser beiden Satelliten wird bei Phase 4.5 ebenfalls in zwei Satelliten aufgespalten, die auch mit steigender Phase zu höheren  $k_{\parallel}$ -Werten wandern. In Abb. 6.5 sind zur Verdeutlichung noch einmal einzelne Schnitte bei unterschiedlichen Phasen gezeigt. Durch anpassen von jeweils einer Ringlorenzfunktion für die Satelliten und einer Lorentzfunktion für die Spitze an die Profile ergeben sich die exakten Position der Satelliten und deren Halbwertsbreiten. Die Position

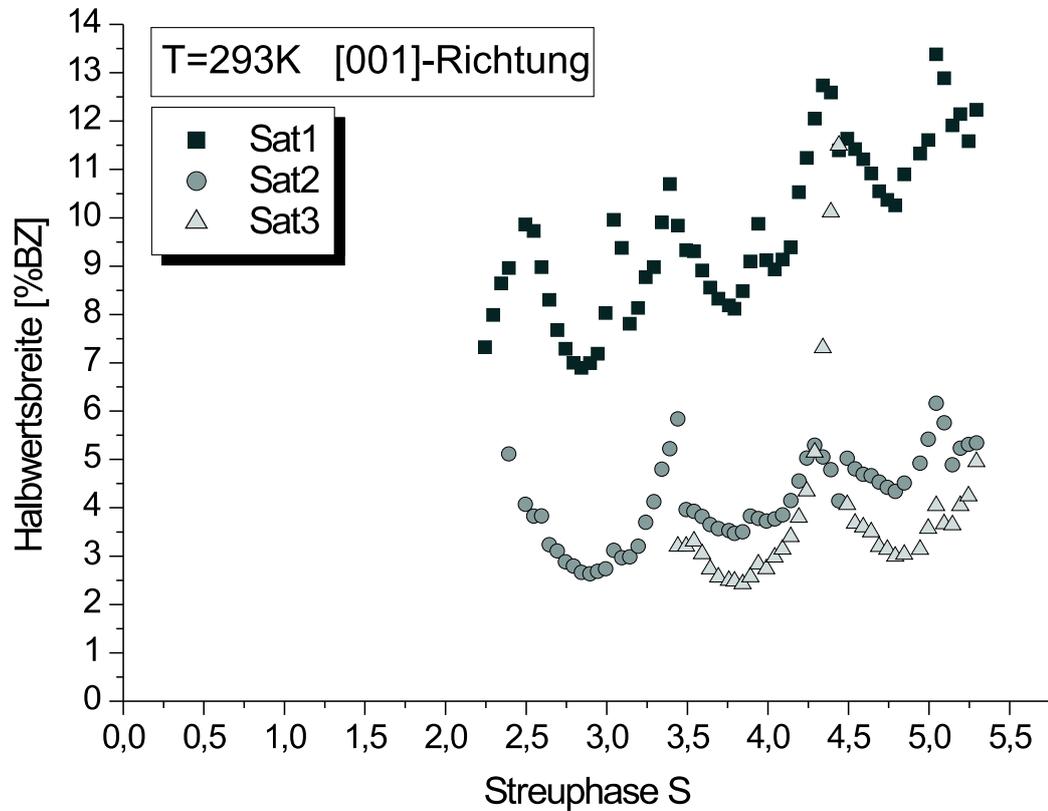


Abb. 6.7: Halbwertsbreiten der drei äußeren Satellitenreflexe über der Phase

der Satelliten in Abhängigkeit der Streuphase  $S$ , sind in Abb. 6.6 zu sehen. Diese Analyse zeigt, daß sich bei 2% BZ ein weiterer Satellit befindet, der seine Position mit der Streuphase nicht ändert. Die anderen Satellitenreflexe wandern linear mit steigender Phase zu höheren  $k_{\parallel}$ -Werten.

Das Verhalten der äußeren 4 Satellitenreflexe zeigt, daß es sich hierbei um Reflexe handelt, die von Mosaiken hervorgerufen werden. Der Schrittpunkt der einzelnen Satelliten liegt aber nicht bei  $S=0$ . Der äußerste und der vierte Satellit schneiden die X-Achse bei  $S=0.5$ , die anderen beiden bei  $S=1.5$ . Dieses würde gegen Mosaik sprechen. Mit Hilfe von Gleichung 1.51 lassen sich die Winkel bestimmen, wenn die eben angesprochene Problematik erst einmal außer Acht läßt. Die Auftragung der Halbwertsbreiten der Satellitenreflexe über der Phase  $S$  (Abb.6.7 für die äußeren Satelliten) zeigt, daß diese oszillieren und mit steigender Phase größer werden. Nach Gleichung 1.53 läßt sich aus dem Anstieg der Halbwertsbreiten die Varianz  $\Delta\Theta$  der Mosaikwinkel bestimmen. Für die Winkel und deren Varianzen ergeben sich die in Tab. 6.1.

## 6.1. SPA-LEED MESSUNGEN

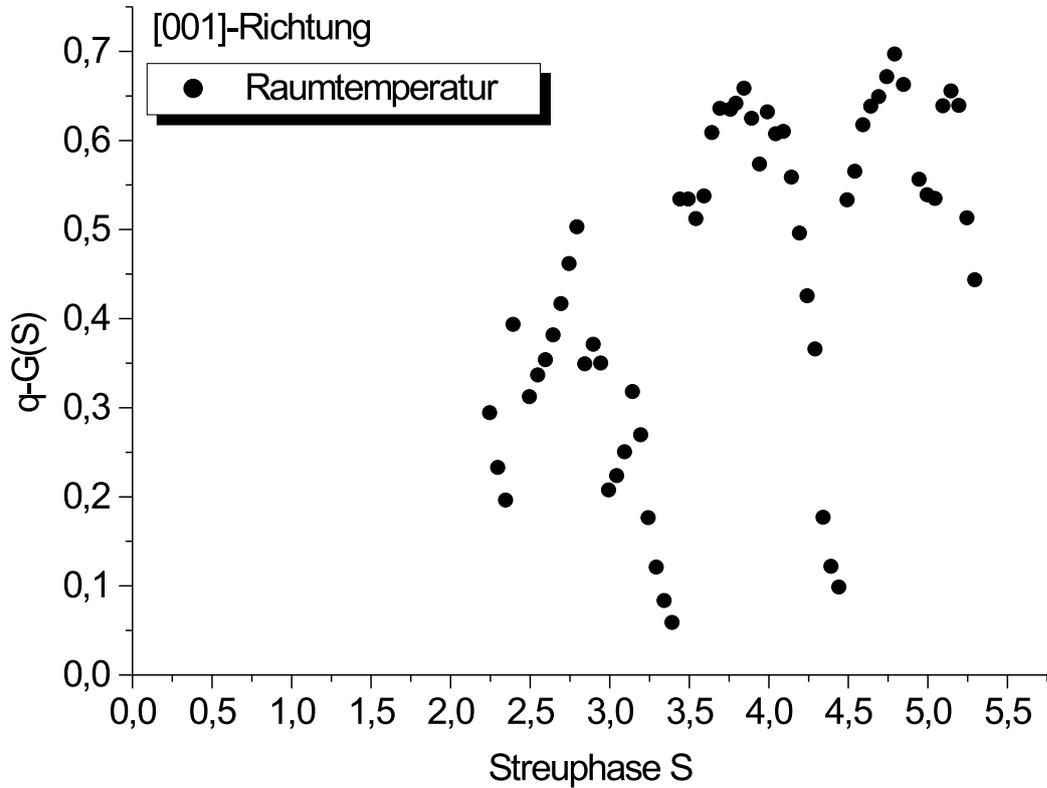


Abb. 6.8: quasi-G(S) Kurve

Eine Auswertung der Spitze und des inneren, sich nicht mit der Phase verschiebenden, Satellitenreflexes zeigt, daß beide ihre Intensität mit steigender Phase oszillierend ändern. Eine  $G(S)$ -Analyse nach Gleichung 1.49, unter Anwendung der bei Erdös[36] beschriebenen „quasi“- $G(S)$ -Analyse, führt zu Abb.6.8. Diese  $q-G(S)$ -Kurve zeigt das für rauhe Flächen übliche oszillierende Verhalten. Jedoch sind die Maxima bei In-Phase-Bedingung zu breit und im Gegensatz dazu, die Minima bei Gegen-Phase-Bedingung zu schmal. Sowohl die Rauigkeit, als auch die Schichtverteilung lassen sich aus Grafik 6.8 nicht bestimmen. Lediglich der Anteil der ebenen Bereiche läßt sich zu  $60 \pm 18\%$  bestimmen. Dieser Wert stimmt mit der Intensitätsabfalls, wie er in Abb. 6.1

Winkel	Sat1	Sat2	Sat3	Sat4
$\theta \pm \Delta\theta$	$2.5^\circ \pm 0.4^\circ$	$1.4^\circ \pm 0.2^\circ$	$1.1^\circ \pm 0.1^\circ$	$0.6^\circ \pm 0.2^\circ$

Tab. 6.1: Kippwinkel der Mosaik für einen 10ML dicken NiO/Ag(100) Film, der bei Raumtemperatur hergestellt wurde.

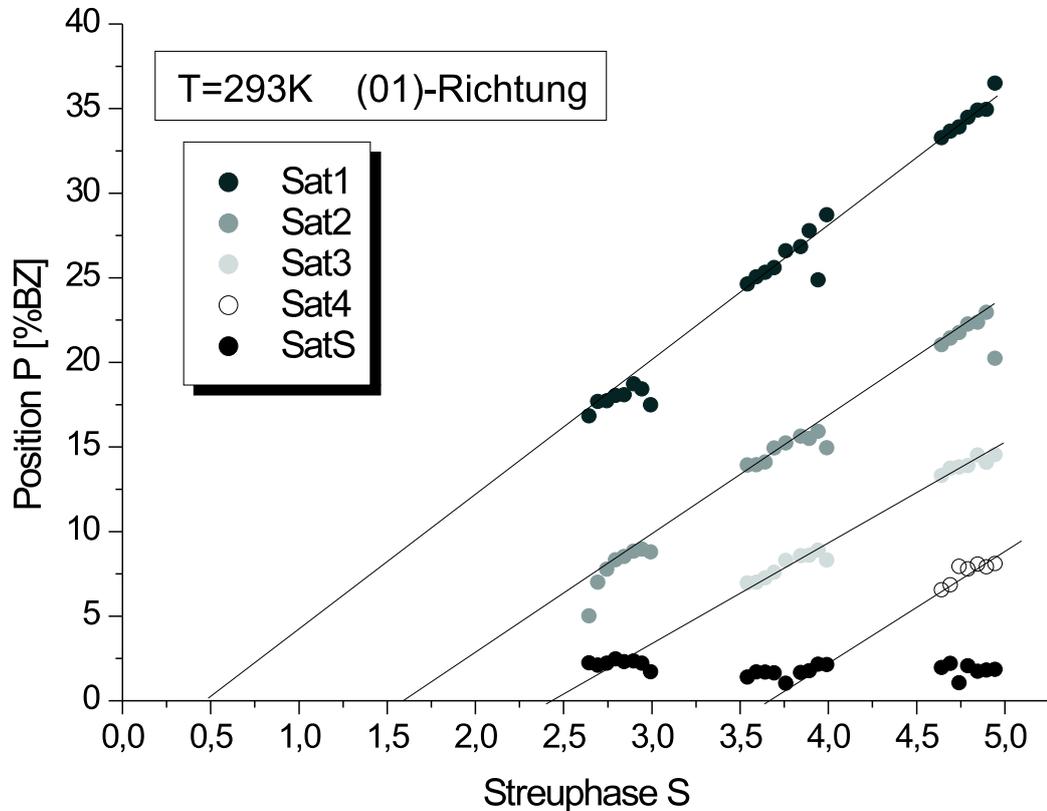


Abb. 6.9: Positionen der Satellitenreflexe

gezeigt ist, schlecht überein. Die Intensität der Maxima fällt von 6ML zu 9ML um 73%. Damit ist die Intensität durch die Entstehung der Mosaik auf 27% gefallen. Wird die Intensitätsabnahme nur auf die Entstehung der Mosaik zurückgeführt, so würde dieses Ergebniss mit den durch die quasi-G(S)-Kurve mit minimal 42% ebene Bereiche gegen 27% ebene Bereich nicht übereinstimmen.

### Auswertungen in [10]-Richtung

Auch die Profile in [10]-Richtung durch den (00)-Reflex zeigen Satelliten. Wie in Abbildung 6.5 wandern auch diese Satelliten mit steigender Phase S zu höheren  $k_{||}$ -Werten. Eine Anpassung von Lorentzprofilen an die Reflexe ergibt, wie oben, die exakten Positionen und Halbwertsbreiten der Satelliten. Die Satellitenpositionen sind in Grafik 6.9 gezeigt. Sie liegen bei  $\sqrt{2}$ -fachen  $k_{||}$ -Werten der Positionen der Satelliten in [11]-Richtung. Dieses ist auch sehr gut im zweidimensionalen Beugungsbild 6.3 zu erkennen. Zwischen den bei-

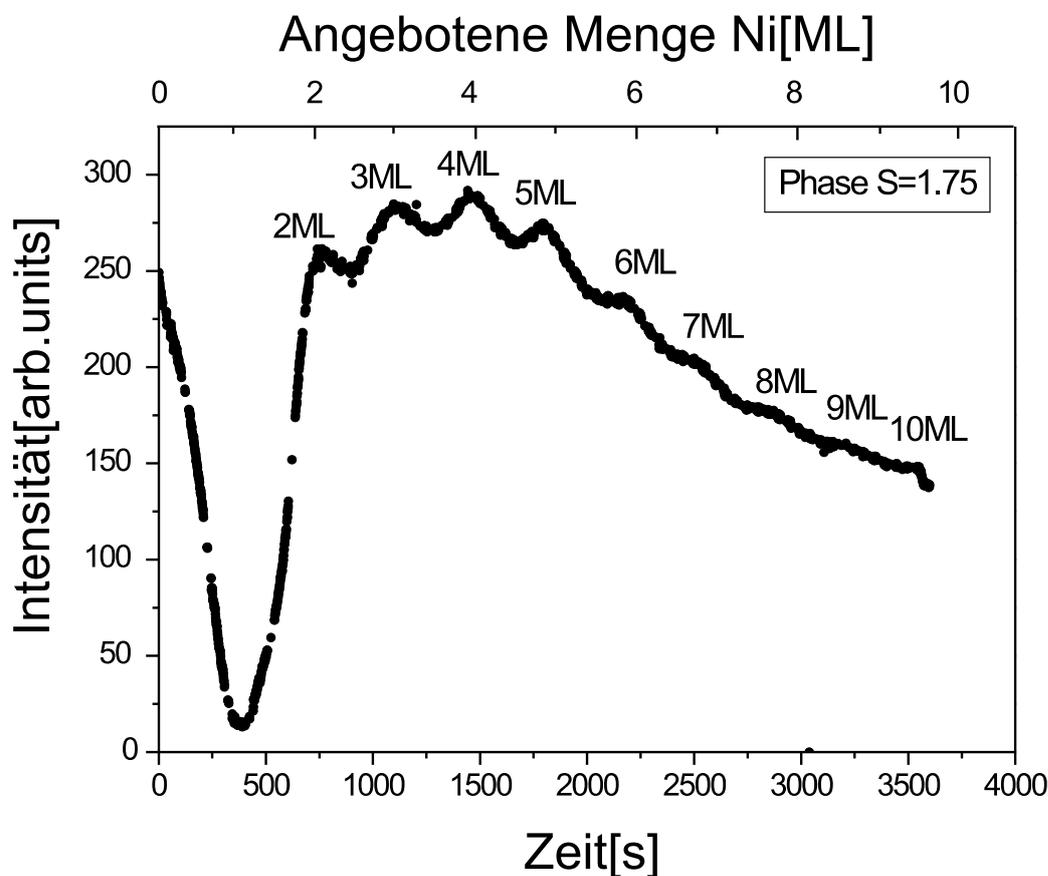


Abb. 6.10: Intensität des (00)-Reflexes über der Zeit

den Richtungen treten weitere Satelliten höherer Ordnung auf.

Auch die Halbwertsbreiten der Satellitenreflexe in [10]-Richtung steigen mit der Phase  $S$  an. Da es sich um höhere Ordnungen handelt, gehören die Satellitenreflexe in [10]-Richtung zu den gleichen Mosaikwinkeln, wie in [11]-Richtung.

### 6.1.2 10 ML NiO/Ag(100) @ 373K

Es wurden 10ML NiO mit einer Rate von 0.18ML/min aufgedampft. Das Verhalten der Intensität des (00)-Reflexes über der Zeit, also über der Bedeckung, ist in Abbildung 6.10 dargestellt. Wie auch bei Raumtemperatur fällt die Intensität des (00)-Reflexes nach Öffnen des Shutters ( $t=0$ ) rapide ab. Nach einer angebotenen Menge von zwei Lagen steigt die Intensität wieder auf ihr Ausgangsniveau an. Im folgenden oszilliert die Intensität des

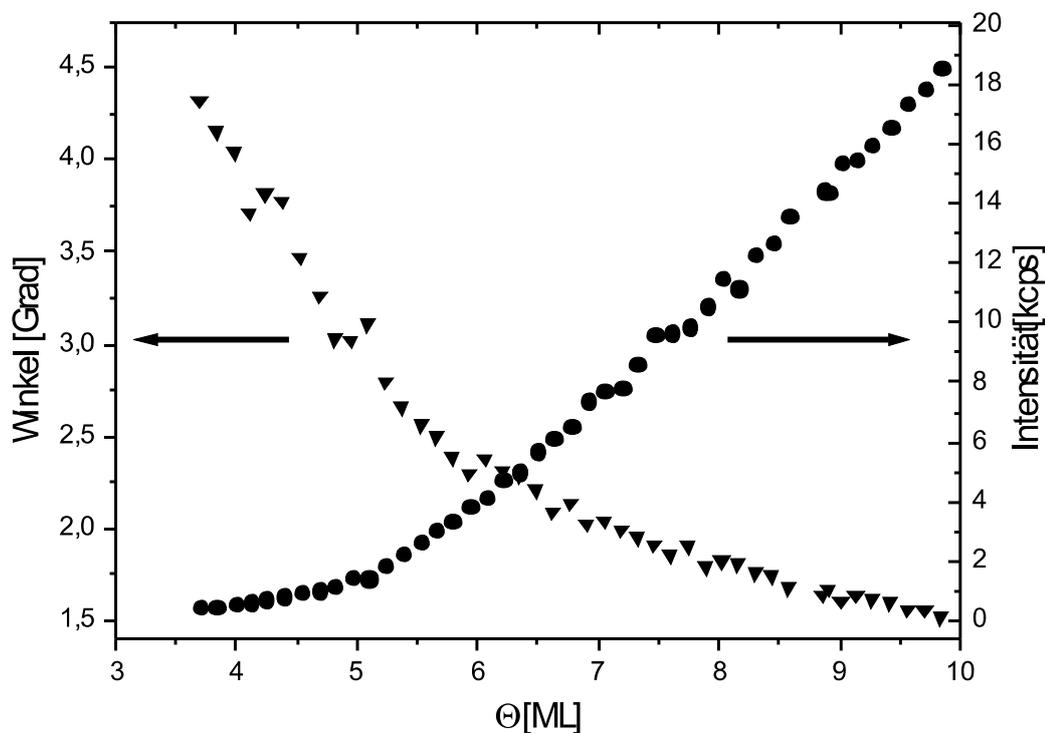


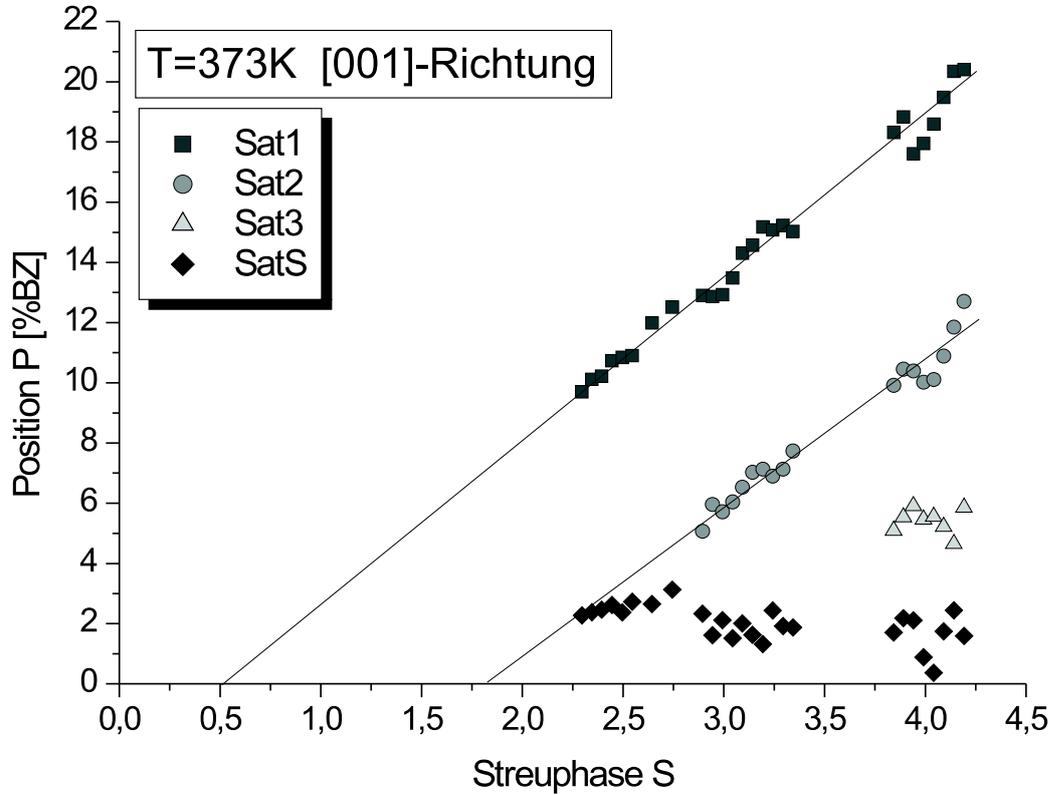
Abb. 6.11: Intensität und Winkel des Satellitenreflexes.  $T=373\text{K}$ ;  $R=0.18\text{ML}/\text{min}$

(00)-Reflexes mit einer Periode, die 1ML NiO entspricht. Die Intensität der Maxima nimmt bis zum 3. Maximum, entsprechend 4ML NiO, zu. Danach kommt es zu einem exponentiellen Abfall der Oszillationsperiode. Die Oszillation werden bis zur Bedeckung von 10ML schwächer. NiO wächst also auch bei 373K zunächst in einer Doppellage auf. Das weitere Wachstum findet im Lage-für-Lage Modus statt.

Die während des Aufdampfens gemessenen eindimensionalen Schnitte durch den (00)-Reflex zeigen, daß ab ca. 3.5ML Satellitenreflexe auftreten. Werden diese als Mosaike gedeutet so lassen sich nach Gleichung 1.51 die zugehörigen Winkel bestimmen. Die Abhängigkeit der Winkel von der Bedeckung ist in Abb. 6.11 zu sehen. Während der Abnahme des Winkels der Mosaike steigt gleichzeitig die Intensität der Satellitenreflexe, d.h. die Bereiche, die die Mosaike bedecken, werden immer größer. Der Winkel wird mit zunehmender Bedeckung kleiner, d.h. der Abstand des Satellitenreflexes vom (00)-Reflex wird kleiner. Mit zunehmender Bedeckung werden die Mosaike immer flacher und sind damit in ihrer Fläche größer.

Der zu höheren Lagen auftretende Intensitätsverlust des (00)-Reflexes, ist

## 6.1. SPA-LEED MESSUNGEN



**Abb. 6.12:** Profile des spekularen Reflexes in [11]-Richtung bei 373K und einer Bedeckung  $\Theta = 10\text{ML}$

auf die Bildung der Mosaike zurückzuführen. Deren Satellitenreflexe werden in der Intensität mit steigender Bedeckung größer. Die Intensität, die in die Satellitenreflexe geht, fehlt folglich im Hauptreflex.

Die Messung der Phasenabhängigkeit des Beugungsprofil durch den (00)-Reflex in [11]-Richtung in interner Geometrie zeigt nach dem Aufbringen von 10ML NiO, daß die Position der Satellitenreflexe mit zunehmender Phase zu höheren  $k_{\parallel}$ -Werten wandert. Die Satelliten sind schwächer ausgeprägt als die Satelliten bei 293K. Die exakten Positionen der Satellitenreflexe, die durch Anpassung von Lorentz- und Ringlorentzfunktion an die Profile gewonnen wurden, sind in Abbildung 6.12 gezeigt. Die Positionen steigen linear mit der Phase an. Wie bei Raumtemperatur schneiden auch hier die Satelliten die X-Achse nicht bei Phase  $S=0$ . Der äußerste Satellit schneidet die X-Achse bei  $S=0.5$  der zweite Satellit bei  $S=1.8$ . Die Abweichung vom eigentlichen Mosaikverhalten (schneiden der X-Achse bei  $S=0$ ) hat sich bei dieser Temperatur verstärkt. Der Satellit 2 verläuft parallel zum äußerten Satelliten. Es

ist fraglich ob der zweite Satellit von Mosaiken herrührt. Von Mosaiken ausgehend ergeben sich nach Gl. 1.51 die Mosaikwinkel. Aus dem Anstieg der Halbwertsbreiten(ohne Bild) ergeben sich die Varianzen der Mosaikwinkel. Die Mosaikwinkel  $\theta$  und ihre Varianz  $\Delta\theta$  sind in Tab. 6.3 aufgelistet.

Winkel	Sat1	Sat2	Sat3
$\theta \pm \Delta\theta$	$2.0^\circ \pm 0.6^\circ$	$1.3^\circ \pm 0.4^\circ$	$0.6^\circ \pm 0.2^\circ$

**Tab. 6.2:** Kippwinkel der Mosaik für einen 10ML dicken NiO/Ag(100) Film, der bei 373K hergestellt wurde.

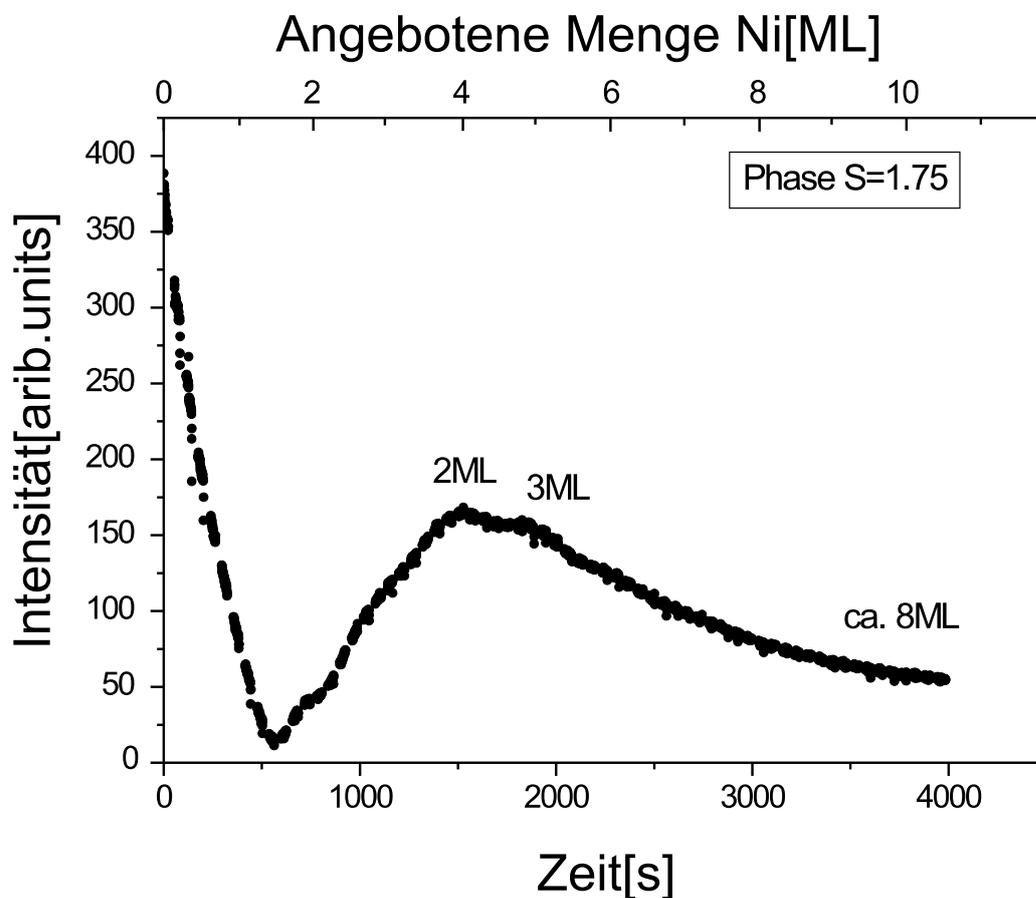
Die Position des inneren Satellits ergibt, daß sich auf der Oberfläche Strukturen in einem regelmäßigen Abstand von  $147\text{\AA}$  befinden.

Die Auswertung des Intensitätsverhaltens der Spitze und des inneren Satelliten durch eine G(S)-Analyse ergibt ähnlich wie bei Raumtemperatur eine schlecht auszuwertende quasi-G(S)-Kurve. Die Bedeckung mit ebenen Bereichen läßt sich daraus zu  $55\%BZ \pm 15\%$  bestimmen. Dieses paßt mit der Intensitätsabnahme des (00)-Reflexes gut zusammen. Die Intensität des (00)-Reflexes fällt von 4ML, der Bedeckung bei der die Mosaik anfangen zu entstehen, bis zu 10 ML um 50%. Dieser Intensitätsabfall läßt sich also komplett durch die Entstehung von Mosaiken erklären.

### 6.1.3 10 ML NiO/Ag(100) @ 393K

Nach dem Öffnen des Shutters bei  $t=0$ , s. Abb. 6.13, fällt die Intensität zunächst stark ab. Nach 1.5ML angebotenen Ni hat die Intensität ein Minimum und steigt zum Maximum bei 4ML angebotenen Ni an. Im weiteren Verlauf tritt bei 5ML angebotenen Ni noch ein Maximum auf. Danach fällt die Intensität kontinuierlich. Der Abstand des 1. und des 2. Maximums entspricht einer Monolage NiO. Mit dem, auch bei tieferen Temperaturen auftretenden (s.o.), Doppellagen-Wachstum sind insgesamt 8ML aufgebracht worden. Auffällig ist hierbei die starke Verzögerung des 1. Maximums (4ML angebotenes Ni). Ein doppelstöckiges Wachstum allein ist hierfür als Erklärung nicht ausreichend.

Die Auswertung der Profile des (00)-Reflexes, die während des Aufdampfens von NiO gemessen wurden(s.6.14), zeigen, daß die Satellitenposition mit steigender Bedeckung näher an den (00)-Reflex heranrücken und gleichzeitig ihre Intensität zunimmt. Der Satellitenreflex tritt zum erstenmal bei 5ML angebotenen Ni auf. Der zugehörige Mosaikwinkel beträgt  $5^\circ$ . Mit steigender

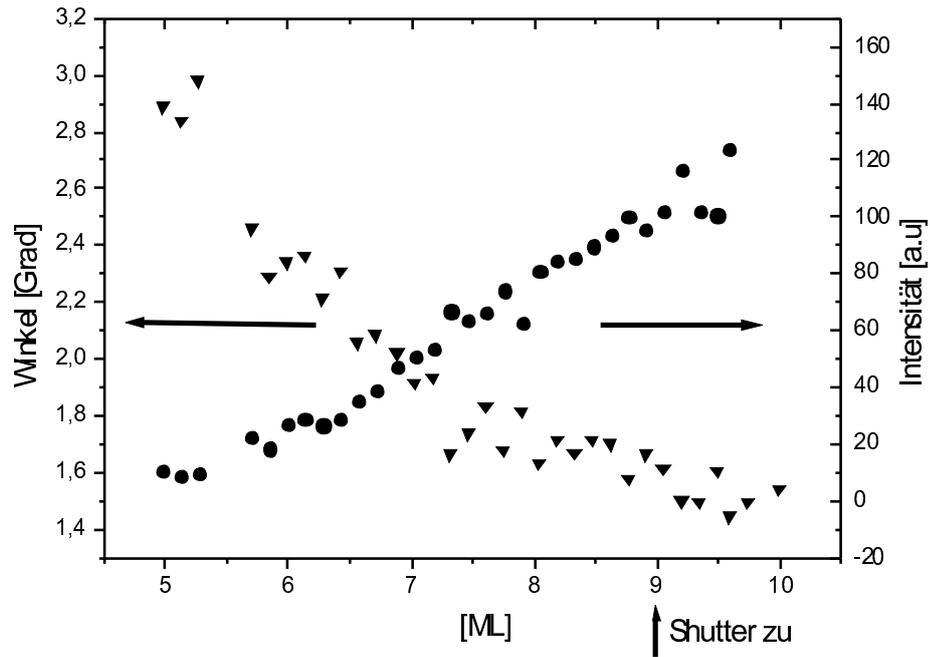


**Abb. 6.13:** Verlauf der Intensität des (00)-Reflexes über der Zeit bei 393K und  $S=1.75$

Bedeckung nimmt dieser Wert auf  $1.5^\circ$  ab. Da mit flacherem Winkel die Mosaik mehr Fläche einnehmen, steigt die Intensität bis 10 ML angebotenen Ni auf einen konstanten Wert.

Die Satelliten, die in den Profilen des (00)-Reflexes (Abb. 6.15) zu sehen sind, ändern ihre  $k_{||}$ -Position linear mit der Phase. Gegenüber 373K sind die Satelliten noch schwächer ausgeprägt. Daher sind nur noch 2 Satelliten auflösbar. Auch hier treten die gleichen Probleme wie bei der Auswertung der Satelliten bei 373K auf. Die Satelliten schneiden die X-Achse nicht bei  $S=0$ , sondern der äußere bei  $S=0.75$  und der zweite Satellit bei  $S=2$ . Unter der Voraussetzung, daß es sich um Mosaik handelt, ergeben sich die Mosaikwinkel, die in Tab. 6.3 aufgeführt sind. Aus der Abhängigkeit der Halbwertsbreiten von der Phase ist die Standardabweichung der Mosaikwinkel bestimmt worden.

Aus der  $G(S)$ -Analyse ergibt sich eine Bedeckung mit ebenen Bereichen



**Abb. 6.14:** Intensität und Winkel des Satellitenreflexes.  $T=393\text{K}$ ;  $R=0.18\text{ML}/\text{min}$

Winkel	Sat1	Sat2
$\theta \pm \Delta\theta$	$2.1^\circ \pm 0.7^\circ$	$1.2^\circ \pm 0.3^\circ$

**Tab. 6.3:** Kippwinkel der Mosaik für einen 10ML dicken NiO/Ag(100) Film, der bei 393K hergestellt wurde.

## 6.1. SPA-LEED MESSUNGEN

---

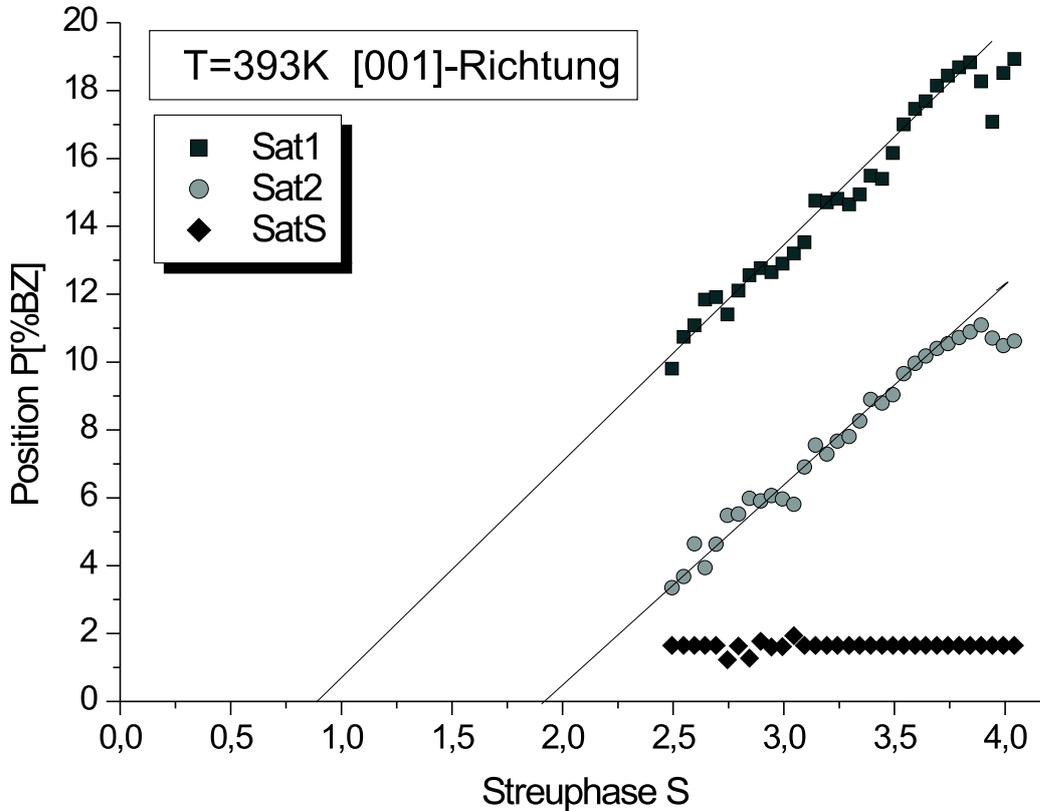


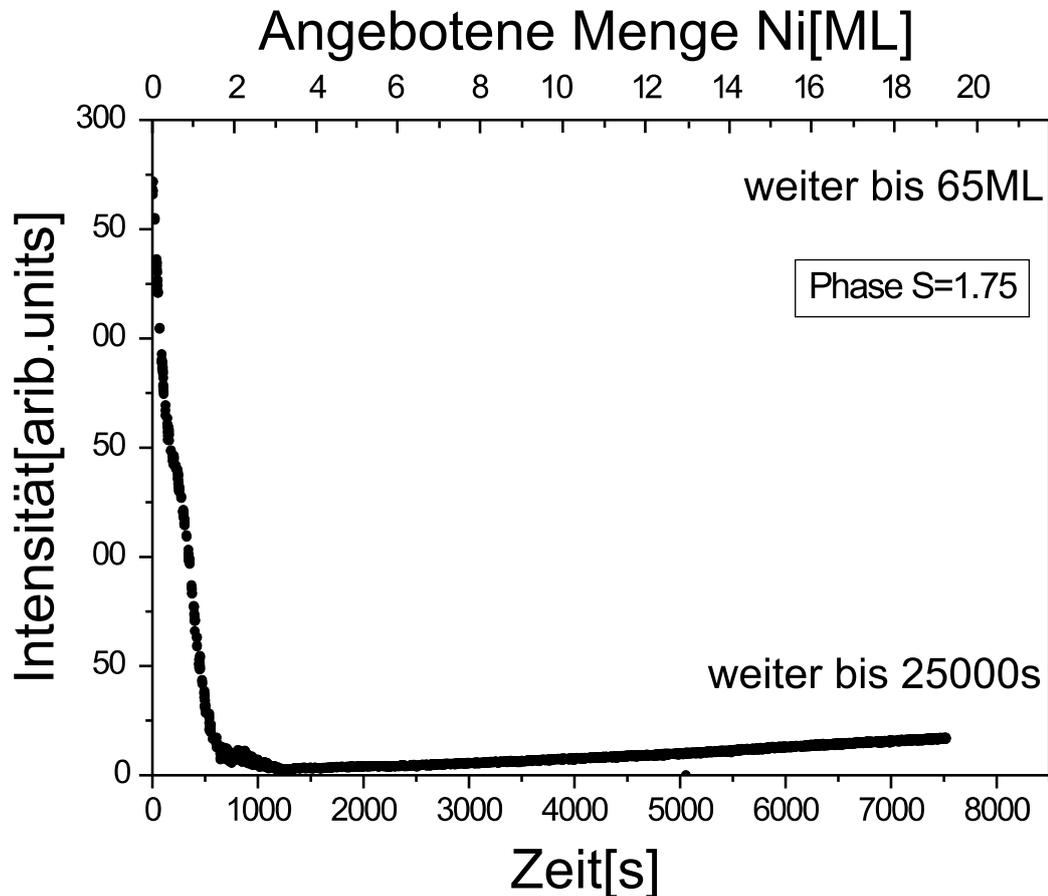
Abb. 6.15: Position der Satellitenposition über der Phase.

von  $26\% \pm 15$ . Dieser Wert stimmt gut mit der Intensitätsabnahme des (00)-Reflexes überein, da die Intensität von 175a.u. auf 60a.u. fällt. Dies ist eine Reduzierung der Intensität auf 34% ist. Die Intensitätsabnahme ist also vollständig durch die Entstehung der Mosaik erklärt.

### 6.1.4 13ML NiO/Ag(100) @423K

Bei dieser Temperatur fällt wie bei den anderen Temperaturen die Intensität des (00)-Reflexes (s. Abb. 6.16) nach öffnen des Shutters stark ab, bis bei 3ML angebotenen Ni ein Minimum erreicht wird. Während des Abfalls der Intensität kommt es zu zwei Sattelpunkten, die bei einer und zwei angebotenen Monolagen Ni liegen. Nach dem Minimum steigt die Intensität kontinuierlich leicht an. Sie überschreitet einen Wert von 15% der Ausgangsintensität aber nicht mehr.

Eine Analyse des (00)-Reflexes bei einer Bedeckung von 13ML zeigt in einem



**Abb. 6.16:** Intensität der (00)-Reflexes über der Zeit, also der Bedeckung [Hz] bei 423 K und  $S=1.75$

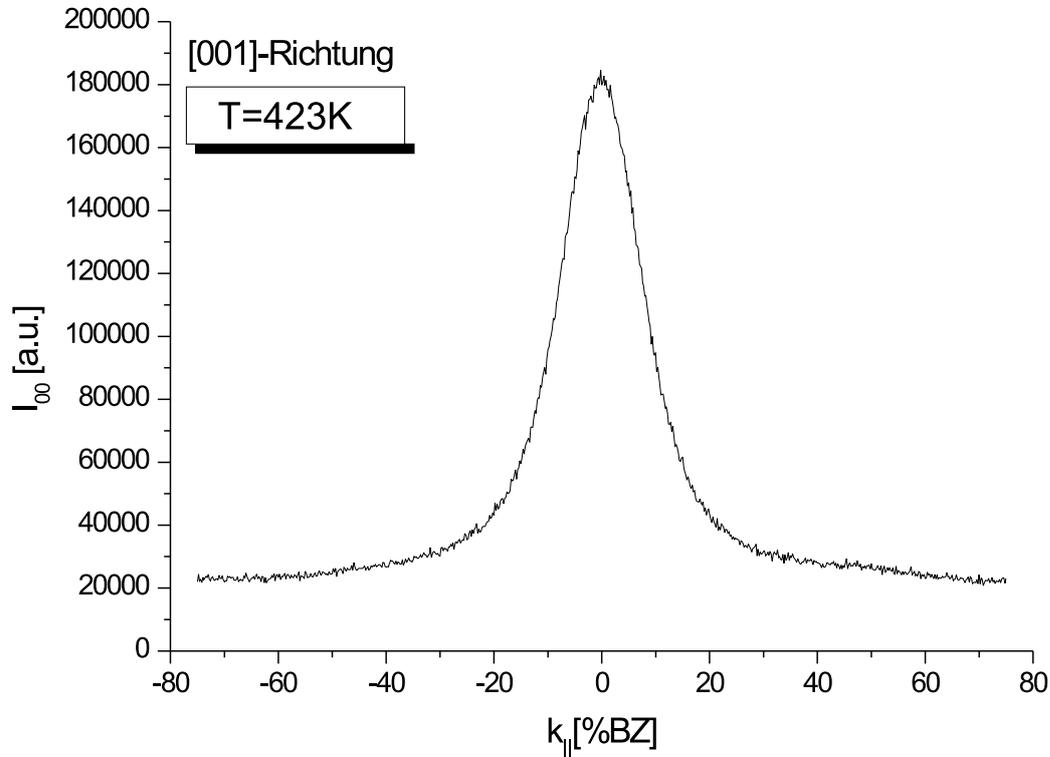
Schnitt in [11]-Richtung (s. Abb 6.17), daß keine Satelliten vorhanden sind. Mit steigender Phase steigt die Halbwertsbreite des Zentralreflexes oszillierend an. Dieses Verhalten ist in Abb. 6.18 dargestellt. Mit Gleichung 1.50 bestimmt sich der mittlere Mosaikwinkel aus den Minimawerten der Halbwertsbreite zu  $1.3^\circ$ .

### 6.1.5 6 ML NiO/Ag(100) @473K

In Grafik 6.19 ist die Intensität des (00)-Reflexes über der Zeit aufgetragen. Die Intensität fällt nach Öffnen des Shutters, bei  $t=0s$ , stark ab. Nach zwei Sattelpunkten bei einer und zwei Monolagen angebotenen Ni tritt bei 4ML angebotenen Ni ein breites Minimum auf. Danach steigt die Intensität bis 7ML angebotenen Ni an und bleibt dann auf einem konstanten Wert.

## 6.2. ZUSAMMENFASSUNG UND DISKUSSION

---



**Abb. 6.17:** Profil des (00)-Reflexes in [11]-Richtung bei einer Streuphase von  $S = 4$ . Es sind keine Satelliten erkennbar.

Die Untersuchung der fertig gewachsenen Schicht in interner Geometrie zeigt, daß keine Satelliten auftreten. Die Halbwertsbreite des (00)-Reflexes nimmt mit steigender Phase oszillierend zu, wie in Grafik 6.18 zu sehen ist. Die Halbwertsbreite ist aber deutlich kleiner als bei 423K und steigt nicht so stark an. Aus der Anstieg der Minimawert ergibt sich nach Gl. 1.50 für den mittleren Mosaikwinkel  $0.4^\circ$ .

## 6.2 Zusammenfassung und Diskussion

Das Wachstum von NiO wurde temperaturabhängig untersucht. Dabei wurde die Temperatur von 293K bis 473K variiert. Der Verlauf der Intensität des (00)-Reflexes während des Aufdampfens von NiO zeigt, daß NiO bei tiefen Temperaturen (293-393K) im Lage-für-Lage Modus wächst. Das erste Intensitätsmaximum liegt bei 2ML, demnach kommt es in der Anfangsphase bei diesen Temperaturen zu einem Wachstum von doppelagigen NiO-Inseln. Zusätzlich zu der Verzögerung des 1 Maximums durch dieses Doppellagen-

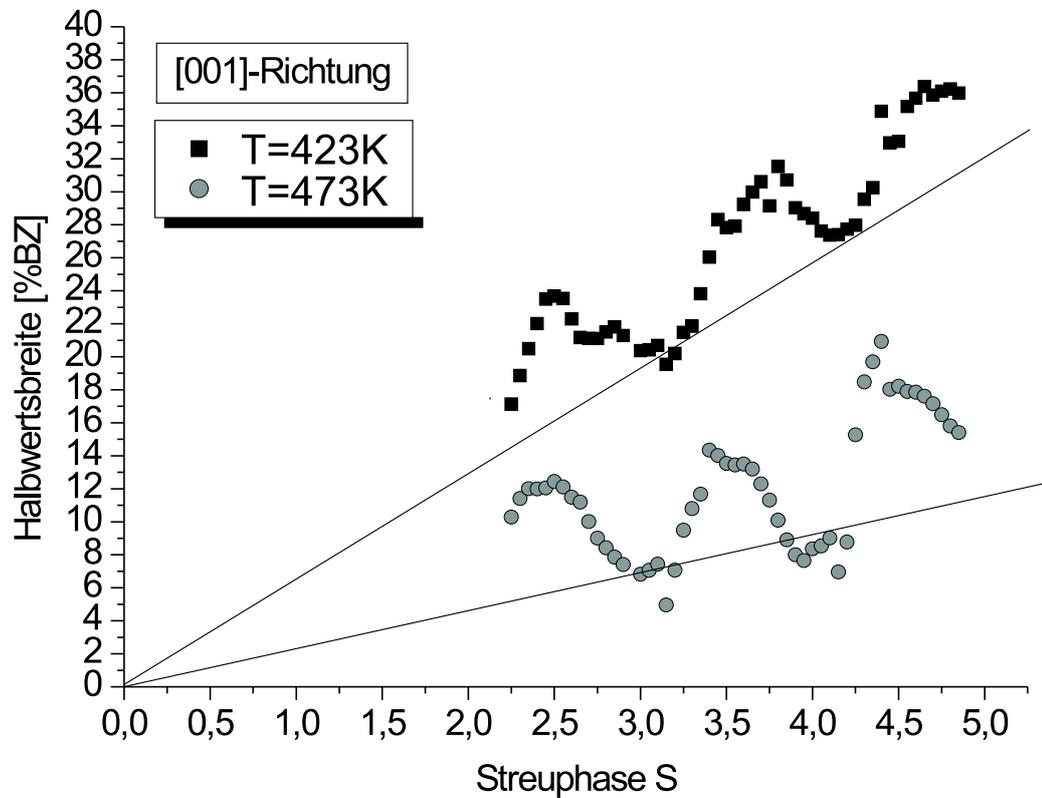
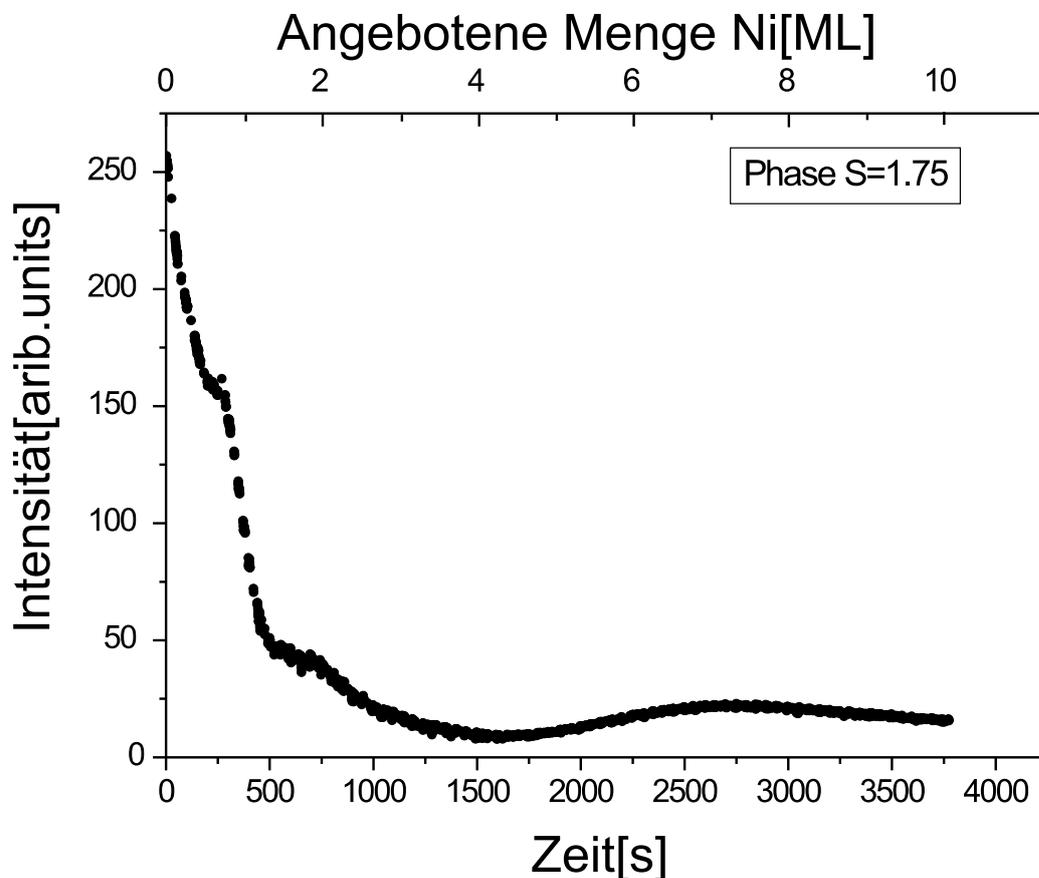


Abb. 6.18: Halbwertsbreite des (00)-Reflexes bei 423K und 473K über der Phase  $S$ .

wachstum, kommt es zu einer weiteren Verzögerung des ersten Maximums. Diese nimmt mit steigender Temperatur zu. Daher ist davon auszugehen, daß ein mit steigender Temperatur zunehmender Teil der angebotenen Ni-Atome entweder wieder desorbiert oder eine Legierung mit dem Ag-Substrat bildet. Aufray [39] berichtet beim Wachstum von Ni/Ag(100) über eine solche „Legierung“ bei einer Wachstumstemperatur von 620K. Eine Lage Ag schwimmt dabei auf dem aufwachsenden Ni auf. Die Wachstumstemperatur liegt aber über den hier untersuchten. Die Profilanalyse des (00)-Reflexes während des Wachstums zeigt, daß bei 373K ab einer Bedeckung von 3,5ML (s.Abb 6.11) Mosaik mit einem Winkel von  $4^\circ$  entstehen. Der Mosaikwinkel nimmt mit zunehmender Bedeckung exponentiell ab und erreicht bei 10ML eine Größe von  $1.5^\circ$ . Einhergehend mit der Abnahme der Mosaikwinkel, die zu einer Verschiebung der Position der Satellitenreflexe zum (00)-Reflex führt, steigt die Intensität der Satellitenreflexe an. Demgemäß nimmt der mit Mosaiken bedeckte Anteil der Oberfläche zu. Da, wie in Abb. 6.11 zu sehen ist, weder die Intensität der Satellitenreflexe noch der Winkel der Mosaik bei



**Abb. 6.19:** Intensität des (00)-Reflexes in Abhängigkeit von der Zeit, bzw. der angebotenen Menge Ni [ML] bei 473K und der Streuphase  $S=1.75$

einer Bedeckung von 10ML einen Sättigungswert erreicht haben (also in ihrem Wert konstant bleiben) ist der Prozeß der Mosaikbildung noch nicht komplett abgeschlossen. Durch die Entstehung von Mosaiken und der damit verbundenen Zunahme der Intensität der Satellitenreflexe kommt es zu einer leichten Abschwächung der Spitzenintensität. Die Vermessung der 10ML dicken Schichten zeigt die Satellitenreflexe, die von den Mosaiken hervorgerufen werden. Mit steigender Temperatur nimmt die Ordnung der Mosaik ab, und es können nicht mehr alle Mosaikwinkel aufgelöst werden. Bei allen Temperaturen tritt am (00)-Reflex eine Schulter auf, deren Position im Gegensatz zu den Mosaikreflexen nicht von der Streuphase abhängt. Das Auftreten dieser Schulter kann nach Gl. 1.41 als regelmäßiger Abstand von Versetzungen gedeutet werden. Sowohl der Abstand des Versetzungsnetzwerkes als auch die Mosaikwinkel sind bei einer Bedeckung von 10ML temperaturunabhängig (s. Abb. 6.20). Die Standardabweichung der Mosaikwinkel nimmt mit steigen-

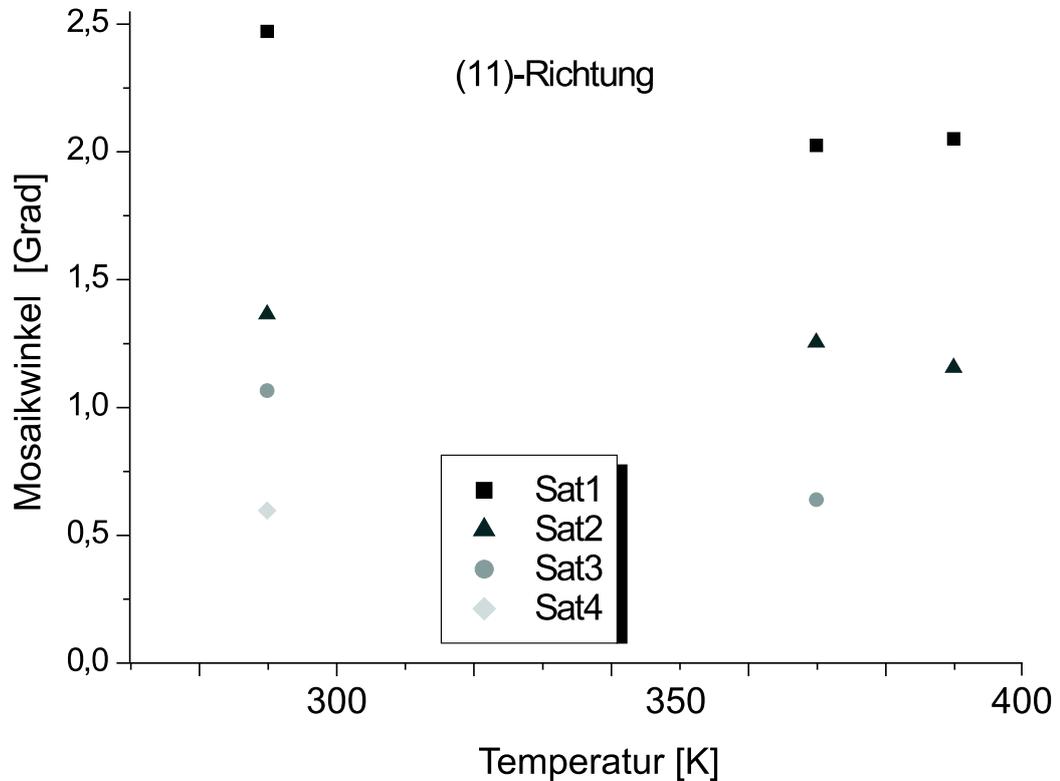


Abb. 6.20: Mosaikwinkel der 10 ML dicken Schichten über der Temperatur

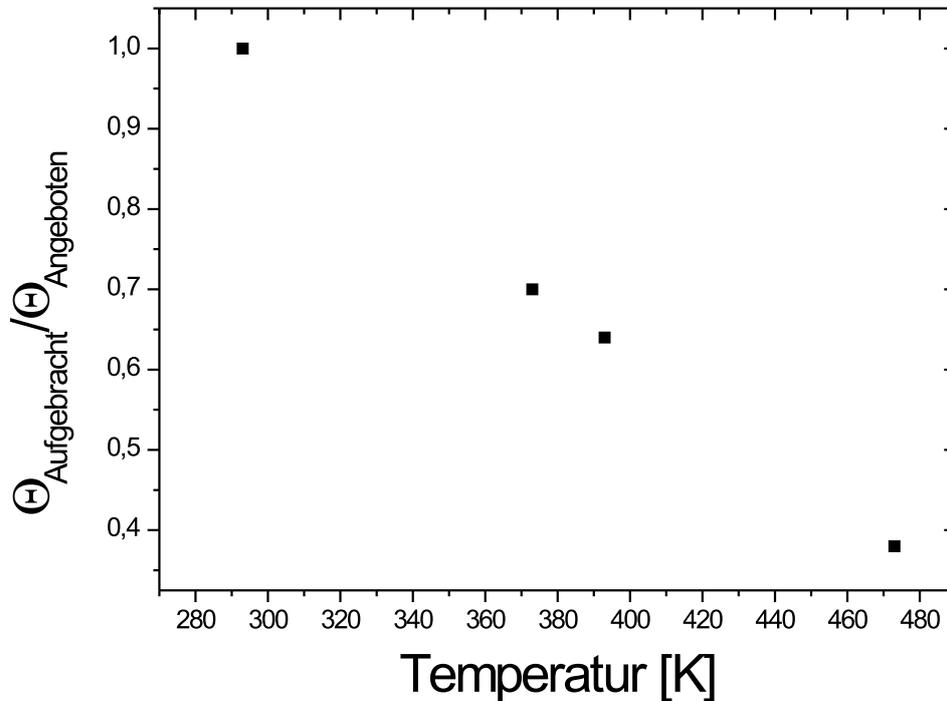
den Temperaturen zu. Folglich nimmt die Ordnung der Mosaik zu hohen Temperaturen ab.

Bei Temperaturen oberhalb von 390K treten keine Oszillationen auf. Die Rauigkeit der Oberfläche nimmt im Laufe des Wachstums zu. Die Verzögerung des 1. Maximums ist bei diesen Temperaturen sehr stark ( $> 7$ ML angebotenen Ni oder wie bei 320K gar nicht vorhanden). Auger-Messungen zeigen, daß die Schichten bei hohen Temperaturen die Dicke von 10ML NiO (Menge, die angeboten wurde) nicht mehr erreicht haben. Die Auftragung der aufgetragenen Menge NiO (bestimmt mit Auger) gegen die angebotene Menge NiO (durch Intensitätsoszillationen kalibrierte Verdampferquarzwage) gegen die Temperatur Abb. 6.21 zeigt, daß die tatsächlich aufwachsende Menge NiO mit steigender Temperatur von Raumtemperatur an linear fällt. Bei 473K tragen nur noch ca 40 % der angebotenen Ni-Atome zum Wachstum der NiO-Schicht bei.

Bei den hier gewählten Temperaturen ist das Desorbieren von Ni-Atome von der Oberfläche zu vernachlässigen. Da mehr Ni-Atome angeboten wurden, als

## 6.2. ZUSAMMENFASSUNG UND DISKUSSION

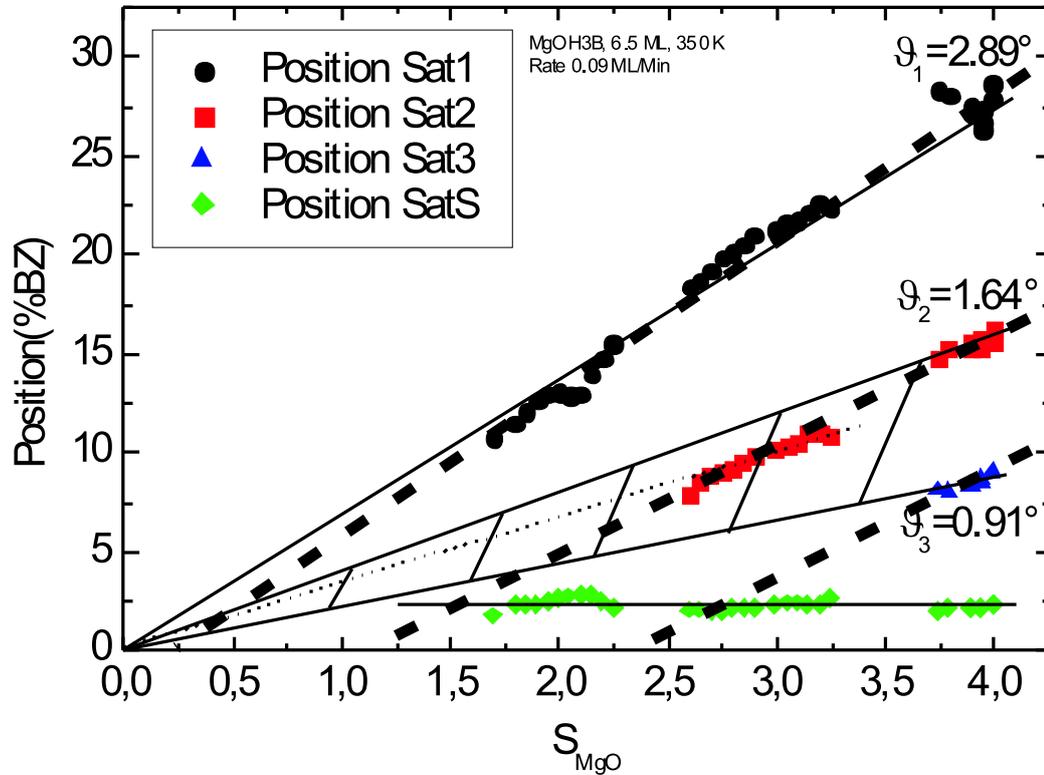
---



**Abb. 6.21:** Verhältnis der aufgetragenen Menge NiO zur angebotenen Menge NiO über der Temperatur

zur Bildung der gemessenen Schichtdicken notwendig sind, muß ein Teil der Ni-Atome in das Silbersubstrat diffundieren und dort eine Legierung mit dem Silber bilden. Nach [40] tritt zwischen Ag und Ni bis zur Schmelztemperatur der beiden Materialien keine Legierungsbildung auf. Hierdurch kann die deutliche Legierungsbildung an der Oberfläche bei Temperaturen im Bereich von 373K-500K nicht erklärt werden. Lediglich bei tieferen Temperaturen kann es ([40]) zu einer geringfügigen Mischung zwischen Ag und Ni kommen. Diese Aussagen gelten für Volumen-Ni und - Ag. Die auf Oberflächen beobachtete Legierungsbildung [39] ist bei 620K, damit oberhalb der hier vermessenen Temperaturen, beobachtet wurden. Die hier vorgestellten Messungen zeigen, daß es an der Oberfläche zu einer Legierungsbildung von Ni mit dem Ag-Substrat kommt. Dies nimmt mit steigender Temperatur stark zu.

Neben der Legierungsbildung tritt die Problematik auf, daß in den Pha-



**Abb. 6.22:** Phasenabhängigkeit der Satelliten einer 6.5ML dicken MgO Schicht auf Ag(100) bei 350K aufgebracht (aus [36]) Mit dicken gestrichelten Linien ist eine andere Interpretationsmöglichkeit der Daten eingezeichnet.

senabhängigkeiten der Satellitenreflexe, z.B. Grafik 6.6, die Satelliten die X-Achse nicht bei  $S=0$  schneiden. Dieses ist aber für Mosaike eine grundlegende Voraussetzung. Für höhere Temperaturen wird dieser Effekt stärker. Der zweite Satellit von außen läuft dann sogar parallel zum äußersten Satelliten, s. Abb. 6.12 und Abb. 6.15. Auch beim Wachstum von MgO/Ag(100) sind solche Effekte zu beobachten. Abbildung 6.22 zeigt die Phasenabhängigkeit der Satelliten einer 6.5ML dicken MgO-Schicht auf Ag(100) bei 350K. Mit dicken gestrichelten Linien ist eine andere Interpretationsmöglichkeit eingezeichnet. Der äußerste Satellit würde so die X-Achse bei  $S=0.25$  schneiden, der zweite Satellit bei  $S=1.25$  und der dritte Satellit bei  $S=2.25$ . Die gleiche Problematik tritt also auch bei MgO/Ag(100) auf. Da die Strukturen bei NiO/Ag(100) (die höheren Ordnungen des Versetzungsnetzwerkes sind zu sehen) viel stärker ausgeprägt sind als bei MgO/Ag(100), fällt hier dieser Effekt stärker ins Gewicht.

Die Abweichung des äußersten Satelliten, beim schneiden der X-Achse, könn-

## 6.2. ZUSAMMENFASSUNG UND DISKUSSION

---

te durch einen systematischen Fehler bei der Messung der Elektronenenergie erklärt werden. Würden die Energie zu groß bestimmt, so würde sich die gesamten Meßpunkte zu kleineren S-Werten verschieben, wobei die kleineren S-Werte stärker verändert würden als die großen. Damit könnte die Abweichung der äußeren Satelliten erklärt werden. Die viel größere Abweichung der inneren Satelliten läßt sich so nicht erklären.

Bei der Simulation der SPA-LEED-Daten aus Kapitel 5 treten aber nun ebenfalls solche Strukturen in der Phasenabhängigkeit der Satelliten auf, dieses aber bei dem Modell mit nur einem Mosaikwinkel. Die Abb. 5.5 unten hat sehr starke Ähnlichkeiten mit den Ergebnissen Abb. 6.12 und Abb. 6.15. Genau wie in den Meßergebnissen laufen auch in der Simulation die inneren Satelliten parallel zu dem äußeren Satellit. Die Simulation hat aber gezeigt, daß die inneren Satelliten (bzw. Intensitäten) nicht von Mosaiken mit anderem Mosaikwinkel herrühren, sondern durch eine kohärente Überlagerung von Mosaik und regelmäßigem Versetzungsnetzwerk erzeugt werden. Würden mehrere Mosaikwinkel auftreten, so würde sich das in Bild 5.7 gezeigte Bild ergeben. Es wären zwischen den Intensitäten der Mosaik noch Intensitäten von Überlagerungen zu sehen.

Für die SPA-LEED Ergebnisse bedeutet dieses, daß der äußerste Satellit tatsächlich zu einem Mosaik gehört. Sein Schnittpunkt mit der X-Achse muß durch einen systematischen Fehler der Energiemessung verschoben sein. Damit müßte auch der Mosaikwinkel neu bestimmt werden. Die inneren Satelliten rühren nicht von anderen, kleineren Mosaikwinkel her, sondern entstehen durch die kohärente Überlagerung von Mosaik und Versetzungsnetzwerk. Daß nur ein Mosaikwinkel auftritt, wird auch bei dem System MgO/Ag(100) durch die STM-Messungen gestützt, da hier auch nur ein Winkel der Mosaik beobachtet wird.

## KAPITEL 6. NIO/AG(100)

---

---

# Kapitel 7

## Ausblick

Die Diskussion der einzelnen Messungen wurde am jeweiligen Ende der einzelnen Kapitel durchgeführt. Hier soll nun aufgezeigt werden, welche Messungen oder apparativen Änderungen in Zukunft zur Lösung noch anstehender bzw. neu aufgeworfener physikalischer Problemstellungen beitragen können.

Bei der Homoepitaxie von Ni auf Ni(100) hat sich gezeigt, daß sich das Wachstumsverhalten der Pyramiden im Temperaturbereich von 160K-300K nicht ändert und von 120K-160K eine Änderung des Wachstumsverhaltens in Richtung statistischem Wachstum zu verzeichnen ist. Eine Untersuchung bei Temperaturen unter 120K und über 300K wäre daher für ein vollständiges Bild des Wachstumsverhaltens notwendig. Insbesondere tiefere Temperaturen sind von Interesse, da hier noch unklar ist, wann ein vollständig statistisches Wachstum einsetzt.

Für das System NiO/Ag(100) wäre es notwendig, neben der Erweiterung der Temperaturabhängigkeit des Systems, durch Messungen bei tieferen Temperaturen auch die Bedeckungsabhängigkeit genauer zu untersuchen. Außerdem würden STM-Bilder die Interpretation erleichtern. Bertrams et al. [38] haben schon STM-Bilder von NiO/Ag(100) veröffentlicht. Diese sind im wesentlichen aus dem Submonolagenbereich, der für das Verständnis der Entstehung der Mosaike nützlich ist. Die Bilder bei höherer Bedeckung sind von sehr schlechter Qualität, und es ist fraglich, ob sie zur Strukturklärung beitragen können. Insofern ist es notwendig, eine Untersuchung mit dem STM an dickeren NiO-Schichten durchzuführen. Von einer bedeckungsabhängigen Untersuchung der Gitterkonstante der NiO-Schichten mit SXRD könnten sich Aufschlüsse über die Relaxationsmechanismen der Mosaike und Versetzungen ergeben. Durch detaillierte Messungen verschiedener Stangen im Reziprokenraum kann auch das Verzerrungsfeld analysiert werden. Um die Versetzungen

## KAPITEL 7. AUSBLICK

---

zu studieren, könnten auch TEM-Messungen durchgeführt werden, die für Versetzungen besonders sensitiv sind.

Auch am System MgO/Ag(100) sollten weitere SXRD-Messungen durchgeführt werden, die die Relaxationsmechanismen und die Entstehung von Mosaiken und Versetzungen in der MgO-Schicht charakterisieren. Auch weitere Messungen mit dem STM wären von Nöten, um zum einen größere Bereiche der Oberfläche aufzunehmen und so bessere Aussagen über das Versetzungsnetzwerk zu bekommen. Zum anderen ist der nur kurz untersuchte Submonolagenbereich von großen Interesse, da hier die Grundlagen für das weitere Wachstum gelegt werden. Insbesondere das Schließen der Doppellage MgO und das Wachstum der nächsten Lage ist von Interesse.

Ein weiterführendes Experiment ist die Untersuchung von Oxid/Oxid-Schichten. Eine mögliche Kombination ist dafür NiO/MgO. Hierbei würde MgO als eine Art Pufferschicht zwischen Ag und NiO dienen, da es selbst keine Legierung mit dem Ag-Substrat eingeht. Die Legierungsbildung über 370K könnte so unterbunden werden und NiO-Schichten auch bei höheren Temperaturen gewachsen werden. Eine weitere Anwendungsmöglichkeit von Oxidvielfachschichten besteht darin, durch die Abfolge verschiedener Oxidschichten die unterschiedliche Gitterfehlpassung zum Spannungsabau oder -ausgleich zu nutzen. Dadurch wäre es unter Umständen möglich, versetzungsarme Schichten herzustellen. Ein dritter Einsatzbereich von Oxidvielfachschichten ergibt sich aus der Kombination der unterschiedlichen Bandlücken. Durch eine Abfolge von Oxidschichten mit stark unterschiedlicher Bandlücke können Barrieren mit dazwischenliegenden Quantentöpfen erzeugt werden. Mit solchen Abfolgen ließe sich unter Umständen auch eine resonante Tunneliode bauen.

Für die Herstellung von Bauelementen ist es einerseits notwendig, metallische Kontaktierungen herzustellen. Andererseits können einige nm dünne Metallfilme innerhalb von Heterostrukturen zu Herstellung neuartiger Bauelemente verwendet werden. Daher ist es notwendig, Metall/Oxid-Schichten zu untersuchen. Hierbei stellt das Benetzen der Oxidschicht mit einem Metallfilm eine besondere Problematik dar, da die freie Oberflächenenergie der Metalle größer ist als die der Oxide. Im thermodynamischen Gleichgewicht führt dieses zur Clusterbildung des aufgebrachtten Metalls. Eine Möglichkeit ist daher das Aufbringen des Metalls weit außerhalb des thermodynamischen Gleichgewichts, so daß die Wachstumskinetik die Morphologie der Oberfläche bestimmt. Da Metalle sich bevorzugt an Defekten anlagern, stellt das Einbringen von künstlich erzeugten Defekten in die Oxidschicht und die damit verbundene erhöhte heterogene Keimbildung eine weitere Möglichkeit dar einen geschlossenen Metallfilm zu präparieren.

---

Apparativ wäre es wünschenswert, daß das UHV-System mit einem Kryostaten ausgerüstet wird, der es ermöglicht, tiefere Temperaturen als die zur Zeit möglichen 120K zu erreichen. Dadurch ist bei der Untersuchung von Metallen auch der Bereich des statistischen Wachstums erreichbar und das Wachstumsverhalten vollständig charakterisierbar.

Eine zweite wichtige Erweiterung wäre ein STM oder AFM. Die in dieser Arbeit vorgestellten STM-Bilder wurden in Kooperation mit Prof. Köhler an der Universität Bochum aufgenommen. Ein STM, welches direkt an der Meßapparatur zur Verfügung stände, hätte den Vorteil, daß dieses an die apparativen Bedingungen des Systems Oxid/Metall optimal angepaßt werden könnte. So ließe sich eine Schicht sowohl mit STM als auch dem SPA-LEED untersuchen. Bisher sind für unterschiedliche Meßmethoden auch immer neue Schichten gewachsen worden. Im besonderen hat sich gezeigt, daß das Sputtern der Metallsubstrate kritisch ist. Wie im Kapitel MgO/Ag(100) gezeigt wurde, führt die Kenntnis des direkten Abbilds eines kleinen Teils der Oberfläche dazu, ein genaues Bild der Oberflächenmorphologie und des Wachstumsverhaltens zu gewinnen. Die Kombination von SPA-LEED und STM sind für diese Zwecke besonders gut geeignet, da SPA-LEED Strukturen von atomaren Abmessungen bis zu  $1500\text{\AA}$  gemittelt über einen Bereich von  $1\text{mm}^2$  und STM Strukturen von atomaren Abmessungen bis ca.  $50000\text{\AA}$  bestimmen kann. Ein AFM hat eine untere Auflösungsgrenze von ca.  $100\text{\AA}$ . Damit ist eine Überschneidung mit dem unteren Meßbereich des SPA-LEED nicht mehr gegeben. Es lassen sich also nur größere Strukturen durch Kombination dieser beiden Methoden bestimmen. Ein großer Vorteil eines AFMs ist es, daß es nicht auf eine Leitfähigkeit des zu untersuchenden Objektes angewiesen ist. Es ist daher für die Untersuchung von isolierenden Materialien oder Schichten (wie die Oxide) prädestiniert, aber es bietet nicht die Möglichkeit, die auftretenden Strukturen, wie den Grabenabstand von ca.  $100\text{\AA}$  abzubilden. Es könnten also nur größere Bereich betrachtet werden, in denen unter Umständen keine Defekte zu beobachten sind.

## KAPITEL 7. AUSBLICK

---

# Literaturverzeichnis

- [1] *International Technology Roadmap for Semiconductors 1999 Edition*. 1999. (document)
- [2] J. K. ZUO und J. F. WENDELKEN: *Evolution of Mound Morphology in Reversible Homoepitaxy on Cu(100)*. Physical Review Letters, 78(14):2791–2794, 1997. (document), 1.1.2, 1.1.2, 3, 3.4, 3.4, 3.4
- [3] J. A. STROSCIO, D. T. PIERCE, M. D. STILES, L. M. SANDER und A. ZANGWILL: *Coarsening of Unstable Surface Features during Fe(001) Homoepitaxy*. Physical Review Letters, 75(23):4246–4249, 1995. (document), 3.4
- [4] E. BAUER: *Phänomenologische Theorie der Kristallabscheidung an Oberflächen*. Zeitschrift für Kristallographie, 110:372–431, 1957. 1.1.1
- [5] A. VENABLES, G. D. T. SPILLER und M. HANBÜCKEN: *Nucleation and growth of thin films*. Rep.Prog.Phys., 47:399–459, 1984. 1.1.1, 1.1.1
- [6] J. A. VENABLES und G. L. PRICE: *Nucleation of thin films*, Band B der Reihe *Epitaxial Growth*. Academic Press, 1975. 1.1.1, 1.1.1
- [7] D. R. FRANKEL und J. A. VENABLES: *Nucleation on Substrates from the Vapour Phase*. Adv. Phys., 19:409–455, 1970. 1.1.1, 1.1.1
- [8] L. P. NEDELMANN: *Nucleation, growth and strain relief in copper heteroepitaxie on nickel(100)*. Doktorarbeit, Ecole Polytechnique Federale de Lausanne, 1997. 1.1.1
- [9] EVANS, J. W. und M. C. BARTLET: *Nucleation, Growth and Kinetic Roughening of Metal(100) Homoepitaxial Thin Films*. Langmuir, 12(1):217–229, 1996. 1.1.1, 3.4

## LITERATURVERZEICHNIS

---

- [10] J. TERSOFF, A. .W. DENIER VAN DER GON und R. M. TROMP: *Critical Island Size for Layer-by-Layer Growth*. Physical Review Letters, 72(2):266–269, 1994. [1.1.2](#)
- [11] M. SIEGERT und M. PLISCHKE: *Slope Selection and Coarsening in Molecular Beam Epitaxy*. Physical Review Letters, 73(11):1517–1520, 1994. [1.1.2](#)
- [12] A. .W. HUNT, C. ORME, D. R. M. WILLIAMS, B. G. ORR und L. M. SANDER: *Instabilities on MBE Growth*. Europhysics Letters, 27(8):611–616, 1994. [1.1.2](#)
- [13] H. IBACH: *The role of surface stress in reconstruction, epitaxial growth and stabilization of mesoscopic structures*. Surface Sci Reports, 29:193–263, 1997. [1.1.3](#)
- [14] M. HENZLER und W. GÖPEL: *Oberflächenphysik des Festkörpers*. Teubner, 1994. [1.2](#)
- [15] T. SCHMIDT: *Strukturelle Untersuchungen zur Homoepitaxie auf Pt(111)*. Doktorarbeit, Universität Hannover, 1994. [1.4](#)
- [16] D. THIELKING: *Strukturelle Untersuchungen zur Heteroepitaxie: Wachstum ultradünner Si-Schichten auf Silizium(111)- $\gamma$ -Substraten*. Doktorarbeit, Universität Hannover, 1993. [1.2.3](#)
- [17] C. S. LENT und P. J. COHEN. Surface Science, 139:121, 1984. [1.2.4](#), [1.2.4](#)
- [18] J. WOLLSCHLÄGER, J. FALTA und M. HENZLER. [1.2.4](#)
- [19] I. K. ROBINSON und D. J. TWEET: *Surface x-ray Diffraction*. Rep. Prog. Phys., 55:599–651, 1992. [1.3](#)
- [20] *Quantenmechanik Teil1:Grundlagen*. Zimmermann - Neufang, 1992. [1.4.1](#)
- [21] *Quantenmechanik Teil2:Methoden und Anwendungen*. Zimmermann - Neufang, 1993. [1.4.1](#)
- [22] *Raster-Tunnel-Mikroskopie*. Akademie Verlag, 1991. [1.4.1](#)
- [23] *Handbook of Auger Electron Spectroscopy*. Physical Electronics Industries. [2.2](#)

## LITERATURVERZEICHNIS

---

- [24] K. D. GRONWALD: *Röntgentopographische Untersuchung an Silizium-Spaltkristallen*. Diplomarbeit, Universität Hannover, 1978. 2.5
- [25] CH. AMMER, K. MEINEL und M. KLAUA: *High Quality Ag Crystal Surfaces for Investigating the Initial Stage of Ag Homoepitaxy*. *Physica Status Solidi A*, 150:507–519, 1995. 2.5
- [26] G. COSTANTINI, S. RUSPONI, R. GIANOTTI und C. BORAGNO ANDU. VALBUSA: *Temperature evolution of nanostructures induced Ar<sup>+</sup>*. *Surface Science*, 416:245–254, 1998. 2.5
- [27] M.KALFF, P.SMILAUER, G.COMSA und T.MICHELY: *No coarsening in Pt(111) homoepitaxy*. *Surf. Sci. Lett.*, 426:L447–L453, 1999. 3, 3.4
- [28] WOLLSCHLÄGER, J. : *Step Barrier on the Kinetic Roughening of fcc(111) Surfaces*, 2000. to be published. 3.2
- [29] B. MÜLLER, L. NEDELMANN, B. FISCHER, H. BRUNE und K. KERN: *Initial stages of Cu epitaxy on Ni(100): Postnucleation and a well-defined transition in critical island size*. *Physical Review B*, 54(24):17858–865, 1996. 3.2
- [30] B. MÜLLER, L. P. NEDLEMANN, B. FISCHER, H. BRUNE, J. V. BARTH, K. KERN, D. ERDÖS und J. WOLLSCHLÄGER: *Strain relief via island ramification in submonolayer heteroepitaxie*. *Surface Review and Letters*, 5:769–781, 1997. 3.2
- [31] PERSTOLZE: *Simulation of surface defects*. *J.Phys.: Condens. Matter*, 6:9495–9517, 1994. 3.2, 3.2
- [32] C. L. LIU, J. M. COHEN, J. B. ADAMS und A. F. VOTER: *EAM study of surface self-diffusion of single adatoms of fcc metals Ni, Cu, Al, Ag, Au, Pd, and Pt*. *Surface Science*, 253:334–344, 1991. 3.2
- [33] ELLIOT, W. C. , P. F. MICELI, T. TSE und P. W. STEPHENS: *Temperature and orientation dependence of kinetic roughening during homoepitaxy: A quantitative x-ray-scattering study of Ag*. *Physical Review B*, 54(24):17938–17942, 1996. 3.4, 3.4
- [34] J. E. NOSTRAND: *Surface Morphology during Multilayer Epitaxial Growth of Ge(001)*. *Physical Review Letters*, 74:1127, 1995. 3.4
- [35] F.SCHÄFER: *SPA-LEED - Untersuchungen des heteroepitaktischen Wachstums von Mg und MgO auf Pd(100)*. Diplomarbeit, Universität Hannover, 1995. 4, 4.4

## LITERATURVERZEICHNIS

---

- [36] D. ERDÖS: *Messungen zum reaktiven epitaktischen Wachstum von MgO auf Ag(100)*. Diplomarbeit, Universität Hannover, 1996. 4, 4, 4.1.4, 4.5, 4.5, 6.1.1, 6.22
- [37] K.-M. SCHRÖDER: *Defektstrukturen in ultra-dünnen Magnesiumoxidfilmen auf Silber(100)*. Doktorarbeit, Universität Hannover, 1998. 4
- [38] TH. BERTRAMS und H. NEDDERMEYER: *Growth of NiO(100) layers on Ag(100): Characterization by scanning tunneling microscopy*. Journal of Vacuum Science & Technology B (Microelectronics and Nanometer-Structures), 14(2):1141–1144, 1996. 4.3.2, 7
- [39] B. AUFRAY, H. GIORDANO, B. LEGRAND und G. TREGLIA: *On a surfactant-like behaviour of Ni/Ag(100) deposit*. Surface Science, 307-309:531–537, 1996. 6.2, 6.2
- [40] *Handbook of Lattice Spacings and Structures of Metals*. 1958. 6.2, 6.2

## **Lebenslauf**

### **Allgemeine Daten**

**Name:** Hanno Dietrich Goldbach

**Geschlecht:** männlich

**Familienstand:** ledig

**Geburtsdatum:** 20.05.1971

**Geburtsort:** Hannover

**Staatsangehörigkeit:** Deutsch

### **Schulbildung**

- Grundschule: 1977 - 1981 — Einschulung in der Grundschule Bemerode (30539 Hannover) im Jahr 1977.
- Orientierungsstufe Bemerode: 1981 - 1983
- Realschule Peter-Petersen-Schule (30173 Hannover): 1983-1987
- Gymnasium Schillerschule (30625Hannover): 1987 - 1990 — Schulabschluß: Abitur

### **Wehrdienst**

Ich habe vom 1.7.1990 bis zum 30.6.1991 den Grundwehrdienst in der Heeresfliegerversuchstaffel 910 in Celle/Wietzenbruch geleistet.

### **Hochschulausbildung**

- Zum WS 1991/92 wurde ich an der Universität Hannover im Studiengang Physik-Diplom immatrikuliert.
- Am 12. Oktober 1993 habe ich mein Vordiplom erhalten.

- Vom 21.11.1995 bis zum 20.11.1996 habe ich meine Diplomarbeit mit dem Titel „Untersuchung zur Disilan-CVD auf Si(111),Si(100) und Si(113)“ im Institut für Festkörperphysik angefertigt.
- Mit der letzten Prüfung im März 1997 erhielt ich das Diplom.
- Ab Mitte März 1997 als Wissenschaftlicher Mitarbeiter am Institut für Festkörperphysik der UNI Hannover tätig:
  - Betreuung einer Diplomarbeit und einer Examensarbeit

## Danksagung

An erster Stelle gilt mein Dank Priv. Doz. Dr. Joachim Wollschläger, der mir die Arbeit am Institut ermöglicht hat und nun fast vier Jahre lang ein guter Betreuer und Doktorvater war.

Prof. Dr. H.Pfnür danke ich für die vielen Diskussionen, die nicht nur physikalischer Natur waren.

Andreas Klust danke ich für die gemeinsame Zeit in den Büros 241,214 u. 238 und dem Labor 209. Er ist mir nicht nur ein guter Kollege, sondern auch ein guter Freund. Durch unsere verschieden gearteten Fähigkeiten haben wir uns in vielerlei Hinsicht gut ergänzt, was für unser beider vorankommen von großem Vorteil war.

Anderas Klust und Markus Bierkandt danke ich für das Korrekturlesen dieser Arbeit.

Percy Zahl danke ich für allerlei „technical support“, den jahrelangen gemeinsamen Sport im PSV und das Heranführen an die Astronomie.

Meinen Eltern und meinen Schwestern danke ich für die große außerinstitutliche Fürsorge und Betreuung, die mir zuteil wurde.

Meiner Freundin Stephanie Aschemann danke ich für „den nächsten Dan“.

Dr.Heinz-Lorentz Günter (Heilo) sei an dieser Stelle noch einmal für die gute „Grundausbildung“ gedankt.

Den Mitgliedern des Instituts für Festkörperphysik, also ausdrücklich beiden Abteilungen, sei für die gute Arbeitsatmosphäre und die gute Stimmung bei den Institusausflügen gedankt.