

Goldinduzierte Nanostrukturierung vicinaler Si(001) Oberflächen.

Vom Fachbereich Physik
der Universität Hannover
zur Erlangung des Grades

Doktor der Naturwissenschaften

Dr. rer. nat.

genehmigte Dissertation

von

Dipl.-Phys. Frank-J. Meyer zu Heringdorf

geboren am 15.10.1969
in Osnabrück, Niedersachsen

Hannover, 1999

Referent: Prof. Dr. M. Horn-von Hoegen

Korreferent: Prof. Dr. M. Henzler

Tag der Promotion: 16.06.1999

Schlagworte:

fehlgeneigte Si(001) Oberflächen, goldinduzierte Facettierung, Quantendrähte

Keywords:

vicinal Si(001) surfaces, goldinduced faceting, quantum wires

Zusammenfassung

Die Adsorption von Gold auf eine vicinale Si (001) Oberfläche führt im Temperaturbereich zwischen 700°C und 900°C zu einer morphologischen Transformation der regelmäßig gestuften Ausgangsfläche in eine Berg- und Talstruktur mit Terrassenbreiten zwischen wenigen nm und einigen μm sowie Terrassenlängen im Millimeterbereich. Die Umordnung findet in mehreren Schritten statt. Zunächst adsorbiert Gold als Gittergas auf der Oberfläche und kondensiert nach Erreichen einer kritischen Bedeckung von ca. 1/3 Monolage unter Bildung von (001) Terrassen in einer (5×3.2) Rekonstruktion, die als treibende Kraft für die Facettierung wirkt. Strukturmodelle der (5×3.2) Rekonstruktion werden anhand von SPA-LEED und STM Daten diskutiert.

Die Terrassen dehnen sich anisotrop entlang der Stufenkanten mit einer Geschwindigkeit von bis zu $100\mu\text{m/s}$ aus (LEEM) und sammeln dabei Gold aus dem Gittergas ihrer Umgebung auf (XPEEM). Eine langsamere Ausdehnung senkrecht zu den Stufenkanten schiebt die Stufen des Substrates in "Stufenbändern" zusammen, die einen Neigungswinkel von 15° erreichen können. Es entsteht eine Phasenseparation zwischen goldreichen Terrassen und goldarmen Stufenbändern. Bei weiterer Deposition adsorbiert Gold auf den Stufenbändern und ordnet es in ebenfalls goldreiche Facetten um. Temperaturabhängig wurden (113), (115) und (117) Facetten, oberhalb von 850°C ausschließlich (119) Facetten beobachtet. Da der Neigungswinkel der (119) Facetten geringer ist als derjenige des Stufenbandes, geschieht diese Umordnung auf Kosten von Flächenanteilen der (001) Bereiche. Nach Erreichen der Sättigungsbedeckung von 0.64 ML (MEIS) ist die Facettierung abgeschlossen.

Nach erfolgter Präparation schimmern die Proben in allen Farben des Regenbogens, da die mesoskopische Facettenstruktur der Oberfläche ein Phasengitter für sichtbares Licht bildet. Mit Lichtbeugung kann daher die Facettierung *in-situ* auf einer Größenskala verfolgt werden, die anderen Methoden nicht zugänglich ist. Die Längenverteilung der Terrassen gehorcht einem Arrhenius Gesetz mit einer Aktivierungsenergie von 3.1eV. Dieser Wert zeigt gute Übereinstimmung mit REM Untersuchungen und wird mit der Energie zur Bildung einer (5×3.2) rekonstruierten (001) Terrasse identifiziert. Erstmals wird aus der zeitlichen Entwicklung des Lichtbeugungsmusters die mittlere Geschwindigkeit einer anisotropen Terrassenpropagation bestimmt. Winkelaufgelöste Lichtbeugung analysiert die Terrassenbreitenverteilung und zeigt ein Beugungsmuster mit breiten ersten Maxima und einer ausgeprägten Feinstruktur. Ein einfaches kinetisches Simulationsmodell kann diese Verteilungscharakteristik reproduzieren und das farbige Schimmern der Proben unter dem Mikroskop anhand einer numerischen Simulation auf die Unordnung des Phasengitters zurückführen.

Erste Nanodrähte wurden durch selektive Epitaxie auf den Superterrassen hergestellt.

Abstract

Adsorption of Au on vicinal Si(001) results in faceting of the whole surface in the temperature regime between 700°C and 900°C. The initially regular double stepped surface decomposes into a “hill and valley” structure with (001) terraces and facets. Terrace widths from several nm to some μm perpendicular to the step edges could be observed. In contrast the terraces extend up to several mm along the step edges.

The transformation proceeds in several steps. Initially Au adsorbs on the surface as a lattice gas. After a critical coverage of roughly $1/3$ monolayer is reached the lattice gas condensates and (001) terraces are formed which exhibit a complex (5×3.2) reconstruction. This reconstruction was shown to be the driving force for the faceting process and structural models are discussed using SPA-LEED and STM measurements. After nucleation terraces extend preferentially along the step edges with a speed of up to $100\mu\text{m/s}$. Au necessary for this enlargement is collected from the lattice gas of the surrounding (XPEEM). Perpendicular to the step edges the evolution is much slower: steps of the initial surface are bunched into step bands to conserve the macroscopic miscut of the sample. A phase separation between Au rich terraces and low covered step bands is formed. This continues until the step bands reach an inclination angle of 15° . With further deposition Au necessarily adsorbs on the step bands rearranging them to gold rich facets. Facet orientations like (113), (115) and (117) could be observed during deposition below 850°C, while above this temperature solely (119) facets are formed. Since the inclination angle of the (119) facets is low compared to the step band angle, faceting reduces the size of terraces. When a saturation coverage of 0.64ML is reached (MEIS), the transformation is complete.

If samples are illuminated with white light after the faceting process they shimmer in all colours of the rainbow. The mesoscopic structures on the surface act as a phase lattice for visible light. This allows an *in-situ* investigation on a mesoscopic length scale by light scattering. The terrace length distribution follows an Arrhenius law with an activation energy of 3.1eV. REM investigations confirm this value which is identified with the energy needed to create a (5×3.2) reconstructed (001) terrace. For the first time the development of a light scattering pattern is used to determine the average velocity of terrace propagation. Angular resolved light scattering analyzes the terrace width distribution and shows a diffraction pattern with a broad first maximum and a pronounced fine structure. A simple kinetic simulation reproduces the diffraction pattern numerically and explains the colorful appearance of the samples with a slight disorder of the generated phase lattice.

First Nanowires were formed on the terraces by using selective epitaxial growth.

Inhaltsverzeichnis

Einleitung	1
1 Experimenteller Aufbau	3
1.1 Die SPA-LEED Apparatur	3
1.2 Die STM Apparatur	7
1.3 Probenpräparation	9
1.4 Verdampfer	9
1.4.1 Elektronenstrahlverdampfer	10
1.4.2 Drahtverdampfer	11
1.5 Aufbringen von Kontakten	12
2 Elektronenbeugung	15
2.1 Kinematische Beugungstheorie	15
2.1.1 Die Streuphase	17
2.1.2 Die Transferfunktion	17
2.2 Die Struktur des reziproken Gitters	19
2.2.1 Vicinale Oberflächen	19
2.2.2 Facettierte Flächen	21
2.3 Reciprocal Space Mapping	22
2.3.1 Experimentelle Grundlagen	23
2.3.2 Wirklich ein Bild des reziproken Raumes?	24
3 Die Silizium (001) Fläche	27
3.1 Verspannung der Oberfläche	27
3.2 Rekonstruktionen der Si(001) Fläche	29
3.3 Gestufte Si(001) Flächen	30
4 Analyse mit Elektronenbeugung	35
4.1 Analyse der Ausgangsfläche	35
4.1.1 Störungen der Doppelstufenfolge	38

4.2	Analyse des Endzustandes	41
4.2.1	Facettenreflexe	42
4.2.2	Die (5x3.2) Rekonstruktion	43
4.3	Kinetik des Facettierungsprozesses	45
4.3.1	Kondensation der ersten Terrassen	45
4.4	Das Stufenband	48
4.5	Das "Overshooting"	49
4.5.1	Facettenorientierung	50
4.5.2	Verhalten der Einfachstufen während der Deposition	53
4.6	Proben anderer Fehlneigungswinkel	58
4.7	Das Gittergasmodell	59
4.7.1	Adsorption und Desorption	59
4.7.2	Ratengleichungen	61
4.8	Desorption aus dem Gittergas	63
4.8.1	Desorption während der Facettenbildung	65
4.8.2	Vergleich mit dem Experiment	65
5	Lichtbeugung	71
5.1	Mikroskopie	71
5.1.1	Simulation der Mikroskopbilder	73
5.2	Winkelaufgelöste Lichtbeugung	77
5.2.1	Experimenteller Aufbau	77
5.2.2	Analyse der Ergebnisse	78
5.3	In-situ Experiment	79
5.3.1	Experimenteller Aufbau	80
5.3.2	Integrale Intensität des Patterns	81
5.3.3	Länge der Strukturen	83
5.3.4	Auswertung der experimentellen Daten	88
5.3.5	Geschwindigkeit der Strukturen	89
5.4	Diskussion der Lichtbeugungsergebnisse	92
6	STM Untersuchungen	95
6.1	Die atomare Struktur der (5x3.2)	95
6.2	Kommensurabel oder inkommensurabel?	100
6.3	Die Spiegel- und Rotationsdomäne	102
6.3.1	Spiegeldomäne	102
6.3.2	Ungeradzahlige Terrassen	103

7	SPE-LEEM: Spektromikroskopie in Echtzeit	105
7.1	Aufbau eines LEEM	105
7.1.1	LEEM Komponenten	107
7.2	Abbildung eines LEEM	109
7.2.1	Beleuchtung der Probe	109
7.2.2	Die Objektivlinse	110
7.2.3	Der Abbildungsweig	111
8	Ergebnisse der LEEM Messungen	115
8.1	Der Prozeß der Facettierung im Realraum	115
8.1.1	Die Kondensation des Gittergases	115
8.1.2	Ausbildung des Stufenbandes	118
8.1.3	Die Umordnung des Stufenbandes in Facetten	119
8.2	Analyse des LEED Bildes mit LEEM	123
8.2.1	ungeradzahlige Terrassen	123
8.2.2	Rekonstruktionsdomänen	124
8.2.3	Fluktuation der Domänengrenzen	126
8.2.4	Der “Memory Effekt”	128
8.3	Desorption des Goldes	131
9	XPEEM	133
9.1	Analyse der Ausgangsfläche	133
9.2	Analyse des Endzustandes	135
9.3	Adsorption von Gold	138
9.3.1	LEEM und XPEEM Movies	138
9.3.2	Lokale Analyse der Goldbedeckung	141
10	Diskussion und Ausblick	145
10.1	Die goldinduzierte Facettierung	145
10.2	Kinetische Simulation der Facettierung	148
10.2.1	Simulationsmodell	148
10.2.2	Ergebnisse der Simulation	152
10.2.3	Vergleich mit der Mikroskopsimulation	153
10.3	Energetische Abschätzung	154
10.4	Erzeugung von Nanodrähten	157
	Literaturverzeichnis	161

Abkürzungsverzeichnis

Abb.	Abbildung
AES	Auger Elektron Spectroscopy
AFM	Atomic Force Microscope
ARUPS	Angle Resolved UPS
Au	Gold
BZ	Brillouin Zone
CMA	Cylindrical Mirror Analyzer
EELS–LEED	Electron Energy Loss Spectroscopy–LEED
EDX	Energy Dispersive X-Ray
FFT	Fast Fourier Transformation
LEED	Low Energy Electron Diffraction
LEEM	Low Energy Electron Microscope
MEIS	Medium Energy Ion Scattering
MEM	Mirror Electron Microscopy
MBE	Molecular Beam Epitaxy
ML	Monolage
p.a.	pro analysis (Reinheitsgrad für die Analyse)
PEEM	Photo Emission Electron Microscope
PED	Photo Electron Diffraction
PEEAD	Photo Electron Emission Angular Distribution
REM	Reflection Electron Microscope
RT	Raumtemperatur ($\approx 300\text{K}$)
SEM	Secondary Electron Microscope
Si	Silizium
SPA–LEED	Spot Profile Analysis–LEED
SPE–LEEM	Spectroscopic Photoemission LEEM
STM	Scanning Tunneling Microscope
STS	Scanning Tunneling Spectroscopy
Tab.	Tabelle
TEM	Transmission Electron Microscope
UHV	Ultra Hoch Vakuum
UPS	Ultraviolett Photoemission Spectroscopy
VPEEM	Valence Band Photoemission Microscope
XPS	X-Ray Photoemission Spectroscopy
XPEEM	X-Ray Photo Emission Electron Microscope



Einleitung

Seit der Erfindung des Bipolartransistors im Jahre 1947 hat die Technologie der Halbleiter eine rasante Entwicklung durchlebt, getrieben von einem Markt, der immer leistungsfähigere Computer verlangt. Diese Entwicklung gehorcht bis heute einem Gesetz, das bereits 1965 von Gordon Moore formuliert wurde: Alle 18 Monate verdoppelt sich die Anzahl der Transistoren, die auf einem Chip untergebracht werden können. Diese immense Steigerung der Rechenleistung ist nur durch eine Miniaturisierung der Bauelemente auf dem Chip zu erreichen, und auch diese minimale Strukturgröße gehorcht einem “Moore’schen Gesetz”: Pro Jahr verringert sich die minimale Strukturgröße um 13%. Einer auf dieser Gesetzmäßigkeit basierenden Vorhersage der SIA Roadmap [1] folgend, werden im Jahr 2010 MOSFET’s einer Kanallänge von 70nm angestrebt.

Bei diesen Strukturgrößen treten, neben technologischen Problemen der Lithographie- und Ätztechnik, neuartige konzeptionelle Schwierigkeiten auf. Als Beispiel sei der Begriff der Dotierung genannt. Sogar wenn Silizium bis zur Entartung dotiert wird ($\sim 10^{19}/\text{cm}^{-3}$), so entspricht der mittlere Abstand der Dotieratome von 70nm gerade der angestrebten Kanallänge. Bei den typischerweise verwendeten, viel geringeren, Dotierkonzentrationen stellt dann die korrekte Kanaldotierung eines Miniaturtransistors einen Zufallstreffer dar. Darüber hinaus existiert das grundsätzliche Problem, bei Strukturgrößen unterhalb von 100nm quantenmechanische Effekte nicht mehr vernachlässigen zu dürfen. Heutige Bauelementedesigns werden durch einfaches Herabskalieren in diesen Größenbereich nicht mehr funktionieren.

Die Suche nach neuartigen Bauelementen, aus mesoskopischen Strukturen in der Größenordnung weniger Nanometer zusammengesetzt, verbindet zwei zentrale Forschungsgebiete von Festkörperphysik und Halbleitertechnologie unter dem Stichwort “Nanoelektronik”. Eines der Ziele ist hierbei die Herstellung und elektrische Charakterisierung eindimensionaler Leiterbahnen, sogenannter “Quantendrähte”.

Theoretische Konzepte zur Beschreibung der elektrischen Eigenschaften von Quantendrähten sind in den letzten Jahren zunehmend entwickelt worden (z.B. [2, 3, 4, 5]), allerdings betreffen diese Studien hauptsächlich den ballistischen Transport durch ex-

trem kleine und kurze Drähte mit den Abmessungen weniger Atome. Experimentell werden die Berechnungen gestützt durch Messungen einer mit $2e^2/h$ quantisierten Leitfähigkeit während des Zerreißen von Kontaktstellen [6, 7]. Eine Arbeit von Takayanagi ist hierbei besonders hervorzuheben, in der das Zerreißen eines solchen Quantenpunktkontaktes zusätzlich mit atomar auflösendem TEM kontrolliert wurde [8].

Die Strukturierung geringfügig größerer Drähte hat die Gruppe von Dumpich durch Verwendung einer Elektronenstrahlolithographie realisieren können. Mehrere isolierte Pd-Quantendrähte mit einem Durchmesser von 50nm und mehr wurden auf einem GaAs Substrat hergestellt, die Drähte wurden kurzgeschlossen und der Magnetotransport vermessen [9, 10, 11]. Bei einer Proben temperatur von 10K beobachtet die Gruppe den Übergang zu eindimensionalem Transport bei einer Drahtdicke von bereits $0.6\mu\text{m}$.

Einen vollkommen anderen Zugang zu der Erzeugung von Nanostrukturen als die Verwendung einer Lithographie stellt die adsorbatgetriebene Selbstorganisation dar. Durch eine Facettierung reiner oder vicinaler Oberflächen durch Heizzyklen [12, 13], Adsorption [14, 15, 16, 17] oder Elektromigration [18, 19] können Nanostrukturen erzeugt werden, auf denen anschließend durch Dekoration Quantendrähte erzeugt werden können [20, 21, 22].

In der vorliegenden Arbeit wurde dieser Weg aufgegriffen, um Nanostrukturen zu erzeugen und zu charakterisieren, die bei der goldinduzierten Facettierung vicinaler Si(001) Flächen entstehen. Die Deposition von Gold auf ein fehlgeneigtes Substrat führt zu einem Zerfall der Ausgangsfläche in (001) Terrassen und Facetten unterschiedlicher Orientierung. Die Breite der entstehenden Strukturen kann über die Substrattemperatur in einem Bereich zwischen wenigen Nanometern und mehreren Mikrometern eingestellt werden.

Den Vorteil von Gold gegenüber vorausgegangenen Arbeiten mit Silber [23, 24, 25, 26] stellt das extreme Längen zu Breiten Verhältnis von etwa 1000:1 dar. Im Vergleich dazu konnte durch Silberadsorption nur ein Längen zu Breiten Verhältnis von 10:1 [27] erreicht werden.

Um nach der Facettierung Drähte zu erzeugen, wird die Probe in einem zweiten Schritt unter streifendem Einfall zusätzlich mit Gold bedampft. Die Oberfläche wirkt hierbei wie eine Maske, da durch den streifenden Einfall die Facettenstruktur gezielt Bereiche auf der Oberfläche abschattet. Das Resultat dieser Strukturierung ist eine Ansammlung von Drähten, deren Länge und Breite empfindlich von der Feinstruktur der facettierten Oberfläche beeinflusst wird. Die Erforschung des Facettierungsprozesses bildet daher den Schwerpunkt dieser Arbeit. Anschließend wird gezeigt, wie mit dem vorgestellten Konzept erste Drahtstrukturen erzeugt werden konnten.



Kapitel 1

Experimenteller Aufbau

Die im folgenden beschriebenen Experimente wurden an drei unterschiedlichen UHV Apparaturen durchgeführt, mit den methodischen Schwerpunkten SPA–LEED, STM und LEEM. Die Besonderheiten der beiden erstgenannten Apparaturen sollen in diesem Kapitel beschrieben werden, während den Grundlagen des LEEM mit Kapitel 7 ein eigener Abschnitt gewidmet ist.

Im zweiten Teil folgt ein Bericht über die Probenpräparation, woran sich ein Überblick über die verwendeten Verdampfer anschließt. Im dritten Teil schließlich wird kurz die Technologie beschrieben, die zur Erzeugung von Kontakten verwendet wird.

1.1 Die SPA–LEED Apparatur

Zur Veranschaulichung des experimentellen Aufbaus der SPA–LEED Apparatur ist in Abb. 1.1 ein Querschnitt durch die Kammer gezeigt. Es handelt sich um eine Standard UHV Apparatur aus Edelstahl mit magnetischer Abschirmung. Der erreichbare Basisdruck nach Ausheizen ist besser als $p = 1 \times 10^{-10}$ mbar. Mittels eines Transfersystems ist es möglich, gleichzeitig Messungen in der Hauptkammer durchzuführen und eine neue Probe in der Schleusenkammer zu präparieren.

Hauptanalysemethode der Kammer stellt das SPA–LEED dar, auf dessen Funktionsweise in Abschnitt 1.1 detailliert eingegangen werden soll. Um in-situ Messungen, während der Deposition, vornehmen zu können, ist eine zusätzliche (sogenannte “externe”) Elektronenkanone unter einem Winkel von 120° relativ zum SPA–LEED und 60° relativ zu den Verdampfern angebracht.

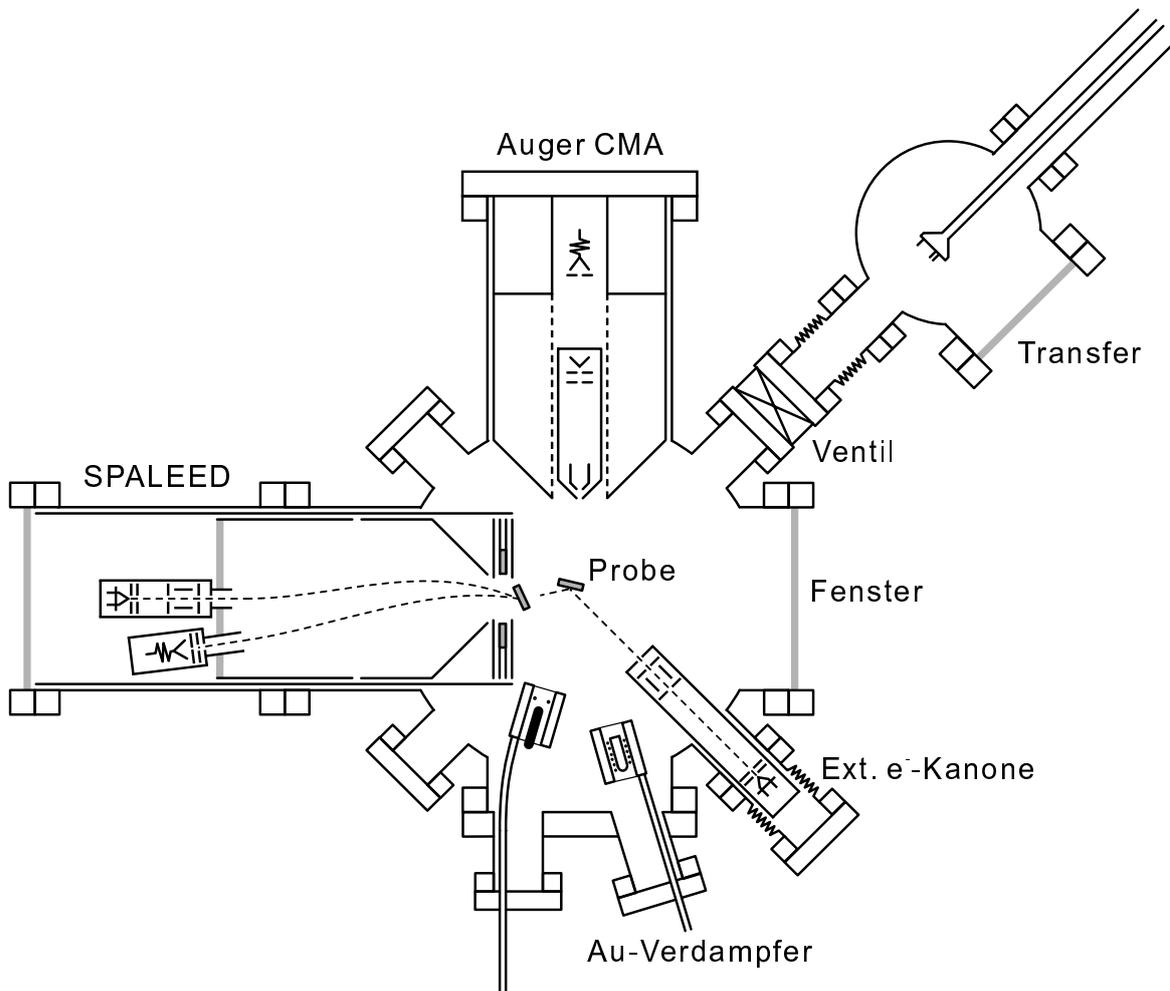


Abbildung 1.1: Querschnitt durch die SPA-LEED Apparatur. Zentralen Bestandteil bilden SPA-LEED, externe Elektronenkanone und Transfersystem, zusätzlich sind ein Auger CMA und ein Massenspektrometer (oberhalb der Bildebene) vorhanden.

Ein Auger CMA sowie ein Massenspektrometer zur Restgasanalyse ergänzen die Methodenauswahl.

Das SPA-LEED wurde im Institut für Festkörperphysik entwickelt [28, 29] und wird inzwischen von der Firma Omicron in Lizenz gebaut. Es unterscheidet sich von einem optischen 4 Gitter LEED prinzipiell dadurch, daß der Detektor (Eingangsspalt des Channeltron) punktförmig ist, d.h. das Beugungsbild wird nicht von einem Leuchtschirm abfotografiert, sondern an einem Punkt des K-Raumes werden direkt die gebeugten Elektronen gezählt. Durch elektrostatische Ablenkplatten, die zur Minimierung der Abbildungsfehler als Oktopole ausgeführt sind, kann bei nahezu konstanter Position des Elektronenstrahles auf der Probe der Einfallswinkel der Elektronen variiert werden. Dies ist äquivalent zu einer mechanischen Verdrehung der Probe und

1.1. DIE SPA-LEED APPARATUR

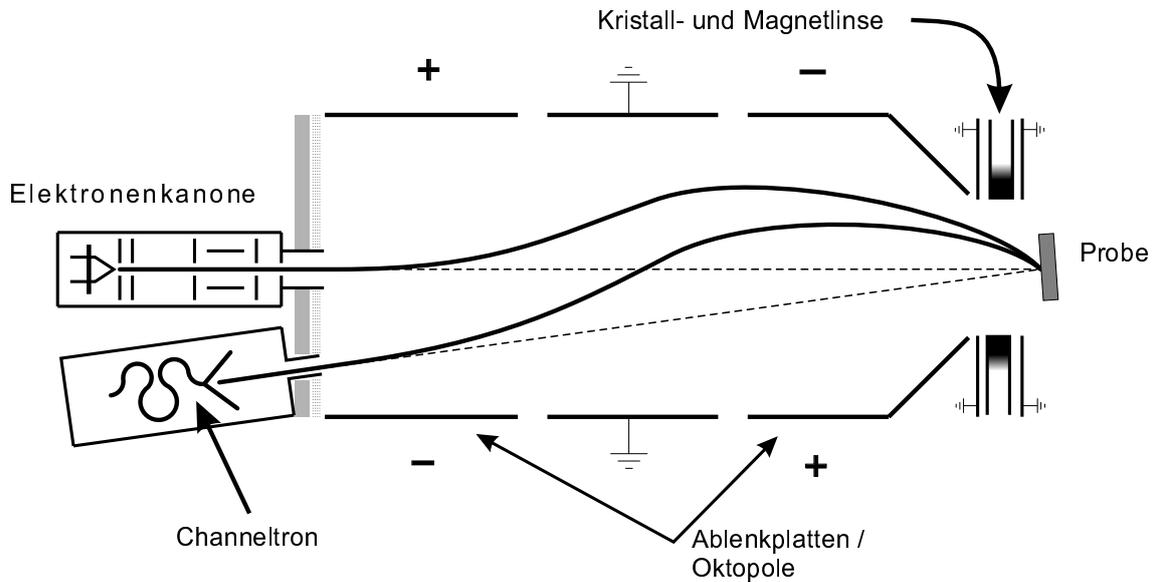


Abbildung 1.2: Aufbau des SPA-LEED. Von der Elektronenkanone ausgehende Elektronen durchfliegen die beiden Oktopolfelder und treffen auf die Probe. Der Auftreffwinkel kann über die Oktopolspannungen variiert werden. Die gebeugten Elektronen durchfliegen das Ablenkkfeld erneut und werden im Detektor gezählt.

hat Konsequenzen für den Winkel, mit dem die gebeugten Elektronen die Oberfläche verlassen. Durch die im SPA-LEED gewählte Anordnung von Elektronenkanone und Detektor ist der Winkel zwischen einfallenden und detektierbaren Elektronen jedoch auf einen Wert von 7° festgelegt. So kann durch Variation der Ablenkspannungen bei festem Beugungswinkel der K-Raum abgetastet werden.

Hierbei ergibt sich, im Vergleich zu einem optischen LEED, eine modifizierte Ewald-Konstruktion, wie in Abb. 1.3 angedeutet. Durch den konstanten Winkel zwischen \vec{k}_i und \vec{k}_f ist der Scanbereich um den Ursprung des K-Raumes zu zeichnen, weshalb der beobachtbare Ausschnitt im K-Raum deutlich größer ist als im Fall des üblicherweise verwendeten optischen LEED Gerätes. Ein weiterer Vorteil des SPA-LEED liegt in der geringeren Krümmung des Scans im reziproken Raum. Dies findet Anwendung in Kapitel 2.

Um eine hohe Auflösung im K-Raum zu erreichen, muß der Fokus des Elektronenstrahls in der Detektorebene liegen. Diese Bedingung kann mit zwei elektrostatischen Linsen realisiert werden. Die erste ist in die Elektronenkanone integriert, die zweite Linse ist an dem vorderen Ende des SPA-LEED unmittelbar vor der Probe angebracht ("Kristall-Linse"). Um den Fokus zu verbessern ist es bei dem vorhandenen SPA-LEED möglich, die Kristall-Linse abzuschalten und durch eine Magnetlinse zu

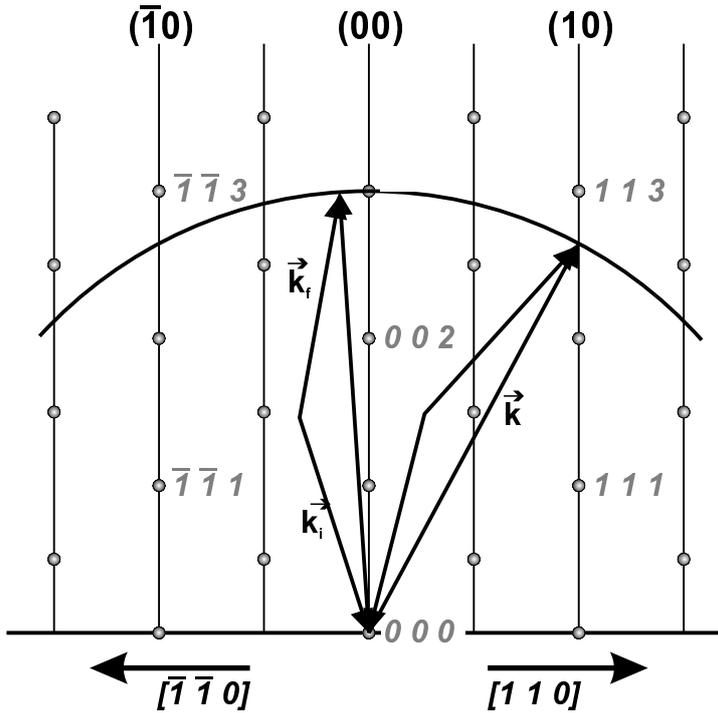


Abbildung 1.3: Ewald-Konstruktion für SPA-LEED. Der Winkel zwischen einfallendem Strahl \vec{k}_i und detektiertem Strahl \vec{k}_f ist auf 7° festgelegt. Der Scanbereich hat daher sein Zentrum im Ursprung des reziproken Raumes. Der Streuvektor \vec{k} ergibt sich als Differenz von \vec{k}_f und \vec{k}_i . Im Vergleich zum optischen LEED ergeben sich daraus ein vergrößerter Scanbereich und eine geringere Krümmung der Scans im K-Raum.

ersetzen. Es hat sich außerdem gezeigt, daß die Auflösung des verwendeten SPA-LEED nicht durch den Eintrittsspalt des Detektors begrenzt ist, sondern durch die Größe des Elektronenfokus. Daher war es bereits im Vorfeld dieser Arbeit möglich, den Durchmesser der Eintrittsblende des Detektors ohne Auflösungseinschränkungen zu vergrößern. Solange der Eintrittsspalt viel kleiner ist als der Fokus des Elektronenstrahls, steigt die Zählrate quadratisch mit dem Durchmesser an. Dies führt bei einigen der gezeigten Bilder zwar zu einer Übersteuerung des (00) Reflexes bei Zählraten $\geq 3 \times 10^6$ CPS, ermöglicht andererseits jedoch auch im Untergrund eine gute Statistik.

Die Aufnahme der SPA-LEED Daten kann nur unter Zuhilfenahme eines Computers geschehen, der die Ansteuerung der Oktopolspannungen und die Auswertung der Zähl-elektronik übernimmt. Mit dieser Anordnung ist es nicht nur möglich LEED Bilder hoher Qualität aufzunehmen, sondern es können auch eindimensionale Schnitte vermessen und Profilformen einzelner Reflexe analysiert werden. Bei der Aufnahme aller Meßwerte muß jedoch die für SPA-LEED charakteristische Verzerrung des Bildes durch Abbildungsfehler beachtet werden. Um dies zu verdeutlichen, ist in Abb. 1.4 (a) das SPA-LEED Bild einer Si(111) Fläche dargestellt. Die dreizählige Symmetrie der (7×7) rekonstruierten Oberfläche mit ihrer großen Anzahl von Reflexen vereinfacht die Identifizierung der Bildfehler als Tonnenverzerrung. Näherungsweise kann diese durch eine Parabelnäherung korrigiert werden [30], wie Abb. 1.4 (b) zeigt. Alle Reflexe liegen jetzt nahezu auf Geraden, weit außerhalb des Zentrums führen Abbildungsfehler

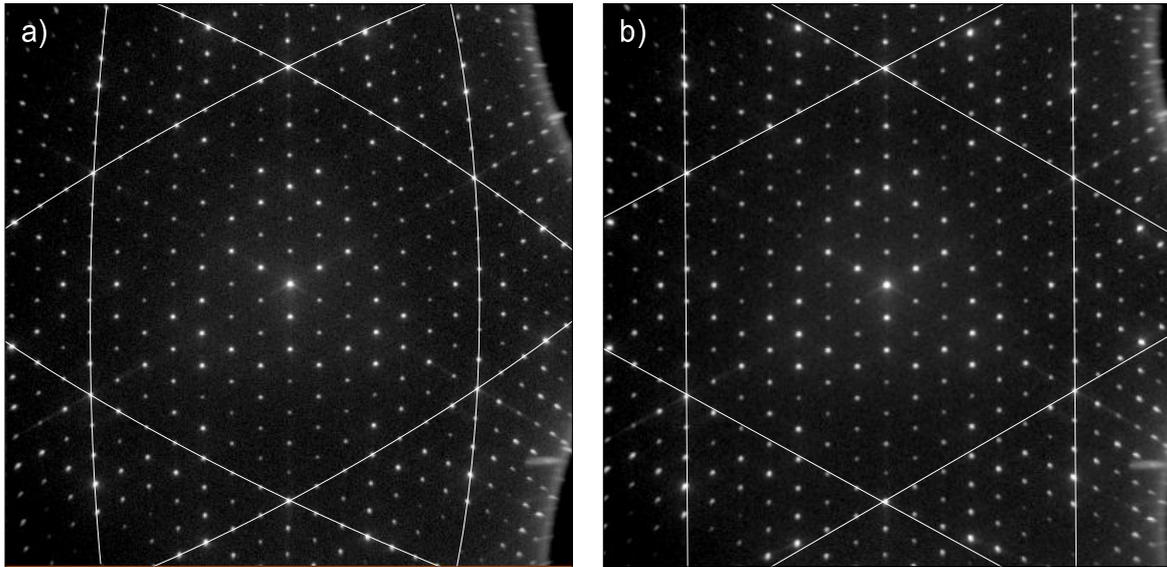


Abbildung 1.4: Abbildungsfehler durch den Oktopol. a) Originaler Datensatz einer (7×7) rekonstruierten Si(111) Oberfläche, b) Die selben Daten nach Entzerrung zweiter Ordnung [30].

höherer Ordnung jedoch noch immer zu einer deutlich sichtbaren Verzerrung.

Alle in dieser Arbeit abgedruckten SPA-LEED Bilder wurden zur Korrektur der Abbildungsfehler nach dem beschriebenen Verfahren mit einer selbstentwickelten Software [30] bearbeitet.

1.2 Die STM Apparatur

Die Experimente mit dem Rastertunnelmikroskop wurden in einer anderen Apparatur als der bereits in Abschnitt 1.1 beschriebenen durchgeführt. Auch bei diesem System handelt es sich um eine magnetisch abgeschirmte Edelstahlkammer mit Transfersystem und einem Basisdruck besser als 1×10^{-10} mbar. Außer dem STM stehen zur Zeit keine weiteren Methoden zur Oberflächenanalyse zur Verfügung.

Das verwendete "Micro STM" ist ein kommerzielles Gerät der Firma Omicron. Es handelt sich um ein vitongedämpftes Mikroskop, mit dem Messungen ausschließlich bei Raumtemperatur möglich sind. Die Abtastung der Oberfläche mit der STM Spitze ist durch einen Piezo-Tubescanner realisiert, mit dem maximal ein Ausschnitt von $8 \mu\text{m}^2$ auf der Probe abgerastert werden kann. Außerdem ist es möglich, den Probenhalter mit Scherpiezos bis zu mehreren mm bei Schrittgrößen im μm Bereich zu verschieben (Trägheitsantrieb). Die Annäherung der Spitze an die Probe geschieht computerge-

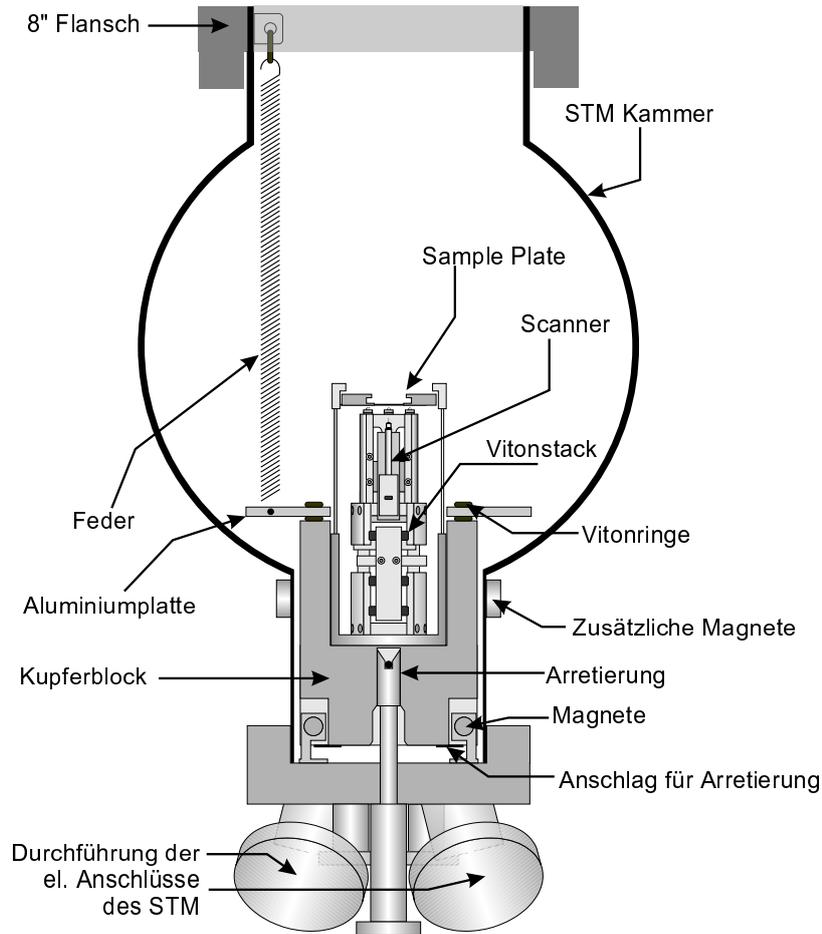


Abbildung 1.5: Die neue Schwingungsisolierung des Micro-STM. Das gesamte Mikroskop hängt an Federn und ist wirbelstromgedämpft. Hierzu ist ein Satz Magnete an der Unterseite der Kammer angebracht (Vertikalschwingung) sowie ein Satz Magnete an der Außenseite der Kammer (Kippschwingung). Für den Probentransfer kann das Mikroskop mit einer Linear-durchführung angehoben und fixiert werden.

steuert ebenfalls mit einem Trägheitsmotor. Der Transfer der Probe in das STM ist über einen Wobbelstick realisiert, ebenso ist ein Transfer des kompletten Scanners für den Spitzenwechsel vorgesehen.

Bereits in früheren Arbeiten [23, 27] wurde deutlich, daß die Schwingungsisolierung allein durch den Vitonstack unzureichend ist. Abb. 1.5 zeigt die Lösung dieses Problems [31]. Der originale STM Kopf ist auf einem Kupferblock befestigt worden, der mit Federn an dem oberen Flansch der STM Kammer aufgehängt ist. Von unten tauchen 8 Magnete einer Stärke von 850mT in den Kupferblock ein, die durch Wirbelstrombildung eine Vertikalschwingung effektiv dämpfen. Um Kippschwingungen zu unterdrücken sind 8 zusätzliche, stärkere Magnete (1250mT) außerhalb des Vakuums



an der Kammer angebracht. Eine notwendige Fixierung des STM für den Proben- und Spitzentransfer erfolgt durch eine Lineardurchführung, mit der die gesamte Konstruktion angehoben werden kann. Hierdurch werden die Federn entlastet, und das STM ruht auf der Spitze der Lineardurchführung, die in den Kupferblock versenkt ist. Eine zusätzliche Halteplatte an der Unterseite des Kupferblockes drückt dabei gegen die Magnethalter, so daß auch ein Verkippen um kleine Winkel nicht möglich ist. Gegen Verdrehung ist das STM durch einen zusätzlichen Stift und eine schlitzzartige Einfräsung in der Lineardurchführung geschützt.

1.3 Probenpräparation

Die verwendeten Proben wurden von mehreren Wafern unterschiedlicher Vicinalität und Orientierung mit einem Diamantschreiber angeritzt und gebrochen. Anschließendes Abwischen mit Ethanol (Merck, PA-Qualität) entfernte Staub, sowie beim Brechen entstandene Siliziumsplitter von der Oberfläche. Dem Einbau in das Probenschiffchen folgte ein mindestens zwölfstündiges Ausgasen von Halter und Probe in der Schleusen-kammer bei einer Temperatur von ca. 700°C. Nach Transfer in die UHV-Kammer wurde die Probenoberfläche schließlich durch mehrfaches Glühen (flashen) bis zu einer Temperatur von 1250°C von dem natürlichen Schutzoxid befreit. Mit diesem Verfahren können saubere Oberflächen reproduzierbar erzeugt werden, die sich durch ein hohes Signal zu Untergrund Verhältnis im LEED auszeichnen. Um extrem große Strukturen mit Terrassenlängen im Millimeterbereich zu erzeugen, erwies es sich jedoch als erforderlich, die Proben über mehrere Tage in der Transferkammer auszugasen (siehe Kapitel 5). Nach der Facettierung durch Golddeposition wurden die Proben typischerweise durch erneutes Flashen gereinigt und wiederverwendet, mit Ausnahme der Messungen zum Gittergasmodell in Kapitel 4.7. Um einen Einfluß des Goldes, dessen Eindiffusion in die Probe während des Reinigens sehr wahrscheinlich ist, auf die Bestimmung der kritischen Dichte des Gittergases auszuschließen, wurde dort für jedes Experiment eine neue Probe verwendet. In allen übrigen Fällen erwies sich das Wiederverwenden der Proben als unproblematisch, da die morphologische Transformation vollständig reversibel ist.

1.4 Verdampfer

In dieser Arbeit wurden zwei unterschiedliche Typen thermischer Goldverdampfer verwendet. Die Funktionsweise beider ist in den Abbildungen 1.6 und 1.8 dargestellt.

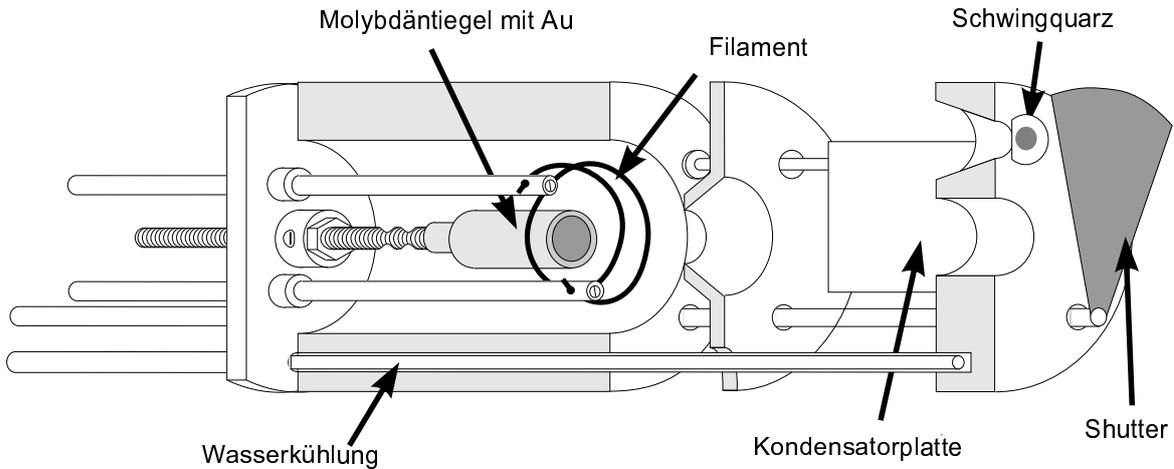


Abbildung 1.6: Gold “Standard” Elektronenstrahlverdampfer. Das Gold wird durch Elektronenstoßheizung aus einem Molybdäntiegel verdampft, entstehende Ionen werden durch eine Kondensatorplatte von der Probe abgelenkt. Die Ratenkontrolle ist durch eine Schwingquarzwage realisiert. Ein wassergekühlter Kupferblock dient als Strahlungsschild.

Gold besitzt einen Schmelzpunkt von 1336K, bei 1080K erreicht es jedoch bereits einen Dampfdruck von 10^{-8} mbar [32]. Verdampfer, die nach dem Prinzip der Strahlungsheizung funktionieren, sind aufgrund der erforderlichen hohen Temperaturen kaum für Gold geeignet.

1.4.1 Elektronenstrahlverdampfer

Die im Institut für Festkörperphysik entwickelte Version eines Elektronenstrahlverdampfers wurde bereits an mehreren Stellen ausführlich beschrieben [23, 33, 34]. Zentralen Bestandteil des Verdampfers in Abb. 1.6 stellt ein mit Gold gefüllter Molybdäntiegel dar. Um den Tiegel ist ein dünner Wolframdraht herumgelegt ($d = 0.15\text{mm}$), ohne elektrischen Kontakt zu dem Tiegel. Bei Erhitzen des Wolframdrahtes treten Elektronen aus dem Filament aus, die durch Anlegen einer Hochspannung auf den Tiegel beschleunigt werden. Eventuell durch den Elektronenstoß entstehende Ionen werden durch einen Kondensator vor dem Tiegel effektiv ausgeblendet. Der gesamte Verdampferkörper ist mit einem wassergekühlten Strahlungsschild aus Kupfer umgeben.

Eine Multiplikation der angelegten Tiegelspannung mit dem gemessenen Emissionsstrom zwischen Filament und Tiegel führt zu der Heizleistung als Maß für die Verdampferrate, die mit einer Schwingquarzwage kontrolliert werden kann. In die Kalibrierung der Schwingquarzwage fließen eine Proportionalitätskonstante [35] sowie die Dichte

1.4. VERDAMPFER



von Gold ein. Für die gegebenen Abmessungen in der Kammer berechnet sich eine Frequenzverschiebung von 350Hz pro atomarer Lage Gold [36]. Die gute Reproduzierbarkeit der Verdampfungsrate ist an einer Auftragung der Schwingquarzwerte über der Heizleistung in Abb. 1.7 abzulesen.

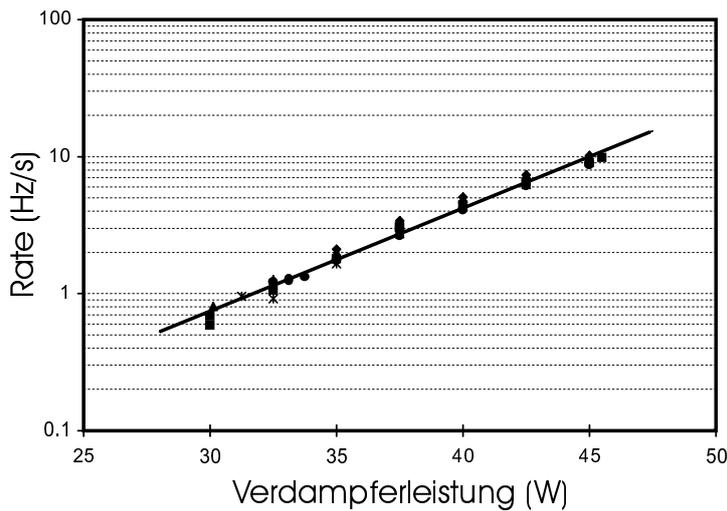


Abbildung 1.7: Abhängigkeit der Verdampferrate von der Verdampferleistung. Unterschiedliche Symbole bezeichnen verschiedene Experimente über einen Zeitraum von mehreren Wochen. Die Reproduzierbarkeit der Verdampferrate ist sehr hoch.

1.4.2 Drahtverdampfer

Zusätzlich zu dem Elektronenstrahlverdampfer wurde ein Filamentverdampfer konstruiert. Dieser besteht aus einem mäandrierenden Wolframdraht ($d=0.3\text{mm}$), wie in Abb. 1.8 skizziert, über den Schlaufen aus Golddraht gehängt sind. Wird bei dieser Anordnung das Filament im Vakuum durch Stromfluß vorsichtig erhitzt, so tendiert das Gold zum Benetzen des Filamentes und bildet kleine Kügelchen, die sich um den Wolframdraht herumlegen. Nach diesem kritischen Prozeß, bei dem immer die Gefahr besteht, daß die Golddrahtschlaufen durchtrennt werden und herabtropfen, können mit dem Verdampfer beliebig hohe Raten erzielt werden. Dieser Verdampfertyp wurde daher zur Deposition der Golddrähte unter streifendem Einfall nach vollzogener Facettierung eingesetzt.

Da der thermische Kontakt der Goldkugeln mit dem Wolframdraht entscheidenden Einfluß auf die Verdampferrate nimmt, muß bei diesem Verdampfertyp mit großen Ratenschwankungen gerechnet werden, je nach Position und aktueller Größe der Goldkugeln. Erwartungsgemäß hat sich gezeigt, daß mit diesem Verdampfer eine stabiler Betrieb mit reproduzierbaren Raten im Submonolagenbereich nicht möglich ist.

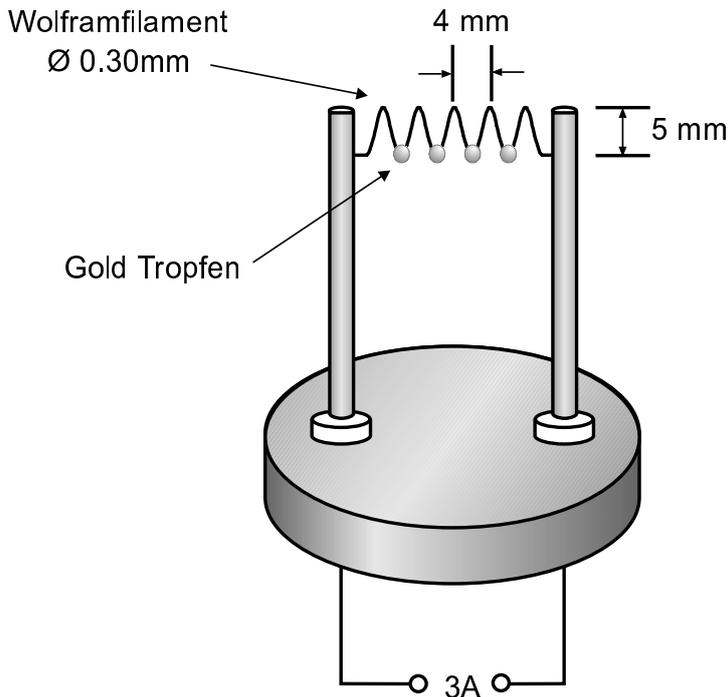


Abbildung 1.8: Au Filamentverdampfer. In einen mäandrierenden Wolframdraht werden Schlaufen aus Golddraht gehängt, die beim Anschmelzen das Wolfram benetzen und sich zu Kugeln zusammenziehen.

1.5 Aufbringen von Kontakten

Nach der Präparation von Drahtstrukturen durch schräge Bedampfung der Probenoberfläche stellt sich das Problem der Kontaktierung. Hierzu wurde ein Prozeß äquivalent zur Platinenherstellung gewählt. Eine dünne Kupferfolie ($d=0.05\text{mm}$) wird beidseitig mit Fotopositivlack beschichtet und mit einem Diapositiv durch Kontaktbelichtung die Maskenstruktur übertragen. Mit Feinätzkristall werden anschließend die belichteten Bereiche freigeätzt, so daß eine Lochmaske entsteht. Ein Foto der Maske ist in Abb. 1.9 gezeigt. Die empfindliche Kupferfolie wird aus Stabilitätsgründen auf einem Aluminiumträger aufgeklebt. Auf die Folie werden anschließend zwei Wolframdrähte ($d=0.5\text{mm}$, in Abb. 1.9 nicht gezeigt) gelegt, die eine Berührung von Probenober-

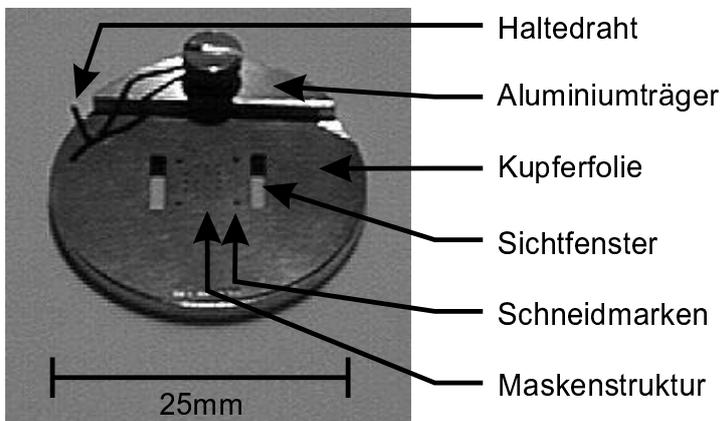


Abbildung 1.9: Maske für das Aufbringen von Kontaktpads. Durch die Sichtfenster kann das Lichtbeugungsmuster der Probe betrachtet und die Maske ausgerichtet werden, bevor sie mit dem Halter fixiert wird.

1.5. AUFBRINGEN VON KONTAKTEN



fläche und Maske verhindern. Mit einem Haltedraht wird die Probe von hinten gegen die Maske gedrückt. Zwei freigeätzte Fenster in der Maske erlauben eine Justage der Kontaktpads relativ zu den Drahtstrukturen anhand des Lichtbeugungsbildes der Probe.

Um die Kontakte dauerhaft auf die Oberfläche aufzubringen erweist es sich als notwendig, zunächst einige nm Chrom als Haftvermittler zu deponieren, da bei dem folgendem Prozeßschritt des Bondens Kontaktpads aus Gold nicht haften. Die Anordnung von Chrom- und Goldverdampfer nimmt hierbei entscheidenden Einfluß auf die Qualität der erzeugten Kontakte, da durch Parallaxe-Effekte Halbschattenbereiche entstehen können. Um diese zu minimieren, müssen beide Verdampfer möglichst nahe beieinander angebracht werden. Es wurde daher ein Elektronenstrahlverdampfer mit Tiegeln aus Molybdän (Au) und Wolfram (Cr) mit einem gemeinsamen Filament zwischen den Tiegeln konstruiert. Die Selektion zwischen Au und Cr Verdampfer erfolgt dann durch Anlegen der Hochspannung an den einen oder anderen Tiegel. Bei einem Abstand der Tiegel untereinander von 1cm, einem Abstand der Tiegel zur Maske von 5cm und einem Abstand der Maske zur Probenoberfläche von 0.5mm berechnet sich die erwartete Parallaxe zu ungefähr $100\mu\text{m}$, die auch in Abb. 1.10 experimentell gefunden wird.

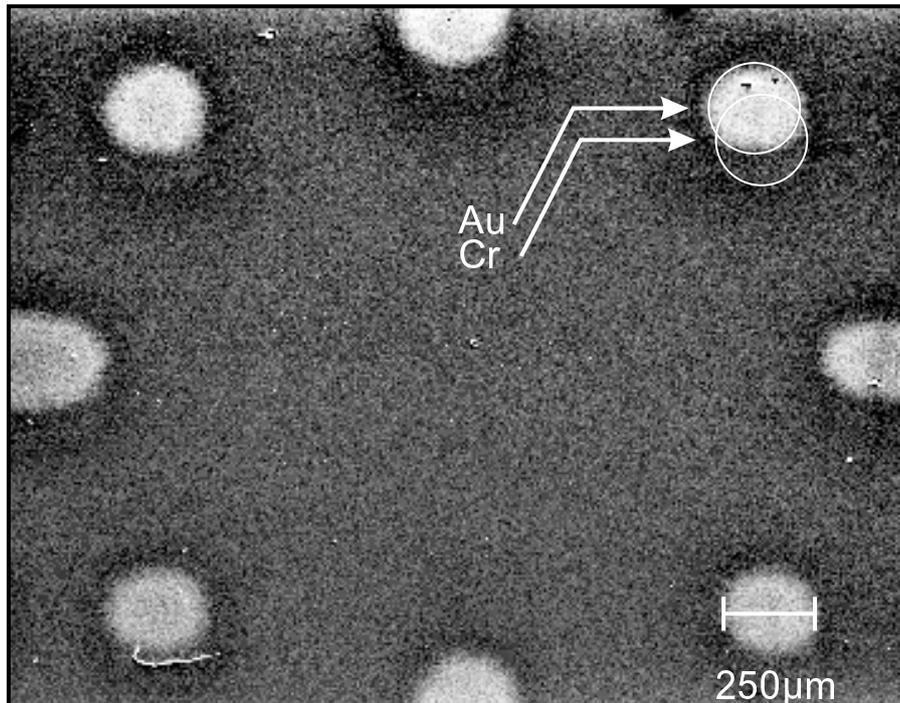


Abbildung 1.10: SEM Bild einer superterrasierten Silizium Oberfläche mit aufgebracht Kontaktpads. Deutlich zu erkennen ist der Versatz von etwa $100\mu\text{m}$ zwischen Gold- und Chrompads.



Kapitel 2

Elektronenbeugung

Wie die Charakterisierung von Oberflächen mit Elektronenbeugung erfolgen kann ist seit langem bekannt und wurde bereits in vielen Arbeiten verwendet. In diesem Kapitel soll ein kurzer Einblick in die theoretischen Grundlagen der Elektronenbeugung gegeben werden, die bei der Analyse von SPA-LEED Daten Anwendung finden werden.

Anschließend soll eine Meßanleitung zur automatischen Vermessung von Schnitten im reziproken Raum mit SPA-LEED vorgestellt werden. Die prinzipbedingten Grenzen des Verfahrens werden ausführlich diskutiert.

2.1 Kinematische Beugungstheorie

Um Oberflächenempfindlichkeit bei der Reflexion von Elektronen an Festkörperoberflächen zu erreichen, existieren zwei unterschiedliche Ansätze. Einerseits kann durch streifenden Einfall von Elektronen im Energiebereich von einigen keV Oberflächenempfindlichkeit erzeugt werden (RHEED), andererseits kann jedoch auch bei senkrechtem Einfall der Elektronen auf die Oberfläche die Elektronenenergie so weit reduziert werden (10eV bis 500eV), daß die Eindringtiefe nur einige Angström [37] beträgt (LEED).

Obwohl in diesem Fall die Oberflächen sensitivität gegeben ist, darf bei einer vollständigen theoretischen Beschreibung der Elektronenbeugung die analytisch unlösbare Mehrfachstreuung der langsamen Elektronen an der Oberfläche nicht vernachlässigt werden. Dies führt zu der sogenannten “dynamischen LEED Theorie”.

Ein anderer Ansatz zur Lösung des Problems der Mehrfachstreuung ist in Abb. 2.1 skizziert. Die Atome aller Einheitszellen der Oberfläche, sowie alle darunterliegenden

Atome des Festkörpers werden zu einer Säule zusammengefaßt. Die Mehrfachstreuung in allen Säulen ist identisch, und kann daher in den Formfaktor einfließen [32]. In dieser sogenannten “kinematischen Näherung” wird die Streuung in den Säulen berücksichtigt, die Wechselwirkung zwischen den Säulen hingegen vernachlässigt.

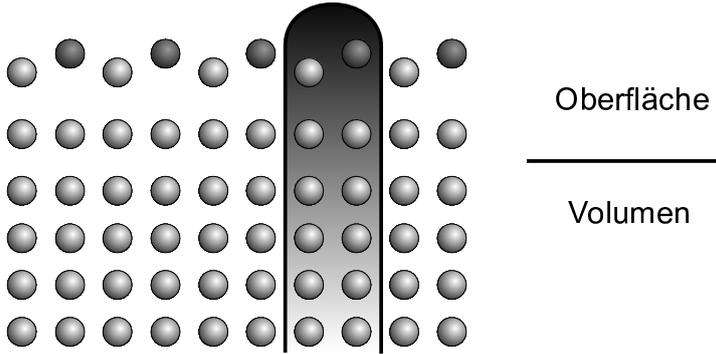


Abbildung 2.1: Kinematische Näherung: Die Einheitszelle einer perfekt periodischen Oberfläche wird als “Säule” betrachtet. Mehrfachstreuungsprozesse innerhalb der Säulen fließen in den Formfaktor ein, zwischen den Säulen wird Mehrfachstreuung vernachlässigt.

Mathematisch wird die Beugung von Elektronen an einer Oberfläche in der kinematischen Näherung durch die Fraunhofersche Beugung beschrieben, d.h. sowohl einfallende als auch gebeugte Elektronenwelle können aufgrund der großen Abstände im Experiment (relativ zur Wellenlänge der Elektronen im Angström-Bereich) als ebene Wellen betrachtet werden. Die Amplitude der rückgestreuten Welle berechnet sich zu

$$A(\vec{k}, \vec{k}_i) = \sum_{EZ} f(\vec{k}, \vec{k}_i) \cdot \exp(i\vec{k} \cdot \vec{r}_n) \quad (2.1)$$

Dem Meßprozess zugänglich ist jedoch nur die Intensität am Ort des Detektors

$$I(\vec{k}, \vec{k}_i) = \left| f(\vec{k}, \vec{k}_i) \right|^2 \cdot \left| \sum_{EZ} \exp(i\vec{k} \cdot \vec{r}_n) \right|^2 \stackrel{!}{=} F \cdot G \quad (2.2)$$

Hier ist \vec{k} der Streuvektor, und \vec{k}_i der Wellenvektor der einfallenden Elektronenwelle. Der Streufaktor F ist für die kinematische Näherung zunächst unerheblich, er variiert zwar mit der Elektronenenergie, hängt jedoch nur schwach von der Parallelkomponente des Streuvektors k_{\parallel} ab. Zur Berechnung des Gitterfaktors G muß über alle Einheitszellen auf der Oberfläche an den Positionen \vec{r}_n summiert werden. Die Betrachtung von Veränderungen des Gitterfaktors allein genügt für eine Analyse der Oberflächenmorphologie [32]. Die Möglichkeiten, Informationen über die Oberfläche anhand des Gitterfaktors zu gewinnen wurde in den vergangenen Jahren deutlich weiterentwickelt [35, 38, 39], ein ausführlicher Überblick mit Anwendungsbeispielen ist in Ref. [40] zu finden.



2.1.1 Die Streuphase

Der Begriff der Streuphase S stellt eine in der Elektronenbeugung üblicherweise verwendete Hilfskonstruktion dar, um eine Transformation der experimentellen Parameter in die Größen der theoretischen Beschreibung durchzuführen. Sei eine atomare Stufe der Höhe d auf der Oberfläche gegeben, so kann die Phasenverschiebung zwischen den an der oberen Terrasse und der unteren Terrasse gebeugten Elektronen formuliert werden als

$$\Delta = 2d \cos \vartheta \quad (2.3)$$

Hierbei beschreibt ϑ den Einfallswinkel des Elektronenstrahls auf der Oberfläche. Über die de Broglie Wellenlänge der Elektronen

$$\lambda_E = \sqrt{\left(\frac{h^2}{2m_e E}\right)} \quad \Longleftrightarrow \quad \lambda_E(\text{\AA}) = \sqrt{150.4/E(\text{eV})} \quad (2.4)$$

wird die Streuphase S definiert

$$S \stackrel{!}{=} \frac{\Delta}{\lambda_E} \quad \Longrightarrow \quad E = \frac{\pi^2 \hbar^2}{2md^2} \cdot \frac{1}{\cos^2 \vartheta} \cdot S^2 \quad (2.5)$$

S beschreibt die Phasenverschiebung an Stufen in relativen Anteilen der Elektronenwellenlänge. Unabhängig von der Gitterkonstante des Substrates tritt bei jeder halbzahligem Streuphase destruktive Interferenz an einer atomaren Stufe auf (gegen-Phase), bei jeder ganzzahligen Streuphase ist eine konstruktive Interferenzbedingung erfüllt (in-Phase). Die Bragg-Punkte des reziproken Gitters fallen immer mit ganzzahligen Werten für S zusammen. So entspricht auf einer Si(001) Oberfläche Phase 1 dem (004) Reflex und Phase 2 dem (008) Reflex.

2.1.2 Die Transferfunktion

Welche Informationen in einer LEED Aufnahme sind "echt", und welche Einflüsse stammen von den experimentellen Imperfektionen des Instrumentes? Diese Fragestellung wurde Anfang der 70er Jahre von verschiedenen Gruppen untersucht [41, 42, 43] und abschließend von Comsa [44] diskutiert.

Die Profilform jeden LEED Spots ist einerseits bestimmt durch die reale Intensitätsfunktion $i(\vec{k})$, die mit einem idealen Instrument gemessen werden könnte, andererseits durch die Instrumentenfunktion $T(\vec{k})$, die bei Vorhandensein eines perfekt ebenen und defektfreien Kristalls beobachtet wird. Die real mit LEED bestimmte Intensität $i_m(\vec{k})$ ergibt sich aus einer Faltung beider Anteile: $i_m(\vec{k}) = i(\vec{k}) * T(\vec{k})$. Die Auflösungsgrenze des Instrumentes ist daher durch die Gestalt von $T(\vec{k})$ gegeben, die von mehreren unabhängigen Parametern des Experimentes beeinflusst wird.

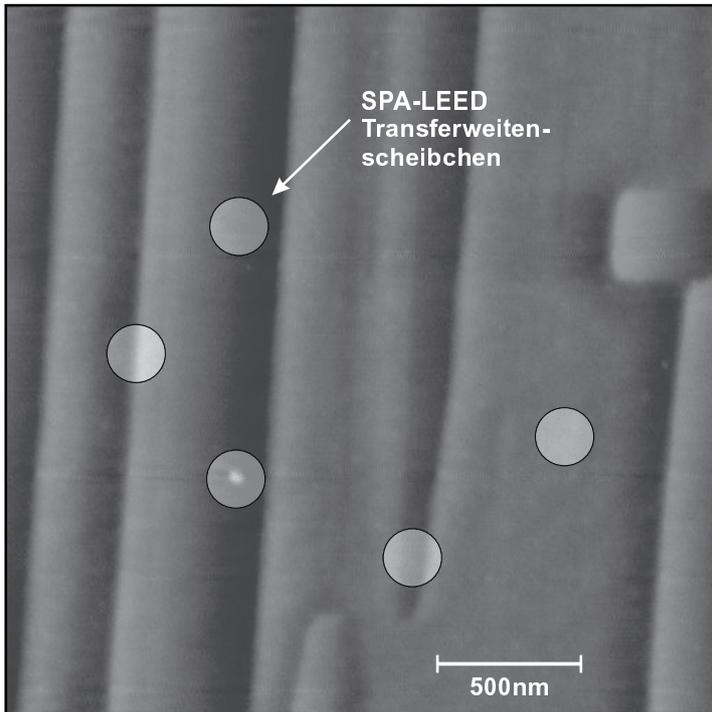


Abbildung 2.2: AFM Aufnahme einer facettierten Oberfläche. Eingezeichnet sind verschiedene Transferweittenscheibchen des SPA-LEED. Die klassischen Methoden der Profilanalyse sind bei diesem System nicht erfolgreich.

Die Energiebreitenverteilung des Elektronenemitters ΔE trägt zu einer Verbreiterung von Reflexprofilen bei, allerdings wird der Einfluß für Energien oberhalb von 50eV vernachlässigbar. Für das in dieser Arbeit verwendete Instrument beträgt die Energiebreite ca. 1eV (thermische Emission eines Wolframdrahtes).

Die räumliche Ausdehnung des Elektronenemitters führt zu einer Unsicherheit im Auftreffwinkel der Elektronen relativ zur Probe. Diese Unsicherheit existiert nicht bei Vorliegen einer idealen Punktquelle für Elektronen. Eine Abschätzung der Emittergröße aus der Betrachtung des Crossovers in der Elektronenkanone ist hier zu optimistisch.

Der Durchmesser der Detektorapertur d fließt linear mit dem inversen Abstand zwischen Detektor und Probe (R) in die Breite des LEED Reflexes ein (d/R). Dieser Beitrag ist im Fall des SPA-LEED wegen des geringen Durchmessers der Detektorapertur vergleichsweise gering.

Eine äquivalente Argumentation gilt für das Verhältnis von Elektronenstrahldurchmesser und Abstand des Detektors zur Probe (D/R). Durch Verwendung einer Linse, die den Strahldurchmesser verringert, kann die Transferfunktion verbessert werden.

Jeder dieser vier Einzelbeiträge führt nach Park [42] zu einer gaußförmigen Verbreiterung des Reflexes mit einer Halbwertsbreite w_i , die experimentell bestimmbare Halbwertsbreite des Reflexes W ergibt sich schließlich aus $W = \sqrt{\sum_i w_i^2}$. Diese Zahl entspricht einer Länge im reziproken Raum, die durch Kehrwertbildung in eine rea-



le Größe, die sogenannte Transferweite, umgerechnet werden kann. Die Transferweite beschreibt den maximalen Abstand zweier Streuer auf der Oberfläche, von denen ausgehend ein gebeugtes Elektron noch interferieren kann.

Da das Meßsignal sich aus zwei Anteilen zusammensetzt, namentlich der Intensitätsfunktion der Oberfläche und der Instrumentenfunktion, kann die Transferweite nur bei Vorliegen einer perfekt geordneten Kristalloberfläche bestimmt werden. Diese Bedingung ist im Fall von Silizium gut erfüllt, wenn der Einfluß atomarer Stufen auf der Oberfläche durch Wahl einer in-Phase Bedingung ausgeschaltet wird [45].

Für das verwendete SPA-LEED wurden, je nach Fokusbedingung und Emissionsstrom der Elektronenkanone, Transferweiten zwischen 1000\AA und 2000\AA beobachtet. Die während der Facettierung entstehenden Strukturen weisen jedoch eine typische Größe von einigen hundert Nanometern auf. Zur Verdeutlichung dieses Verhältnisses ist in Abb. 2.2 ein AFM Bild einer vicinalen, durch Goldadsorption facettierten Silizium (001) Oberfläche gezeigt.

Die beispielhaft eingetragenen Transferweitescheibchen entsprechen denjenigen eines SPA-LEED mit 2000\AA Transferweite. Die Intensität unterschiedlicher Scheibchen wird am Ort des Detektors inkohärent überlagert. Anhand dieser Abbildung wird deutlich, daß Informationen über Terrassen- und Facettengrößen einer superterrassierten Oberfläche nicht mit SPA-LEED zu gewinnen sind. Vielmehr zeigt sich in Kapitel 4, daß sogar die Terrassenbereiche selbst so extrem eben sind, daß die Halbwertsbreite der LEED Reflexe ausschließlich durch das Instrument bestimmt ist. Die "klassischen" Methoden der Reflexprofilanalyse zur Bestimmung der Rauigkeit sind auf dieses System daher nicht mit Erfolg anwendbar.

2.2 Die Struktur des reziproken Gitters

Obwohl eine Rauigkeitsanalyse der in dieser Arbeit untersuchten Strukturen und eine Bestimmung von Terrassenbreitenverteilungen wegen der Argumentation des vorigen Kapitels nicht möglich sind, können dennoch morphologische Informationen aus den LEED Bildern gewonnen werden. Einige typische Anordnungen reziproker Gitterstangen sollen in diesem Kapitel diskutiert werden.

2.2.1 Vicinale Oberflächen

Das Beugungsbild einer vicinalen Oberfläche mit einer regelmäßigen Abfolge von Stufen zeigt eine Aufspaltung aller Normalreflexe im LEED, die durch eine Vermischung

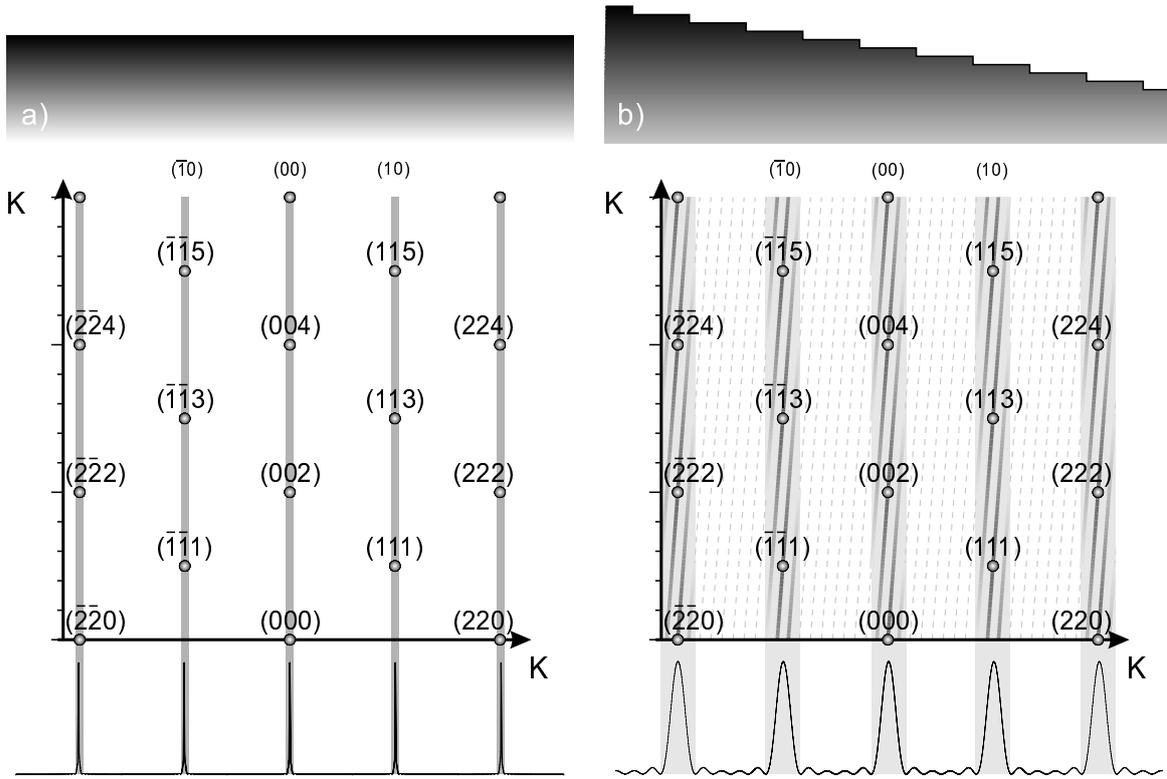


Abbildung 2.3: Reziprokes Gitter einer ebenen (a) und einer vicinalen (b) Oberfläche. Die Realraummodelle sind um einen Faktor zwei überhöht dargestellt.

zweier Strukturelemente entsteht. Hier wird zunächst das reziproke Gitter einer perfekt ebenen Oberfläche diskutiert, bevor die Stufenfolge berücksichtigt wird.

Gegeben sei eine Oberfläche, bestehend aus einer perfekt regelmäßigen Folge von Atomen im Abstand a . Das reziproke Gitter dieser theoretischen Oberfläche entspricht Abb. 2.3 (a). Der Schnitt zeigt einen “Wald” reziproker Gitterstangen, die einem Abstand von jeweils $2\pi/a$ besitzen.

Die Breite der Stangen wird durch eine Gleichung aus der Optik bestimmt [40], mit deren Hilfe das Beugungsmuster eines Spaltes beschrieben wird.

$$G(\vec{k}) = \left| \sum_{n=0}^{N-1} e^{ik_{\parallel}an} \right|^2 = \frac{\sin^2(N\frac{k_{\parallel}}{2})}{\sin^2(\frac{k_{\parallel}}{2})} \quad (2.6)$$

Für eine ausgedehnte Folge von Atomen ($N=\infty$) ergibt sich für die Breite der Stangen rechnerisch ein Dirac-Kamm. Experimentell wird jedoch keine unendliche Anordnung von Atomen beobachtet, die Anzahl der Streuer auf der Oberfläche ist vielmehr durch die Transferweite des Instrumentes begrenzt. Es ist daher eine Verbreiterung jeder Stange entsprechend der instrumentellen Auflösung zu erwarten.



Ist die theoretisch perfekte Folge der Streuer durch atomare Stufen unterbrochen, verändert sich die Struktur des reziproken Raumes entlang des gezeigten Schnittes grundlegend. Bei einer regelmäßigen Anordnung von je N Atomen und einer atomaren Stufe ergibt sich aus Gl. 2.6 eine deutliche Verbreiterung der LEED Reflexe. Für $N=10$ ist dies im unteren Teil von Abb. 2.3 (b) dargestellt. Zusätzlich zu den verbreiterten Gitterstangen existiert ein zweiter Satz von Stangen, der durch die Stufenfolge, d.h. durch ein Gitter mit N -fach größerer Gitterkonstante hervorgerufen wird. Der Abstand der Stangen im reziproken Gitter entspricht $2\pi/N$ und die Stangen sind um den Winkel Δ rotiert, der sich aus Terrassenbreite und Stufenhöhe ergibt.

Zur Berechnung der meßbaren Intensität müssen beide Gittersysteme durch Faltung überlagert werden. Im reziproken Raum entspricht dies einer Multiplikation der Gitterstangen unter Berücksichtigung der Halbwertsbreiten. Als Resultat sind alle Reflexe nahe der ursprünglichen Gitterstangen der ebenen Oberfläche aufgespalten und bewegen sich bei Variation von k_{\perp} schräg durch den reziproken Raum, wie in Abb. 2.3 (b) eingezeichnet. Für ein Beispiel einer realen Messung sei auf Abb. 4.2 in Kapitel 4 verwiesen.

2.2.2 Facettierte Flächen

Die Gestalt facettierter Flächen unterscheidet sich prinzipiell nicht von derjenigen einer gestuften Oberfläche, vielmehr können Facetten als vicinale Flächen sehr geringer Terrassenbreite und extrem guter Ordnung angesehen werden. Dies bedeutet kleine Abstände der einzelnen Streuer auf den Facettenbereichen und daraus folgend eine deutliche Separation der Gitterstangen. Für die kleinen Terrassenbereiche zwischen den extrem dicht zusammenliegenden Stufen errechnet sich dagegen aus Gl. 2.6 eine große Halbwertsbreite und damit eine hohe Intensität der Facettenreflexe in der gesamten Brillouinzone. In Abb. 2.4 (a) ist das reziproke Gitter einer vicinalen Silizium (001) Oberfläche mit (119) Facetten gezeichnet. Das Bild setzt sich aus zwei voneinander unabhängigen Stangensystemen zusammen, die durch inkohärente Überlagerung der gebeugten Elektronen von Terrassen und Facetten entstehen.

Sind die Facettenbereiche ungeordnet, so kann jede Facette in Bereiche lokal unterschiedlicher Neigung zerlegt werden. Ist jeder dieser Bereiche größer als die Transferweite des Instrumentes, so sind die Intensitäten der Facetten inkohärent zu überlagern, so daß ein Bild wie in Abb. 2.4 (a), allerdings mit mehreren voneinander unabhängigen Stangensystemen entsteht. Anders stellt sich die Situation dar, wenn die Zerlegung der Facette in Bereiche gleicher Neigung zu Größen führt, die kleiner als die Transferweite des Instrumentes sind. Dieser Fall ist in Abb. 2.4 (b) dargestellt. Die Modelloberfläche

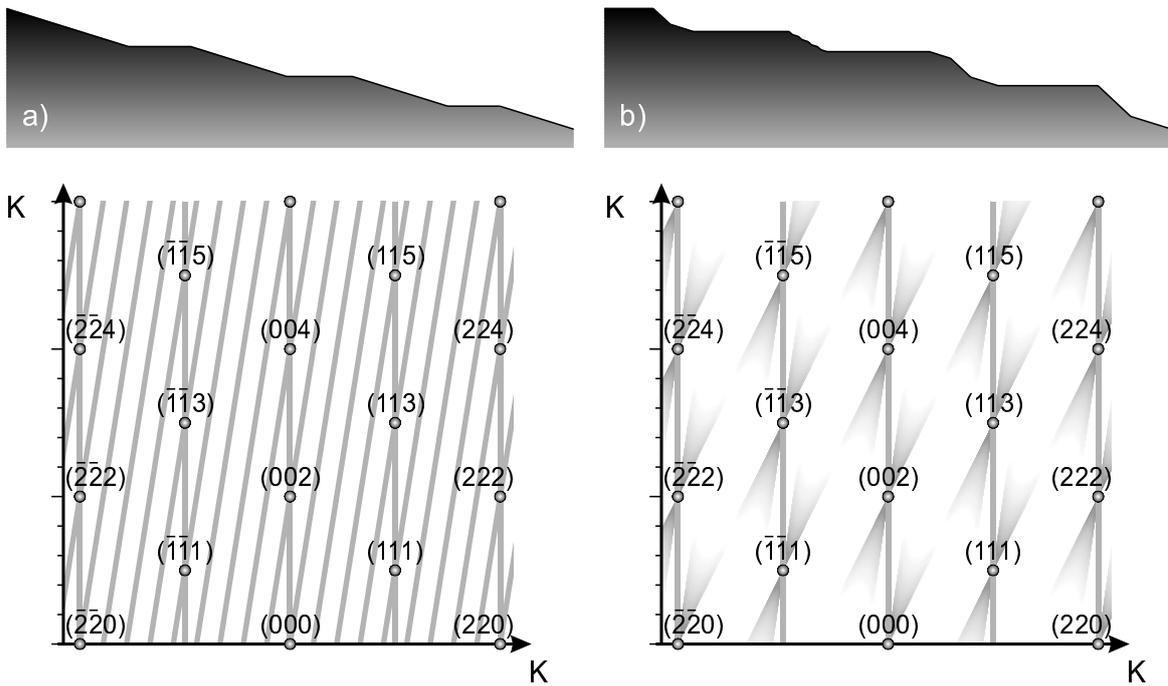


Abbildung 2.4: Reziprokes Gitter facettierter Si (001) Oberflächen. (a) perfekt ebene (119) Facetten, (b) Ensemble unterschiedlicher Facetten mit Präferenz für (119) und (115). Die Realraummodelle sind um einen Faktor zwei überhöht dargestellt.

besteht aus (001) Terrassen, die von kleinen Bereichen aus (113) und (119) Facetten in loser Folge unterbrochen werden. Die Stangen aller Facettenbereiche schneiden sich in den Bragg Bedingungen, laufen jedoch bei Verlassen dieser ausgezeichneten Punkte im K -Raum auseinander. Aufgrund der geringen Größe der Facettenbereiche im Realraum gewinnen die Reflexe sehr schnell (quadratisch) an Halbwertsbreite und verlieren Intensität. Aus diesem Grund sind solche rauhen “Stufenbänder” nur nahe der Bragg Bedingungen zu beobachten.

2.3 Reciprocal Space Mapping

Nachdem die prinzipielle Struktur des reziproken Gitters einer Oberfläche im vorigen Abschnitt beschrieben wurde stellt sich nun die Aufgabe, das Reflexverhalten zu vermessen. Im folgenden Abschnitt soll zunächst beschrieben werden, wie SPA-LEED Daten hoher Qualität an beliebigen Stellen des reziproken Raumes schnell und automatisch gewonnen werden können, bevor in einem zweiten Teil die Zulässigkeit der verwendeten Näherung begründet wird.



2.3.1 Experimentelle Grundlagen

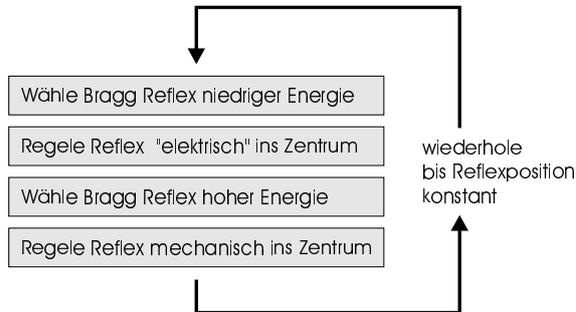


Abbildung 2.5: Algorithmus zur Justage der Apparatur zur automatischen Aufnahme von Schnitten im reziproken Raum.

Um das reziproke Gitter, wie z.B. in Abb. 4.2 in Kapitel 4, möglichst vollständig abzubilden, muß eine Vielzahl eindimensionaler Schnitte bei unterschiedlichen Elektronenenergien aufgenommen und anschließend mit einem Softwaretool in einer Graustufenabbildung zusammengesetzt werden. Die Messung gestaltet sich im Laboralltag dadurch schwierig, daß typischerweise die Reflexpositionen bei Variation der Elektronenenergie nicht konstant bleiben. Der im folgenden beschriebene Algorithmus zur Justage der Apparatur in Abb. 2.5 scheint bereits seit längerem für die Aufnahme von IV-LEED Kurven bekannt [46], die Übertragung auf SPA-LEED mit den entsprechenden Besonderheiten erfolgte jedoch erstmals im Rahmen der vorliegenden Arbeit.

Aufgabe ist eine Justage der SPA-LEED Apparatur, so daß bei Variation der Elektronenenergie die Position einer beliebig ausgewählten reziproken Gitterstange konstant bleibt. Hierzu wird zunächst eine Elektronenenergie eingestellt, die einer in-Phase Bedingung niedriger Energie auf der zu justierenden Stange entspricht (z.B. bietet sich für die (001) Fläche der (008) Bragg Reflex an). Anschließend werden alle Oktopolspannungen des SPA-LEED auf 0V gesetzt. Mit Hilfe des Manipulators wird die Probenposition so lange optimiert, bis die gewünschte Gitterstange mit dem Channeltron detektiert wird. Bei anschließender Erhöhung der Elektronenenergie beginnt der Reflex zu wandern. Mit Hilfe eindimensionaler Scans (oder visuell auf dem integrierten Leuchtschirm des SPA-LEED) muß verfolgt werden, bis zu welcher Position der Reflex wandert. Ziel ist die Einstellung der Elektronenenergie so, daß sie der nächsten in-Phase Bedingung für Elektronen entspricht (z.B. der (0,0,12) Bragg Reflex für Silizium (001)). Mit Hilfe des Manipulators wird der Reflex mechanisch zurück auf das Channeltron gedreht.

Wird die Elektronenenergie im folgenden wieder abgesenkt, so beginnt der Reflex von Neuem zu wandern. Erneut muß die Positionsänderung verfolgt werden, bis die Elektronenenergie wieder der niedrigen in-Phase Bedingung entspricht. Der Reflex wird dann allerdings mit Hilfe von Ablenkspannungen am Oktopol zurück auf das Chan-

neltron geregelt. Diese Schritte, die in dem Flußdiagramm Abb. 2.5 zusammengefaßt sind, werden so lange wiederholt, bis die Reflexposition bei Variation der Elektronenenergie konstant bleibt. Weshalb dieser Algorithmus immer zum Ziel führt ist offensichtlich: Während langsame und schnelle Elektronen, bei niedriger und hoher in-Phase Bedingung gleich empfindlich auf Variationen der Probenposition reagieren, greift das Anlegen einer Offsetspannung die Flugbahn der langsamen Elektronen bei der niedrigen In-Phase deutlich stärker an.

Nach vollendeter Justage können automatisiert eindimensionale Scans in dem eingeregulierten Energiebereich aufgenommen werden.

Werden die angelegten Offsetspannungen an den Oktopolplatten nach dem ersten Justieren notiert und bei jedem weiteren Experiment als Startwerte wiederverwendet, so reduziert sich der experimentelle Aufwand auf ca. 2 bis 3 Zyklen und einen Zeitaufwand von wenigen Minuten. Hinzu kommt die benötigte Zeit zur Aufnahme der Scans, die je nach Energieabstufung und $k_{||}$ Auflösung zwischen wenigen Minuten und mehreren Stunden liegt.

2.3.2 Wirklich ein Bild des reziproken Raumes?

Es kann nicht deutlich genug betont werden, daß die nach dem beschriebenen Algorithmus automatisch generierten Bilder in dieser Arbeit keinen echten Abbildungen des reziproken Raumes entsprechen, sondern den reziproken Raum nur näherungsweise wiedergeben. Dies soll anhand von Abb. 2.6 verdeutlicht werden. Dort ist die Ewald Konstruktion der Oberfläche sowohl für ein SPA-LEED (a) als auch für ein optisches LEED (b) gezeigt. Durch die Festlegung auf einen festen Beugungswinkel von real 7° zwischen einfallender (\vec{k}_i) und gebeugter (\vec{k}_f) Elektronenwelle im Fall des SPA-LEED kommt es zu einer modifizierten Ewald Konstruktion im Unterschied zu einem herkömmlichen optischen LEED Instrument.

Jeder SPA-LEED-Scan im reziproken Raum folgt einem Kreisbogen um den (00) Bragg Punkt des reziproken Raumes. Der Radius des Kreisbogens wird hierbei durch die Länge des Streuvektors $\vec{k} = \vec{k}_f - \vec{k}_i$ bestimmt. Werden alle diese Kreisbogenscans mit einem Softwaretool [47] unter Vernachlässigung der eigentlichen Krümmung aneinandergesetzt, so ergibt sich keine exakte Reproduktion des reziproken Raumes, sondern nur eine näherungsweise Darstellung, entsprechend einer Taylor-Entwicklung erster Ordnung [48]. Der Fehler wird bestimmt durch die Abweichung des Kreisbogenscans von einem waagerechten Schnitt im reziproken Raum und ist für niedrige Elektronenenergien, wegen der großen Krümmung der Ewaldkugel, besonders groß. Ein großer

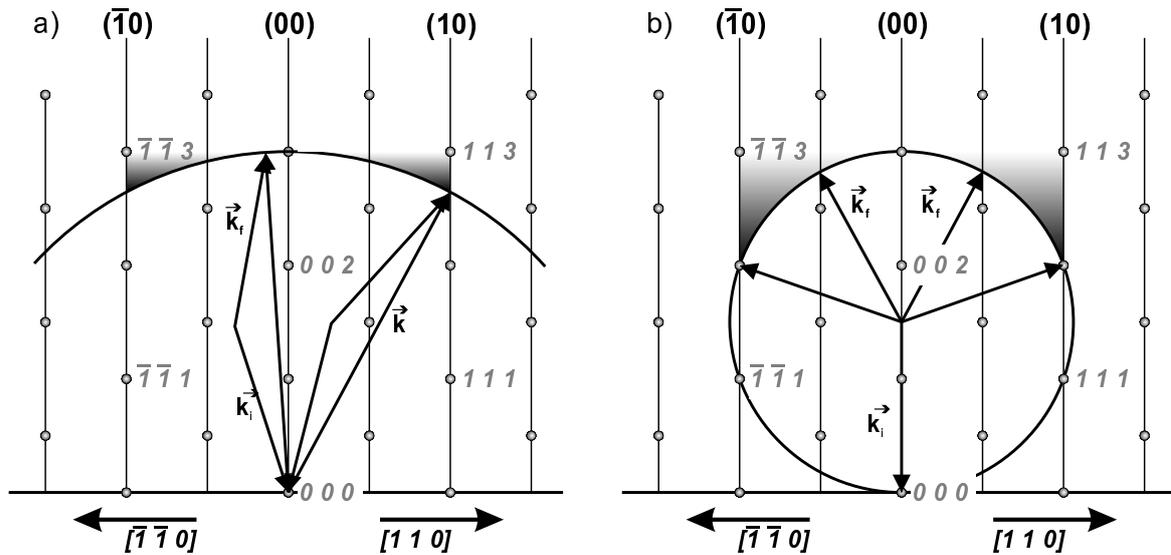
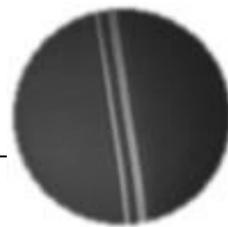


Abbildung 2.6: Ewald Konstruktion für (a) SPA-LEED und (b) optisches LEED. Der durch Vernachlässigung der Profilkrümmung entstehende Fehler ist unterlegt dargestellt.

Fehler entsteht auch in großer Entfernung von dem Zentrum des Scans, begründet durch zunehmende Abweichung der Ewaldkugel von einem horizontalen Schnitt. In Abb. 2.6 (a) ist für einen Scan bei Phase 0.75 ($E=11.6\text{eV}$) der k_{\parallel} abhängige Fehler unterlegt dargestellt. Bei allen in dieser Arbeit experimentell vermessenen Plots ist der reziproke Raum jedoch stets zwischen dem $(0,0,8)$ Reflex (Phase 2, $E=82.5\text{eV}$) und dem $(0,0,12)$ Reflex (Phase 3, $E=185.7$) aufgetragen. In diesem Energiebereich sind Fehler durch die Krümmung der Ewaldkugel vollständig vernachlässigbar.

Die getroffenen Aussagen sind jedoch nicht ohne Weiteres auf ein optisches LEED übertragbar, da die Krümmung der Ewaldkugel dort, prinzipbedingt, ungleich größer ist (b) als die Krümmung der SPA-LEED-Scans. Es ist daher zu erwarten, daß Abbildungen des reziproken Gitters, die aus einer Serie von CCD Aufnahmen des LEED Leuchtschirms erzeugt wurden, stark fehlerbehaftet sind, wenn nicht im Nachhinein die Krümmung korrigiert wird.

Das bisher einzige Verfahren, ein wirklich korrektes Abbild des reziproken Raumes zu erzeugen, stellt die Methode SPA-RHEED dar [49]. Durch die Verwendung von zwei Oktopolen für einfallenden und ausfallenden Elektronenstrahl ist es möglich, horizontale Schnitte hoher Qualität nahe des (000) Reflexes im reziproken Raum zu vermessen [50]. Bedingt durch die experimentellen Bedingungen eines RHEED gilt dies jedoch ausschließlich für den Bereich nahe der (00) Stange. Die nahezu fehlerfreie Abbildung des reziproken Raumes über eine gesamte Brillouin Zone hinweg ist bislang nur mit SPA-LEED möglich.



Kapitel 3

Die Silizium (001) Fläche

Silizium ist das zweite Element der $\overline{\text{IV}}$. Hauptgruppe des Periodensystems und besitzt die Elektronenkonfiguration $[\text{Ne}] + 3s^2 3p^2$. Im Kristallverbund findet eine sp^3 Hybridisierung der Valenzelektronen statt, die in vier gleichwertigen Bindungen einer Länge von 2.35\AA (bei RT) resultiert. Dies führt zu der bekannten Diamantstruktur mit einem Bindungswinkel von $109^\circ 28'$.

In diesem Kapitel soll die atomare Struktur der reinen Si(001) Fläche beschrieben werden. Ausgehend von der ebenen, nicht fehlgeneigten Fläche soll gezeigt werden, daß Verspannungen, bedingt durch die Geometrie der (2×1) Rekonstruktion, bei vicinalen Flächen zu Doppelstufenbildung führen können.

3.1 Verspannung der Oberfläche

Nach dem Brechen eines Silizium Kristalls besitzen die Atome der obersten Lage, abhängig von der Indizierung der Bruchfläche [51], nur noch zwei, bzw. drei Bindungspartner im Kristall, die übrigen sp^3 Hybridorbitale ragen aus dem Kristall heraus und bleiben ungesättigt. Diese sogenannten “dangling bonds” stellen einen instabilen Energiezustand der Oberfläche dar, weshalb in den meisten Fällen eine Rekonstruktion gebildet wird. Die Oberflächenatome verlassen ihre, durch die Volumenstruktur vorgegebenen Positionen, um Bindungen untereinander einzugehen und so die Oberflächenenergie zu minimieren. Die Mechanismen können auf wenige universelle Prinzipien reduziert werden und sind in der Literatur ausführlich beschrieben [52, 53].

Der lokalen Energieabsenkung durch die zusätzlichen Bindungen steht eine elastische Verspannungsenergie δE gegenüber. Diese hängt einerseits stark von der Bin-

KAPITEL 3. DIE SILIZIUM (001) FLÄCHE

Abstand $d\vec{r}_{ij}$ benachbarter Atome i und j von ihrem Gleichgewichtsabstand $|\vec{r}|$ ab, andererseits von kleinen Veränderungen des Bindungswinkels $d\Theta$ zwischen Paaren nächster Nachbarn (i, j) und (j, k) [54, 55].

$$\delta E = \frac{k_r}{2} \sum_{i,j} (d\vec{r}_{ij})^2 + \frac{k_\Theta \cdot r^2}{2} \sum_{i,j,k} (d\Theta_{ijk})^2 \quad (3.1)$$

Anhand der Gl. 3.1 wird deutlich, daß die Variation der Bindungslänge quadratisch mit der Elastizitätskonstante k_r in die Verspannung eingeht. Gleiches gilt auch für die Bindungswinkel, allerdings ist die Konstante k_Θ etwa 50-fach kleiner als k_r [54, 55, 56]. Wegen dieser Eigenschaft findet die Energieminimierung der Oberfläche vornehmlich über die Bindungswinkel und weniger über die Bindungslängen statt.

Die wichtigsten Parameter für die Detailstruktur einer Rekonstruktion stellen die Oberflächenorientierung, -reinheit und die Temperatur dar. Um die beobachteten Rekonstruktionen zu beschreiben, wird die von Wood eingeführte Notation verwendet [57].

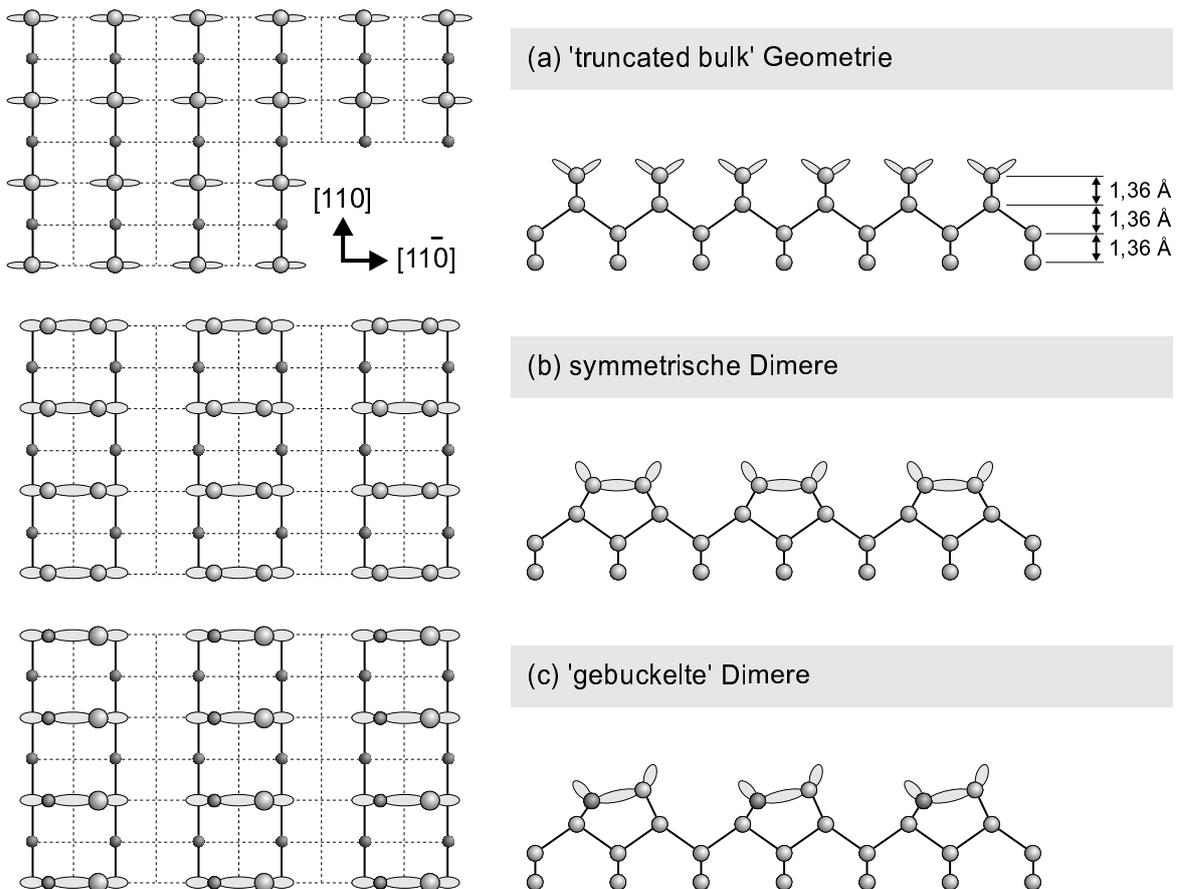


Abbildung 3.1: Seitenansicht und Aufsicht der Si(001) Oberfläche.



3.2 Rekonstruktionen der Si(001) Fläche

Die Volumenstruktur der Si(001) Fläche besteht aus einer quadratischen Anordnung von Atomen mit einem Abstand von 3.84\AA . Diese sogenannte “truncated bulk” Geometrie ist in Abb. 3.1 (a) gezeigt. In der Oberflächenebene stehen die Verbindungsvektoren eines beliebigen Atoms zu seinen nächsten Nachbarn senkrecht aufeinander und zeigen in die $[110]$ und $[\bar{1}\bar{1}0]$ Richtungen. Jedes Oberflächenatom ist mit zwei Orbitalen an das Substrat gebunden und besitzt zwei dangling bonds.

Seit 1959 ist bekannt [58], daß die Energieminimierung der Oberfläche in der Ausbildung einer Doppelbindung zwischen je zwei Atomen resultiert. Diese sogenannten Dimere sind aus einer Kombination von stark bindender σ und schwach bindender π Bindung zusammengesetzt [59]. Dies führt zu der bekannten Si(001) (2×1) Rekonstruktion.

Die durch die Bindungsgeometrie bedingte geometrische Anisotropie der (2×1) rekonstruierten Oberfläche, die in Abb. 3.1 (b) deutlich wird, nimmt starken Einfluß auf die Diffusionsgeschwindigkeit von Adatomen. STM–Untersuchungen haben gezeigt, daß die Mobilität von Si Adatomen entlang der Dimerreihen etwa 1000–fach größer ist als senkrecht dazu [60, 61].

Rekonstruktion	ΔE
p(1×1)	\uparrow 2eV
p(2×1) sym	\uparrow 0,2eV
p(2×1) asym	\uparrow 0,02eV
p(2×2)	\uparrow 0,002eV
c(4×2)	\uparrow 0,002eV

Tabelle 3.1: Energieunterschiede verschiedener Rekonstruktionen der (001) Oberfläche, nach Ref. [62]. Symmetrische und asymmetrische Dimere können aufgrund ihrer geringen Energiedifferenz koexistieren. Die $p(2 \times 2)$ und $c(4 \times 2)$ Struktur werden nur bei tiefen Temperaturen beobachtet.

Experimentell ist auf wohlorientierten Si(001) Flächen keine reine (2×1) Rekonstruktion zu beobachten, sondern es tritt gleichzeitig immer eine um 90° gedrehte (1×2) Rekonstruktionsdomäne auf (siehe z.B. das LEED Bild in Abb. 4.4 (a)). Dies ist in der Symmetrie des Diamantgitters begründet. Wird in der “truncated bulk” Struktur der (001) Ebene eine Atomlage entfernt, so ist die Bindungsgeometrie der darunterliegenden Atome um 90° gedreht. Auf der realen, rekonstruierten Oberfläche führt dies zu einer Drehung der Dimerreihen um 90° an jeder atomaren Einfachstufe.

Zusätzlich zu der Dimerbildung in Abb. 3.1 (b) können die beiden an der Dimerisierung beteiligten Atome “buckeln” und unterschiedliche Höhen über der Oberfläche einneh-

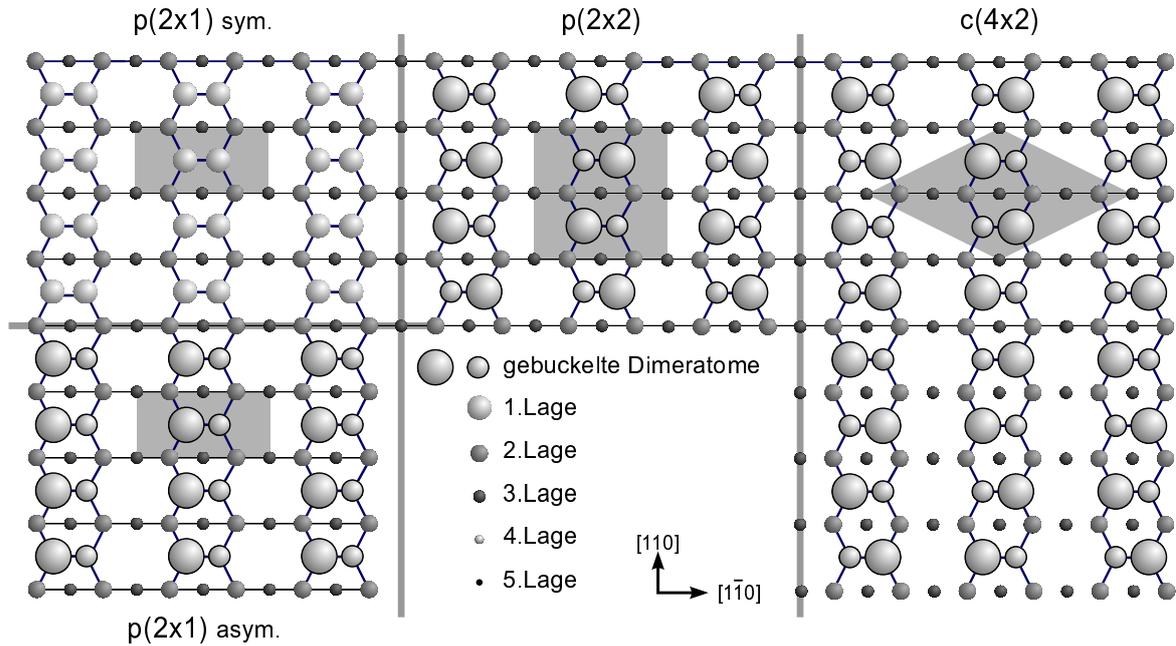


Abbildung 3.2: Rekonstruktionen der reinen Silizium Fläche

men (c). Dies bedeutet gegenüber der (2×1) Rekonstruktion einen zusätzlichen Energiegewinn von 0.9eV pro Atom [62]. Die Kombination der beiden Strukturelemente (b) und (c) ermöglicht die Konstruktion von vier unterschiedlichen Rekonstruktionen, die in Abb. 3.2 skizziert sind. Aus Tabelle 3.1 kann abgelesen werden, daß die Energiedifferenzen zwischen den Rekonstruktionen mit und ohne ausgeprägtem Dimer buckling $p(2 \times 1)$ asym. und $p(2 \times 1)$ sym. jedoch so gering sind, daß beide Strukturen auf der Oberfläche koexistieren können.

3.3 Gestufte Si(001) Flächen

Wird der Kristall nicht exakt in einer Hauptsymmetrieebene geschnitten sondern um den Winkel Δ fehlorientiert, so entstehen gestufte, sogenannte vicinale Flächen.

Das Verhalten vicinaler Flächen kann, je nach Material und Oberflächenorientierung stark unterschiedlich sein. Beispielsweise zeigen vicinale Germanium (113) Flächen eine thermische Facettierung mit (113) und (117) Flächen [64], fehlgeneigte Si(111) Flächen bilden bei Stromdurchfluß je nach Polung der angelegten Spannung Facetten (Stromrichtung aufwärts) oder gleichmäßige Stufenfolgen (Stromrichtung abwärts) [18]. Das genaue Verhalten einer speziellen Oberfläche ist durch die orientierungsabhängige freie Oberflächenenergie $\gamma(\Theta)$ gegeben und kann bei Kenntnis dieser Funktion mit Hilfe der Wulff-Konstruktion [65] bestimmt werden.

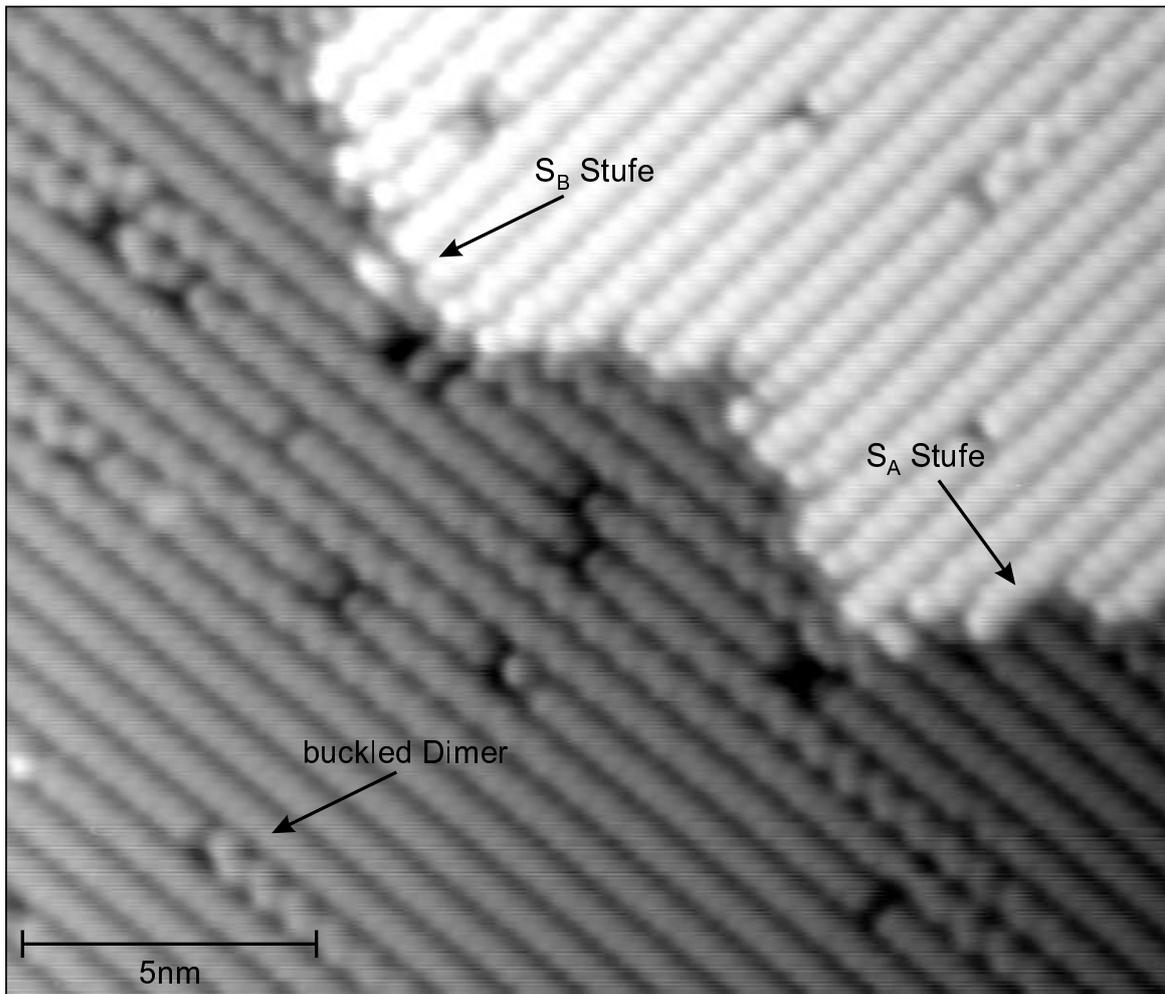


Abbildung 3.3: STM Bild einer wohlorientierten Si(001) Oberfläche mit zwei Terrassen. Die (2×1) Rekonstruktion ist deutlich zu erkennen. An Defekten werden gebuckelte Dimere sichtbar.

Die in $[110]$ Richtung fehlgeneigte Silizium (001) Fläche zeigt, abhängig vom Betrag des Fehlwinkels, ein unterschiedliches Verhalten. Dies ist in der Stufenmorphologie der Oberfläche begründet.

In Abb. 3.4 sind drei Si(001) Terrassen abgebildet, die durch Einfach- und Doppelstufen getrennt sind. Die obere und untere Terrasse zeigen eine (1×2) , die mittlere zeigt eine (2×1) Rekonstruktion. Die Orientierung der Dimere ist nach jeder Einfachstufe um 90° gedreht, wie schon im vorigen Abschnitt dargestellt. Wegen der Anisotropie der (2×1) Rekonstruktion müssen auf der Oberfläche zwei unterschiedliche Typen von Stufen existieren, namentlich Typ-A Stufen, die parallel zu den Dimeren der oberen Terrasse verlaufen und Typ-B Stufen, die senkrecht darauf stehen. Beide Typen treten als Einfachstufen (S_A und S_B) und Doppelstufen (D_A und D_B) auf. Die Nomenklatur

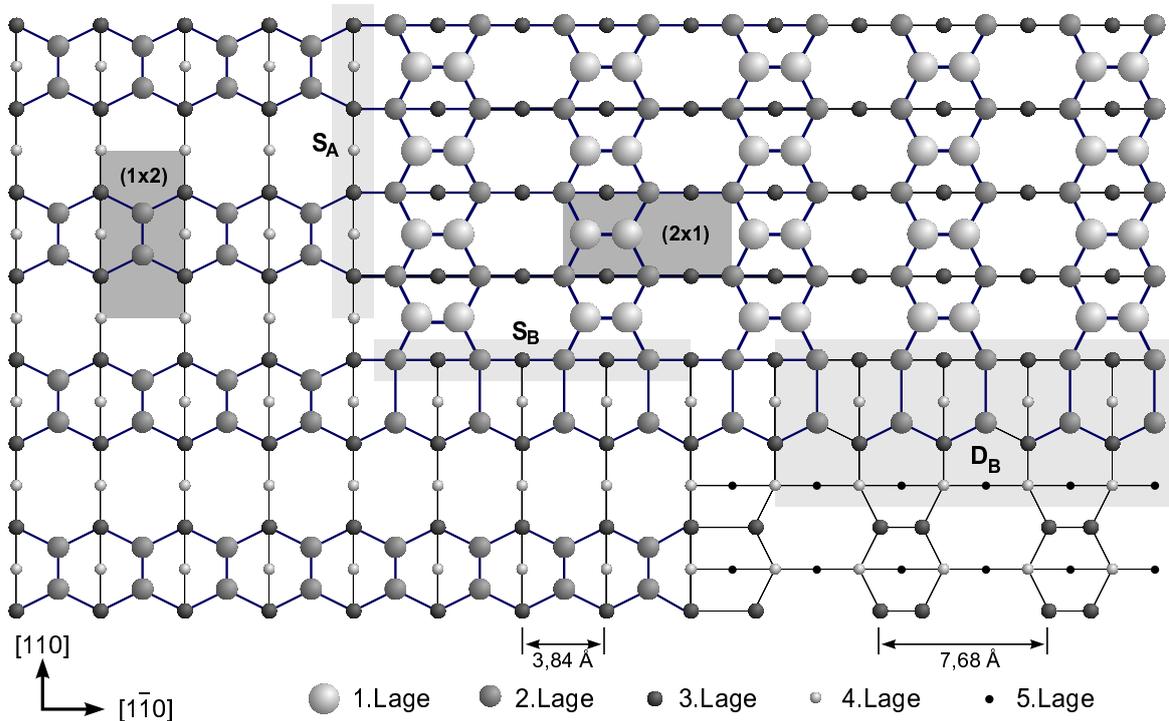


Abbildung 3.4: Stufenbezeichnungen der Si(001) Oberfläche nach Chadi [63]

geht auf Arbeiten von Chadi zurück [63], der auch die Bildungsenergien der Stufen berechnet hat. Seiner Arbeit zufolge ist die Energie einer D_B Stufe mit 0.05eV/Atom deutlich geringer als diejenige einer D_A Stufe (0.54eV/Atom) oder der Folge zweier aufeinanderfolgender Einfachstufen S_A und S_B (0.16eV/Atom).

Die Silizium (001) Oberfläche sollte, dieser Argumentation folgend, ausschließlich D_B Doppelstufen aufweisen, und es sollte nur eine einzige Rotationsdomäne der (2 × 1) Rekonstruktion auf der Oberfläche vorhanden sein (single domain). Für hohe Fehlwinkel trifft dies zu, Experimente auf linsenförmigen Proben zeigen jedoch einen kontinuierlichen Übergang zu Einfachstufen für Fehlwinkel zwischen 5° und 1.5° [66]. Dieser Übergang ist nicht entropiebedingt [67], da keine Temperaturabhängigkeit existiert.

Vielmehr scheinen rekonstruktionsbedingte Verspannungen starken Einfluß auf die Morphologie der Oberfläche zu nehmen [68, 69]. Die Dimerisierung der Oberfläche induziert demnach eine anisotrope Verspannung [70, 71, 72], die logarithmisch mit der Terrassenlänge ansteigt [73] und durch eine elastische Verzerrung der Stufenkanten abgebaut werden muß. Dieser Mechanismus funktioniert besonders effektiv an Einfachstufen [74], da sich dort stets zwei um 90° gedrehte Dimerorientierungen begegnen. So kann die Zugspannung auf der einen Terrasse durch eine Druckspannung auf der anderen ausgeglichen werden.

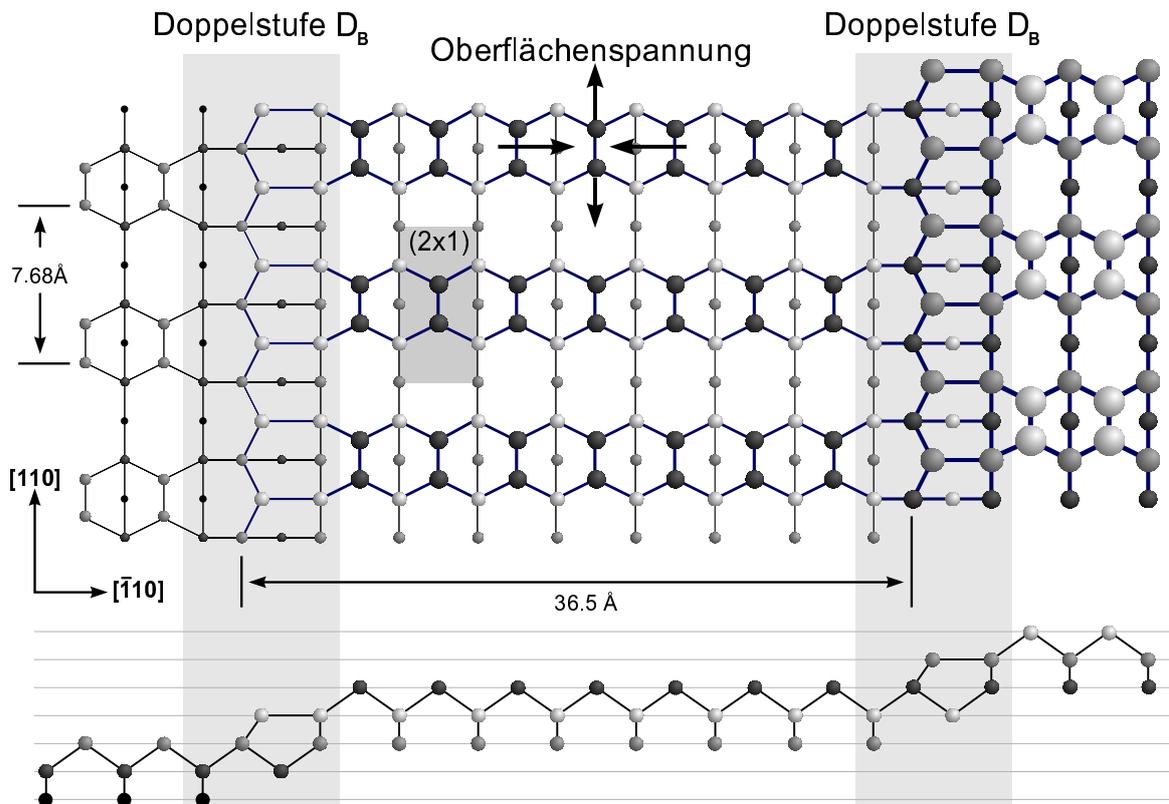
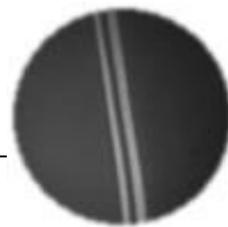


Abbildung 3.5: Atomare Struktur der reinen Si(001) 4.2° -Fläche in Auf- und Seitenansicht. Die mittlere Terrassenbreite von 36.5\AA entspricht sieben Gitterabständen und einer D_B Stufe.

Der von Chadi berechnete Energiegewinn durch die Bildung von D_B Doppelstufen stellt einen konkurrierenden Prozeß zur Bildung von Einfachstufenfolgen $S_A + S_B$ zum Abbau der Verspannung dar. Bei hohen Fehlwinkeln liegen kleine Terrassen vor, der Verspannungsterm ist nahezu vernachlässigbar klein, und die Morphologie der Oberfläche wird durch Doppelstufenbildung bestimmt. Bei kleinen Fehlwinkeln dominiert dagegen die elastische Verspannung, da sie mit dem Logarithmus der Terrassenlänge anwächst.

Neben anderen Fehlneigungen wurden in dieser Arbeit hauptsächlich um 4.2° in $[110]$ Richtung fehlgeneigte Wafer verwendet. Eine Skizze der Oberflächenmorphologie ist in Abb. 3.5 gezeigt. Die Oberfläche besteht aus ebenen Terrassen einer Breite von 9 Atomen, die Dimerbindungen senkrecht zu den Stufenkanten ausbilden. Die Terrassen sind durch D_B Doppelstufen getrennt. Das Vorherrschen von Doppelstufen bei diesem Fehlwinkel wurde bereits in anderen Arbeiten berichtet [67, 75, 76, 77, 78] und stimmt mit den theoretischen Vorhersagen überein [63, 79].



Kapitel 4

Analyse mit Elektronenbeugung

Die Analyse der goldinduzierten Facettierung fehlgeneigter Oberflächen wurde sehr ausführlich mit einer Vielzahl von Methoden untersucht. Um eine übersichtliche und geschlossene Darstellung des Prozesses geben zu können ist diese Arbeit grob methodisch gegliedert. Viele entscheidende Untersuchungen wurden mit hochauflösender Elektronenbeugung durchgeführt (SPA-LEED), weshalb sich diese Methode anbietet, sowohl einen Überblick über die Kinetik der Facettierung zu geben, als auch Detailprobleme zu diskutieren. Dabei aufgeworfene Fragestellungen, die nicht allein mit Elektronenbeugung zu beantworten sind, sollen hier motiviert werden, bevor in späteren Kapiteln mit Hilfe anderer Methoden Lösungen angegeben werden.

4.1 Analyse der Ausgangsfläche

Nach Durchführung der in Kap. 1.3 beschriebenen Probenpräparation stellt sich die Probenoberfläche der Elektronenbeugung wie in Abb. 4.1 gezeigt dar. Der Vergleich des Beugungsbildes mit bekannten Bildern wohlorientierter Si(001) Flächen zeigt einige deutliche Unterschiede. Zunächst sind die Hauptstruktureflecke allesamt aufgespalten. Dieser Aufspaltung liegt eine regelmäßige Stufenfolge der Substratoberfläche zugrunde, die zusätzlich zur Gitterperiodizität, von der die Hauptstruktureflecke erzeugt werden, eine weitere charakteristische Länge in das Beugungsbild einbringt. Anhand der Aufspaltung kann auf einen Stufenabstand von 40\AA geschlossen werden. Dieser Wert allein beschreibt den Fehlneigungswinkel der Oberfläche jedoch nicht korrekt, scheinbar steht er sogar im Widerspruch zu dem bekannten Fehlwinkel von 4.2° , der einen

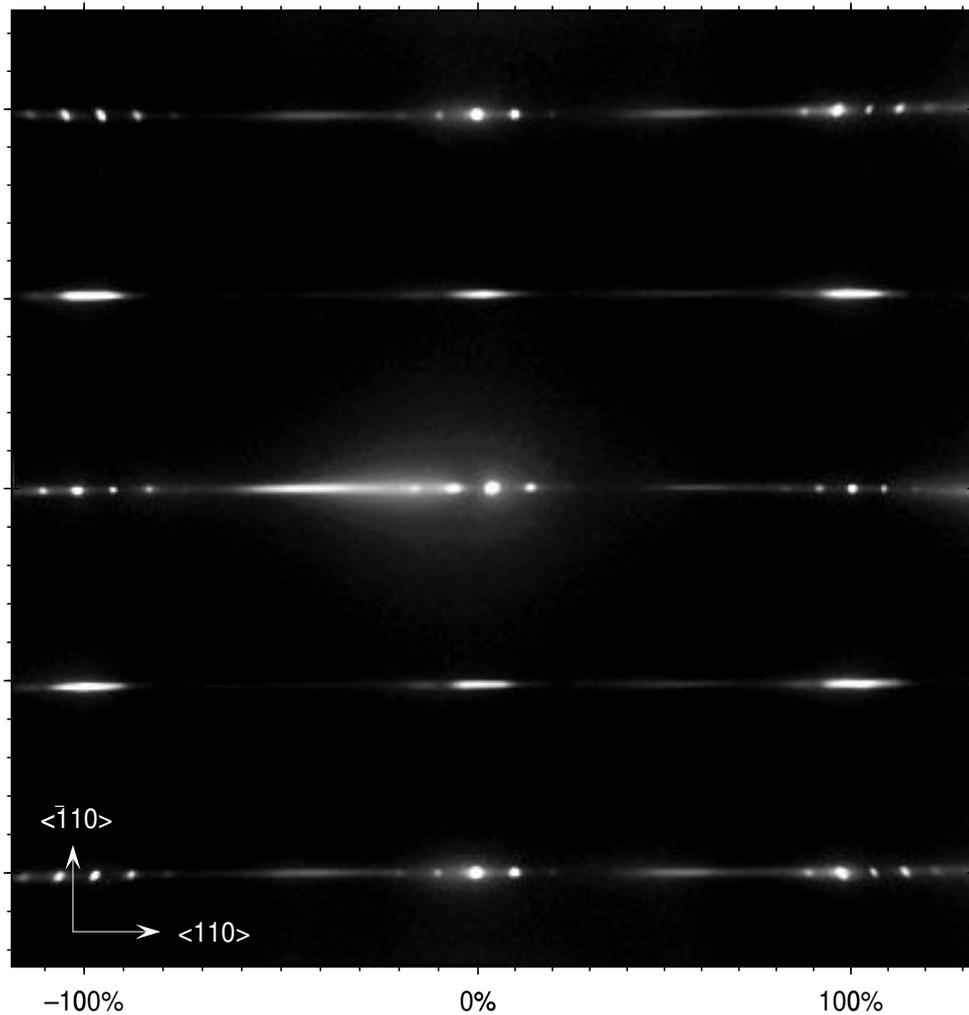


Abbildung 4.1: SPA-LEED Bild der Ausgangsfläche. Die Hauptstruktureflecke sind aufgrund der regelmäßigen Doppelstufenfolge aufgespalten, das Vorhandensein nur einer Rekonstruktionsdomäne beweist die Existenz von Doppelstufen.

Stufenabstand von nur 20\AA erwarten ließe. Wie Abb. 4.1 jedoch zeigt, fehlt eine Rotationsdomäne der bekannten Si(001) (2×1) Rekonstruktion nahezu völlig. Aus der bekannten Geometrie der Si(001) Fläche, bei der die Orientierung der Rekonstruktionsdomäne nach jeder Einfachstufe um 90° gedreht ist, kann sofort auf das ausschließliche Vorhandensein von Doppelstufen auf der Oberfläche geschlossen werden, schwach sichtbare Reflexe an den erwarteten (2×1) Positionen können als Defekte dieser ansonsten perfekten Doppelstufenfolge angesehen werden.

Ein weitergehendes Verfahren der Charakterisierung von Oberflächen mit Elektronenbeugung besteht darin, möglichst viele eindimensionale Profile (1d-Scans) bei verschiedenen Elektronenenergien aufzunehmen und daraus einen Schnitt des $k_\perp - k_\parallel$ Raumes

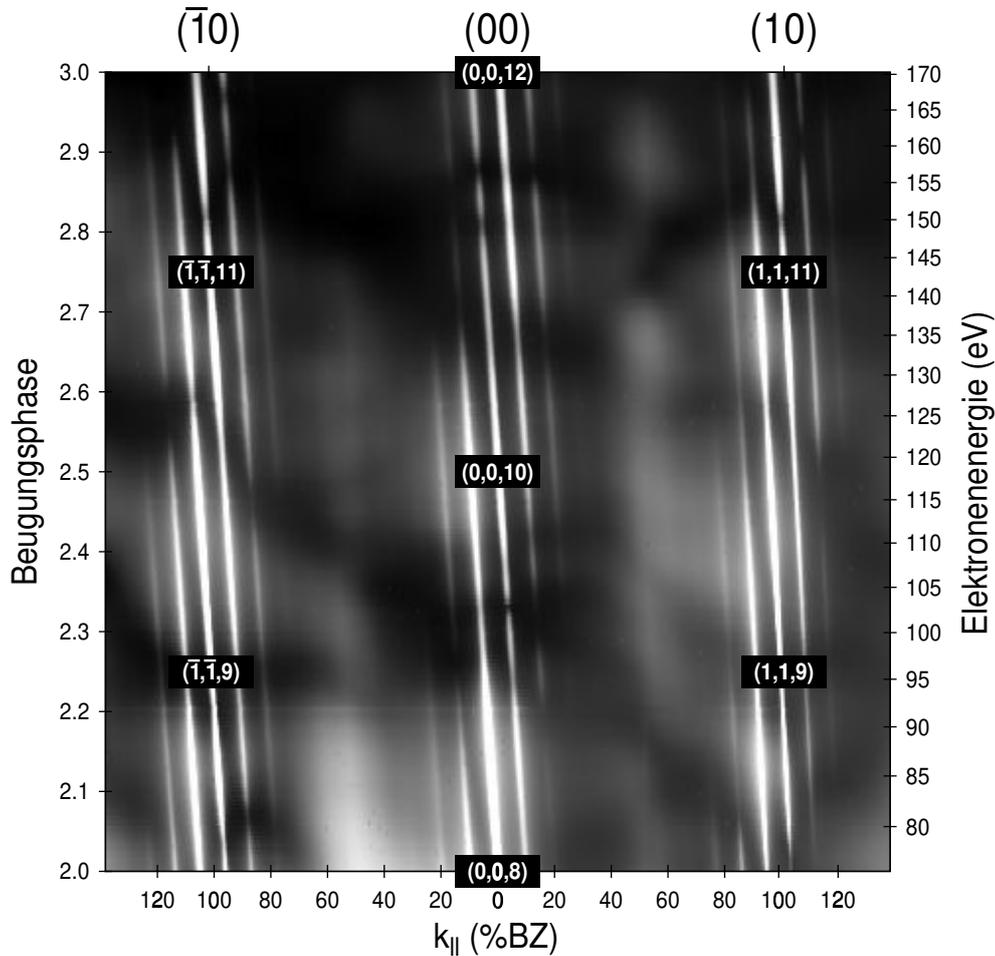


Abbildung 4.2: $k_{\perp} - k_{\parallel}$ Schnitt des reziproken Raumes der Si(001) 4° Fläche. Aus der Neigung der Gitterstangen relativ zur $\langle 001 \rangle$ Richtung bestimmt sich der Fehlneigungswinkel.

zu generieren, wie in Abschnitt 2.3 beschrieben. In Abb. 4.2 wurde aus insgesamt 225 Beugungsprofilen ein Schnitt des reziproken Raumes in der durch die Vektoren $\langle 001 \rangle$ und $\langle 110 \rangle$ aufgespannten Ebene generiert.

Auf der rechten Y-Achse in Abb. 4.2 ist die im Experiment eingestellte Elektronenenergie aufgetragen, auf der linken Y-Achse die dazugehörige Beugungsphase, bezogen auf die Si(001) Stufenhöhe von 1.36 \AA . Die in das Bild eingetragenen Werte geben die Miller Indizes der Reflexe an, wie sie in der Röntgenbeugung verwendet werden. Die typischerweise “verbotenen” Indizes, wie beispielsweise der (0,0,10) Reflex sind im Fall einer doppelt gestuften Fläche erlaubt. Die Aufspaltung der Hauptstruktureflexe in bis zu fünf Reflexe ist deutlich zu erkennen. Dies zeigt die extreme Regelmäßigkeit und die langreichweitige Ordnung der Doppelstufenfolge über einen Bereich von 1000 \AA (Transferweite des SPA-LEED). Alle reziproken Gitterstangen sind gegenüber der (001)-Richtung geneigt. Wird der reziproke Raum mit einem korrekten Seiten-

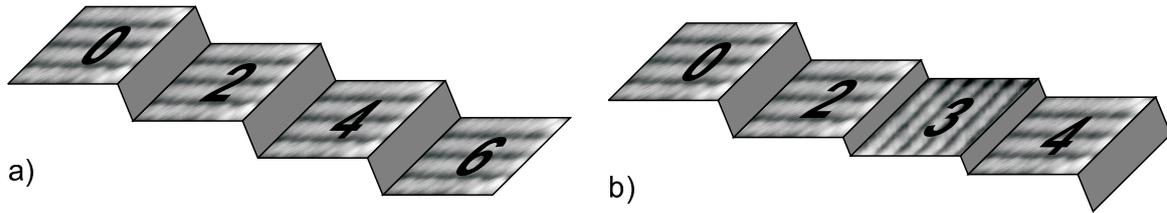


Abbildung 4.3: Verschiedene Folgen von Doppel- und Einfachstufen mit Indizierung der Terrassen. (a) perfekte Doppelstufenfolge mit ausschließlich geradzahlig indizierten Terrassen (b) eine Einfachstufe mit ungeradzahligem Index wird sofort von einer zweiten Stufe kompensiert.

Höhen Verhältnis aufgetragen (so wie in Abb. 4.2), dann kann die Fehlneigung der Ausgangsfläche direkt mit einem Geodreieck bestimmt werden, da sie genau dem Neigungswinkel der Stangen der Oberfläche mit der nicht sichtbaren (001) Gitterstange entspricht, die die Braggpunkte (0,0,8) und (0,0,12) verbindet. In dem vorliegenden Fall ergibt sich, wie erwartet, ein Winkel von 4.2° .

4.1.1 Störungen der Doppelstufenfolge

Störungen in der Doppelstufenfolge der Substratoberfläche können während der Adsorption von Au wesentlichen Einfluß auf den Facettierungsprozeß nehmen. Mit “Störung” ist hierbei das Auftreten von Einfachstufen gemeint. Während die Bezeichnung “Einfachstufe” im Fall des reinen vicinalen Substrates eindeutig ist, gestaltet sich die Nomenklatur im Fall einer facettierten Fläche mit Stufenbündeln von beispielsweise 600 Stufen oder 601 Stufen unübersichtlicher. Um diese Schwierigkeit zu umgehen, sollen zunächst einige Vereinbarungen über die Nomenklatur getroffen werden, bevor auf die Details der Stufenfolgen verschieden fehlgeneigter Flächen eingegangen wird.

Gegeben sei eine 4° fehlgeneigte, perfekt doppelt gestufte Siliziumoberfläche wie in Abb. 4.3(a) skizziert. Ausgehend von der höchstgelegenen Terrasse seien die Terrassen absteigend entsprechend der Zahl der zwischen ihnen liegenden Stufen indiziert, d.h. für eine Doppelstufenfolge ergibt sich die Zahlenfolge 0,2,4,6,8,... Nun soll eine Einfachstufe eingebaut werden. Es könnte sich dann beispielsweise die Folge 0,2,3,4,6,... ergeben (b), d.h. es tritt eine Einfachstufe auf, die sofort von einer weiteren Stufe kompensiert wird. Die Nomenklatur ist so gewählt, daß Terrassen mit der Rekonstruktionsrichtung entsprechend der Doppelstufenfolge der Ausgangsfläche mit einem geradzahligem Index versehen sind (“geradzahlige Terrassen”), Terrassen bei denen die Rekonstruktion aufgrund einer Einfachstufe um 90° gedreht ist, einen ungeradzahligem Index tragen (“ungeradzahlige Terrassen”).

4.1. ANALYSE DER AUSGANGSFLÄCHE

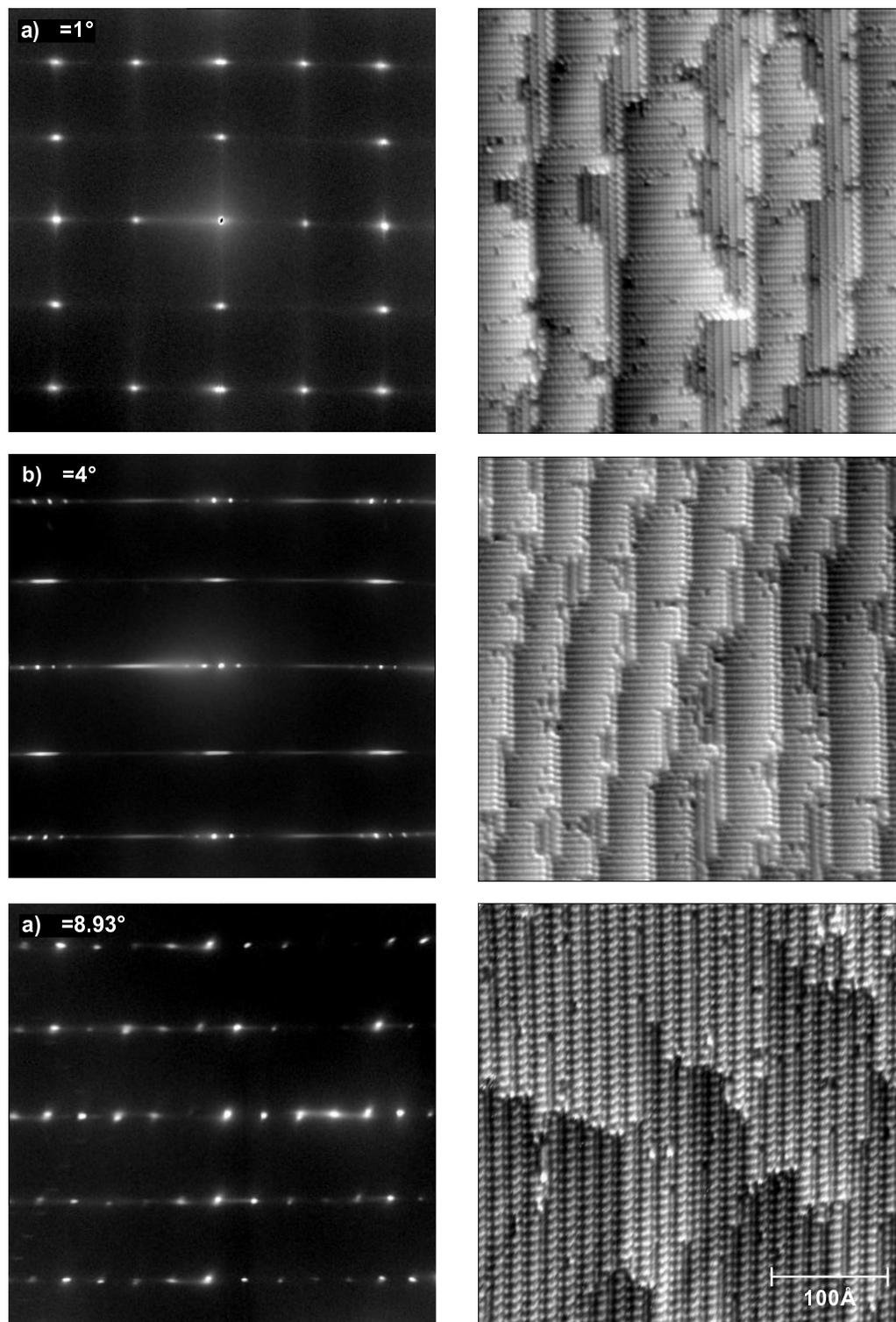


Abbildung 4.4: SPA-LEED und STM Bilder reiner vicinaler Si(001) Flächen mit unterschiedlichem Fehlneigungswinkel Δ . (a) $\Delta = 1^\circ$, (b) $\Delta = 4^\circ$, (c) $\Delta = 8.93^\circ$: Si(119). Die horizontal verlaufenden Stufenkanten sind in einer azimuthalen Fehlneigung der Proben begründet. Alle SPA-LEED Bilder wurden bei einer Elektronenenergie von 85eV aufgenommen.

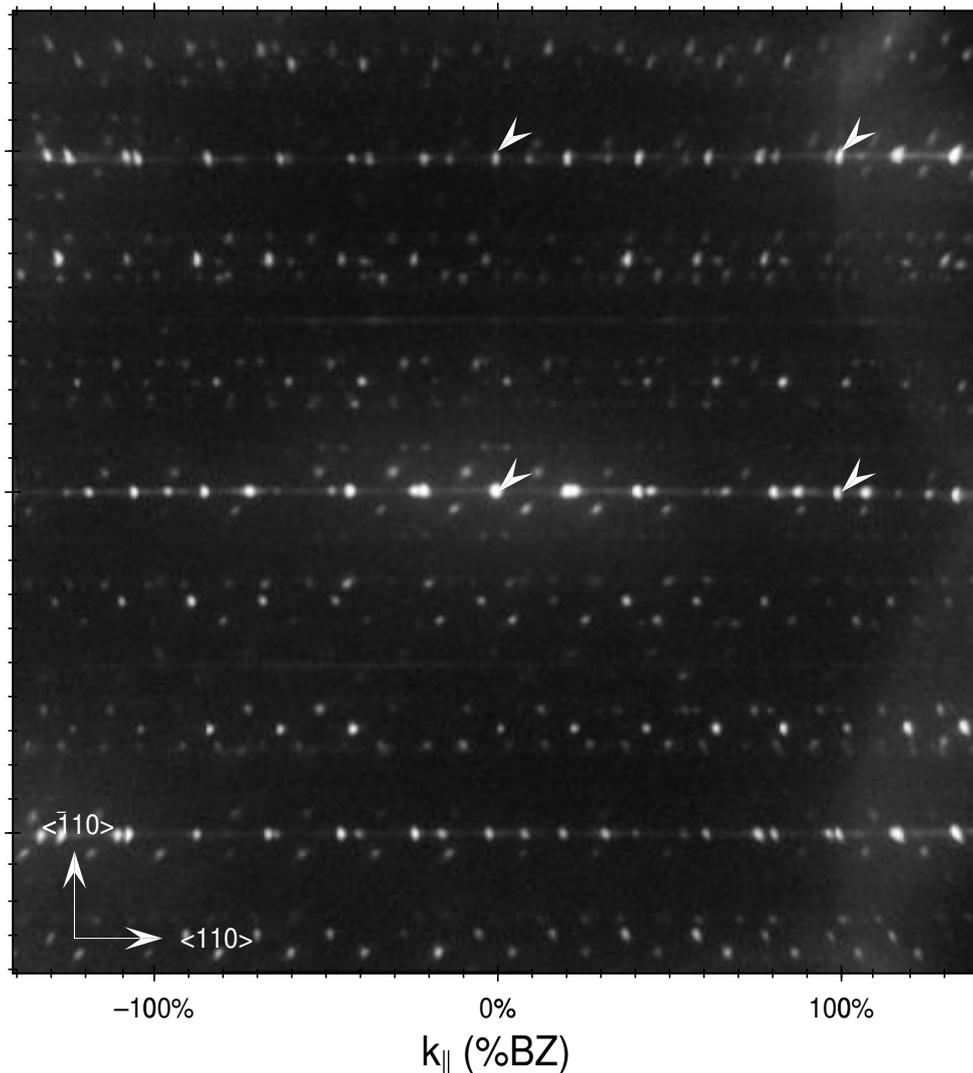


Abbildung 4.5: SPA-LEED Bild einer durch Goldadsorption facettierten $\text{Si}(001)4^\circ$ Fläche. Die Elektronenenergie beträgt 85eV. Es sind jeweils 100% BZ durch Pfeile markiert.

Eine kontinuierliche Stufenfolge ungeradzahliger Terrassen wie 0,1,3,5,... ist nicht vorstellbar, da die geradzahligen Terrassen aufgrund einer in der Dimerisierung begründeten Verspannung stark bevorzugt sind [69, 80].

Die genannten Störungen in der Doppelstufenfolge treten bei vicinalen Flächen, je nach Grad ihrer Fehlneigung, mehr oder weniger häufig auf. Experimente mit linsenförmig geschliffenen Proben zeigen einen kontinuierlichen Übergang von Doppel- zu Einfachstufen in dem Bereich von 5° bis 1.5° Fehlneigung [66, 67]. Die Tendenz dieses Ergebnisses wurde in Abb. 4.4 für drei Neigungswinkel durch STM Untersuchungen überprüft.

Die 1° fehlgeneigte Fläche (a) zeigt eine unregelmäßige Folge von Einfach- und Dop-



pelstufen. Die Flächenanteile von geradzahigen und ungeradzahigen Terrassen sind nahezu gleich groß. Im Beugungsbild sind daher erwartungsgemäß beide Rotationsdomänen der (2×1) Rekonstruktion enthalten.

Bei 4° Fehlneigung (b) ist bereits eine deutliche Tendenz zur Doppelstufenbildung zu erkennen. Die Flächenanteile der ungeradzahigen Terrassen sind so gering, daß im Beugungsbild die Intensitäten der zu dieser Rotationsdomäne gehörigen Reflexe kaum beobachtet werden können.

Bei sehr hohen Neigungswinkeln, hier am Beispiel einer (119) Fläche, die um 8.93° gegenüber der (001) Fläche geneigt ist, treten ausschließlich Doppelstufen auf, die extrem dicht beieinanderliegen. Die Aufspaltung der Hauptstrukturreflexe im SPA-LEED ist so groß, daß Teile der aufgespaltenen (00) und (10) Reflexe überlappen. So entsteht eine ununterbrochene Reihe von Reflexen. Im Gegensatz zu Flächen mit geringerer Fehlneigung sind im Fall der (119) Fläche auch die Überstrukturreflexe aufgespalten. In der (2×1) Rekonstruktion tritt nach jeder Doppelstufe eine Verschiebung der Dimerposition um einen Gitterplatz auf (vergleiche Abb. 3.5). Die Richtung dieser Verschiebung ist typischerweise unkorreliert, d.h. nach jeder Doppelstufe gibt es zwei Möglichkeiten für die Anordnung der Dimere auf der neuen Terrasse. Im Fall der (119) Fläche ist aufgrund der extrem kleinen Terrassen eine Wechselwirkung über mehrere Stufenkanten hinweg möglich, die zu einer Ordnung der Verschiebung und im SPA-LEED zur Aufspaltung der Überstrukturreflexe führt.

4.2 Analyse des Endzustandes

Nachdem im vorigen Abschnitt die Struktur der Ausgangsfläche beschrieben wurde, soll hier auf die Morphologie des Endzustandes vorgegriffen werden, bevor in Abschnitt 4.3 die Kinetik der Facettierung untersucht wird. In Abb. 4.5 ist das Beugungsbild einer vicinalen Si(001) 4° Fläche nach der Adsorption von Au bei 860°C gezeigt. Die Markierungen geben jeweils 100% der Si(001) Oberflächen Brillouin-Zone an. Die zunächst unübersichtliche Anzahl von Reflexen zerfällt in zwei Gruppen: Facetten- und Terrassenreflexe.

Ein erster Versuch zur Erklärung des Beugungsbildes in Abb. 4.5 wurde bereits in der Dissertation von A. Meier [23] vorgenommen. Während die dort diskutierte Anordnung der reziproken Einheitszellen mit LEEM bestätigt werden konnte (Kapitel 8.2.2), muß das vorgeschlagene Strukturmodell für die (001) Terrassen aufgrund der STM Untersuchungen in Kapitel 6.1 verworfen werden.

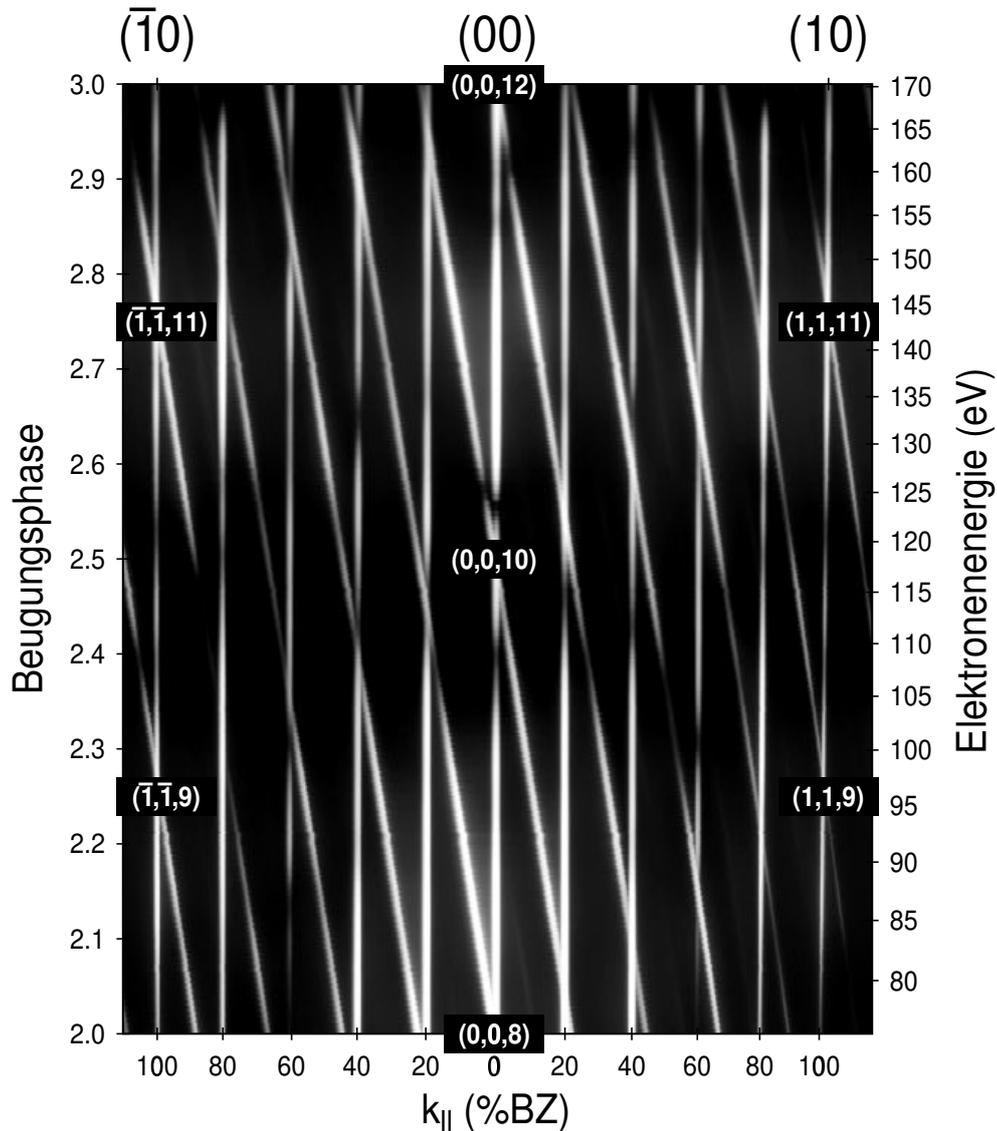


Abbildung 4.6: $k_{\perp} - k_{\parallel}$ Schnitt des reziproken Raumes der Oberfläche in Abb. 4.5. Neben dem “Wald” der (001) Gitterstangen sind zusätzlich um 8.93° geneigte (119) Gitterstangen zu beobachten.

4.2.1 Facettenreflexe

Zur Bestimmung der Facettenrichtung wurde in Analogie zu Abb. 4.2 erneut eine Serie von eindimensionalen Schnitten in den reziproken Raum gelegt. Das Ergebnis eines Adsorptionsexperimentes bei 860°C ist in Abb. 4.6 gezeigt. Der Ausschnitt des reziproken Raumes ist in k_{\perp} Richtung äquivalent zu Abb. 4.2, in k_{\parallel} Richtung ist der gezeigte Bereich etwas kleiner. Im Gegensatz zu der Ausgangsfläche sind hier stark ausgeprägte (001) Gitterstangen zu erkennen, die in Abb. 4.6 vertikal verlaufen. Die zu diesen Stangen gehörigen Reflexe sind sehr scharf und intensiv, da die (001) Terrassen



groß und extrem gut geordnet sind. In (110) Richtung werden in der Brillouin Zone 4 Stangen einer Rekonstruktion auf den Terrassen beobachtet.

Zusätzlich zu dem Stangensystem der (001) Terrassen werden um 8.93° geneigte Stangen beobachtet. Die Reflexe dieser Stangen sind ebenfalls sehr scharf und intensiv, sie sind sehr großen und gut geordneten (119) Facetten zuzuordnen.

Anhand von Beugungsbildern bei verschiedenen Elektronenenergien ist es leicht möglich, die durch den reziproken Raum wandernden Facettenreflexe von stationären Terrassenreflexen zu trennen. Auf diese Weise wurde die Rekonstruktion auf den (119) Facetten bereits in früheren Arbeiten zu $c \begin{pmatrix} 4 & 0 \\ 2 & 1 \end{pmatrix}$ bestimmt [23, 81].

4.2.2 Die (5×3.2) Rekonstruktion

Nach Separation der Facettenreflexe gestaltet sich die Analyse der verbleibenden Terrassenreflexe schwierig, da die Vielzahl von Reflexen nicht in allen Richtungen einer offensichtlichen periodischen Anordnung folgt. In Abb. 4.5 ist in der Waagerechten, entsprechend der (110) Richtung, eine fünffache Periodizität durch Reflexe bei 20% BZ und Vielfachen davon klar erkennbar. In der Senkrechten, der $(\bar{1}10)$ Richtung kann keine Regelmäßigkeit gefunden werden. Eine Beschreibung der Struktur kann unter Annahme einer inkommensurablen Einheitszelle erfolgen.

In Abb. 4.7 (a) ist eine Einheitszelle eingezeichnet, die in (110) Richtung eine Breite von 20% BZ und in $(\bar{1}10)$ Richtung eine Länge von 31.25% BZ besitzt sowie um 5.7° geschert ist. Nach Aufhängen der auf diese Weise generierten Zelle am (00) Reflex und periodischer Fortsetzung wird deutlich, daß die Reflexe erster Ordnung bei 100% BZ in (110) Richtung nicht erreichbar sind: $100\% \neq 93.75\% = 3 \times 31.25\%$. Hier offenbart sich die Inkommensurabilität der konstruierten Einheitszelle. Zusätzlich zu dem Netz von Einheitszellen ausgehend vom (00) Reflex müssen daher weitere Netze eingeführt werden, die an Substratreflexen höherer Ordnung aufgehängt werden. Dies ist in Abb. 4.7 (b) skizziert und erklärt die Hälfte der beobachteten Reflexe im Beugungsbild. Die restlichen Reflexe können mit einer identischen Argumentation beschrieben werden, nur muß die Einheitszelle um -5.7° geschert werden, d.h. es wird von dem zusätzlichen Auftreten einer Spiegeldomäne ausgegangen. Die Reflexintensitäten beider Domänen sind oft stark unterschiedlich, d.h. eine Domäne ist auf dem beobachteten Bereich der Oberfläche häufiger vertreten, als die andere. In Abb. 4.5 trifft dies z.B. für die Domäne der nach rechts gescherten Zelle zu. Als Nomenklatur für diese Struktur soll im folgenden die Bezeichnung “ (5×3.2) ” verwendet werden. Eine Bestätigung des vorgestellten Modells für die Konstruktion der Einheitszelle anhand von LEEM Un-

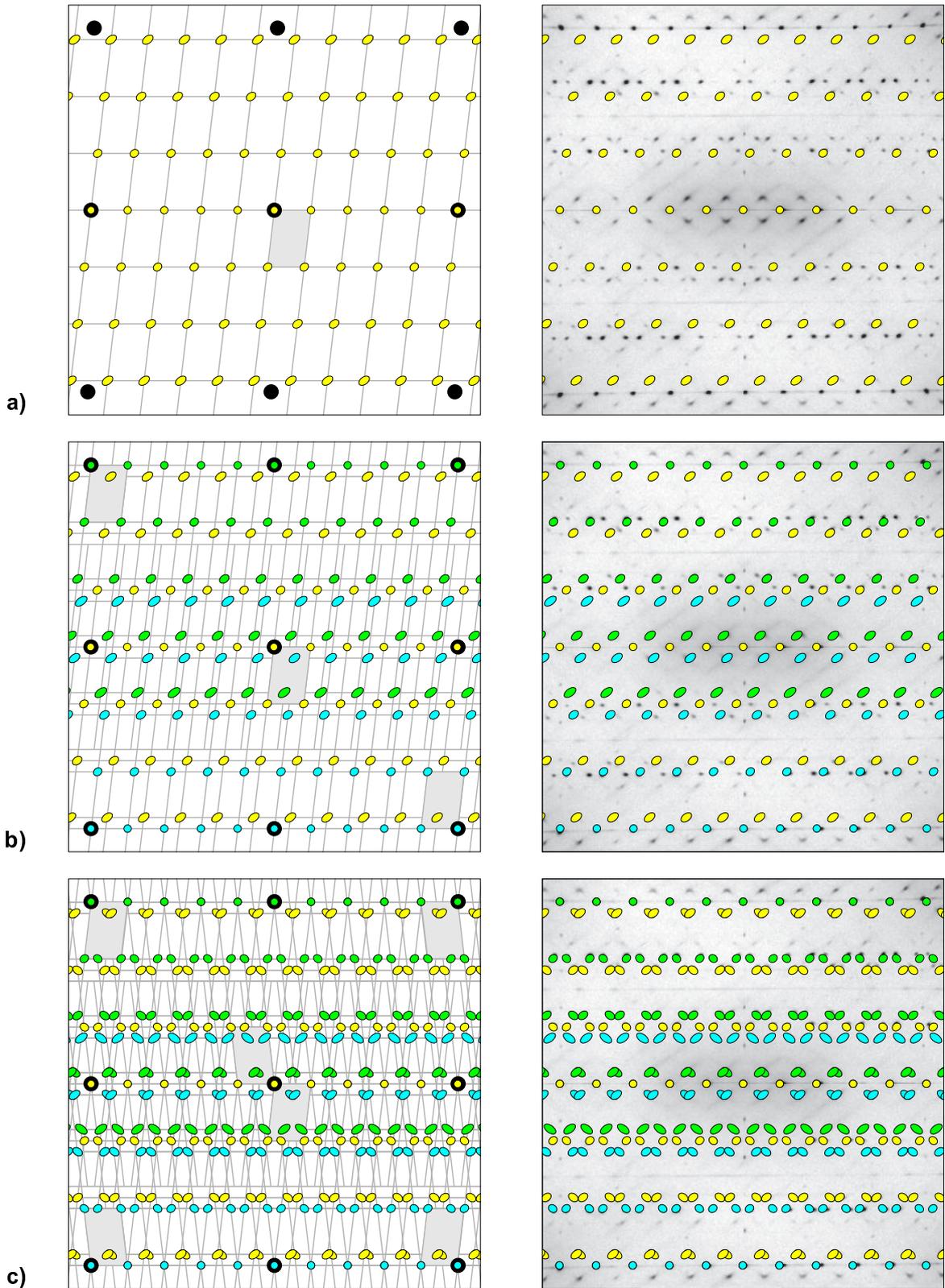


Abbildung 4.7: Strukturmodell für die (5×3.2) Rekonstruktion. (a) Skizze der inkommensurablen Einheitszelle. (b) Wiederholung der Einheitszelle aus (a) von jedem Hauptstruktureflex aus. (c) Zusätzliche Spiegeldomäne



tersuchungen, sowie weitere Details zu der Anordnung der Spiegeldomänen findet sich in Kapitel 8.2.2, während die Analyse der atomaren Struktur der Oberfläche mit STM in Kapitel 6.1 eine eindeutig kommensurable Domänenwandstruktur zeigt.

4.3 Kinetik des Facettierungsprozesses

Auch während der Adsorption von Gold auf die in Abschnitt 4.1 beschriebene Fläche ist es möglich, eine Folge von Beugungsprofilen aufzunehmen und zu einem Graustufenbild zusammensetzen. In dieser Darstellung entspricht jedoch, im Gegensatz zu den Abbildungen 4.2 und 4.6, nur eine Richtung dem reziproken Raum, die Y-Achse von Abb. 4.8 entspricht der Depositionszeit, d.h. der adsorbierten Goldmenge.

Die Darstellung ist so gewählt, daß die Au-Bedeckung von oben nach unten zunimmt. Der gezeigte Ausschnitt des reziproken Raumes ist im Vergleich zu Abb. 4.2 wegen Verwendung der externen Elektronenkanone des SPA-LEED leider sehr klein, so daß vor Öffnen des Verdampfershutters nur zwei der aufgespaltenen Hauptstruktureflexe identifiziert werden können (4° Spot A und B).

Zusätzlich wurden die Beugungsprofile, aus denen Abb. 4.8 erzeugt wurde, bezüglich der Reflexpositionen und deren integraler Intensität quantitativ ausgewertet. Die Analyse der Intensitäten ist in Abb. 4.9 graphisch aufbereitet. Die Depositionszeit ist auf der X-Achse aufgetragen, auf der Y-Achse findet sich die integrale Intensität. Im Folgenden soll die Facettierung anhand dieser beiden Abbildungen beschrieben werden.

4.3.1 Kondensation der ersten Terrassen: $t_0 \rightarrow t'_1$

Nach Öffnen des Verdampfershutters steigt zunächst die Intensität des 4° Spot A etwas an. Dies ist in einer Änderung des Formfaktors durch das adsorbierte Gold begründet. Gleichzeitig verschwindet jedoch der 4° Spot B. Wird die Mobilität des Siliziums durch deponiertes Gold erhöht, so beginnen die Stufen zu fluktuieren. Dies führt zu einem Anstieg des Debye Waller Faktors und einem Intensitätsabfall aller Stufenreflexe höherer Ordnung, d.h. aller Reflexe, die weit von der (001) Stange entfernt liegen. Da die langreichweitige Ordnung der Oberfläche jedoch im Mittel erhalten ist, bleibt die Halbwertsbreite aller, auch der schwächer werdenden, Reflexe konstant. Für den 4° Spot B wird daher der Intensitätsgewinn aufgrund von Formfaktoränderungen, der zum Intensitätsanstieg des 4° Spot A führte, durch den beschriebenen Prozeß der Stufenfluktuation mehr als kompensiert.

Nach ca. 2 Minuten Depositionszeit erscheinen zum Zeitpunkt t_1 vier zusätzliche Refle-

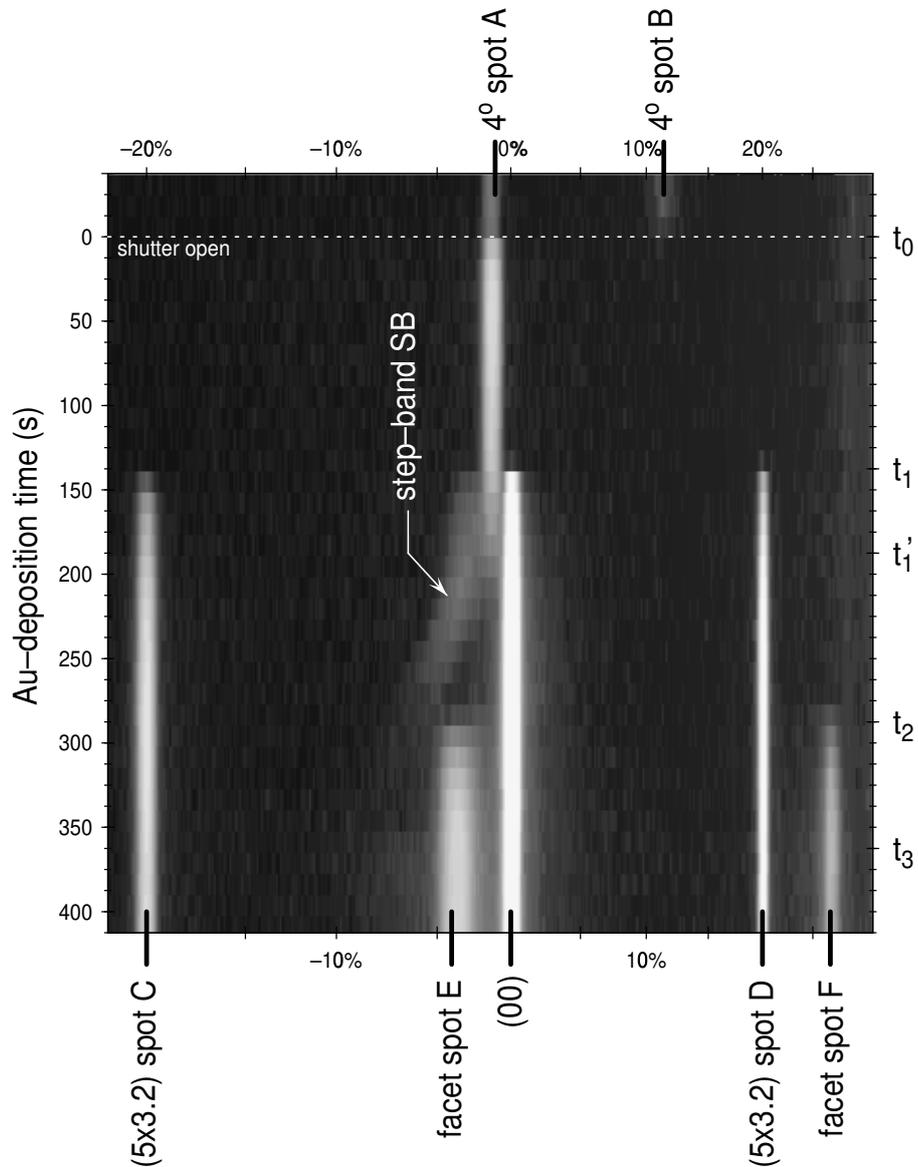


Abbildung 4.8: Kinetik des Adsorptionsexperimentes. Aus eindimensionalen SPA-LEED Profilen zusammengesetzt zeigt die Abbildung die zeitliche Entwicklung der Reflexe. (t_0) Der Shutter wird geöffnet, (t_1) die (5×3.2) Rekonstruktion entsteht, gleichzeitig wird das Stufenband gebildet, (t'_1) es gibt keine doppelt gestuften Bereiche mehr auf der Probe, (t_2) das Stufenband wird in Facetten umgewandelt, (t_3) die Facettierung ist abgeschlossen.

xe. Das Verhalten dreier dieser Reflexe ist äquivalent, wie an ihrem Intensitätsverlauf in Abb. 4.9 (a) sofort zu erkennen ist. Diese Reflexe gehören zu der bereits diskutierten (5×3.2) Rekonstruktion.

Die Position des zentralen, als (00)-Spot bezeichneten Reflexes, stimmt nicht mit der Position des 4° Spot A überein, sondern liegt direkt auf der (00) Stange. Die ur-

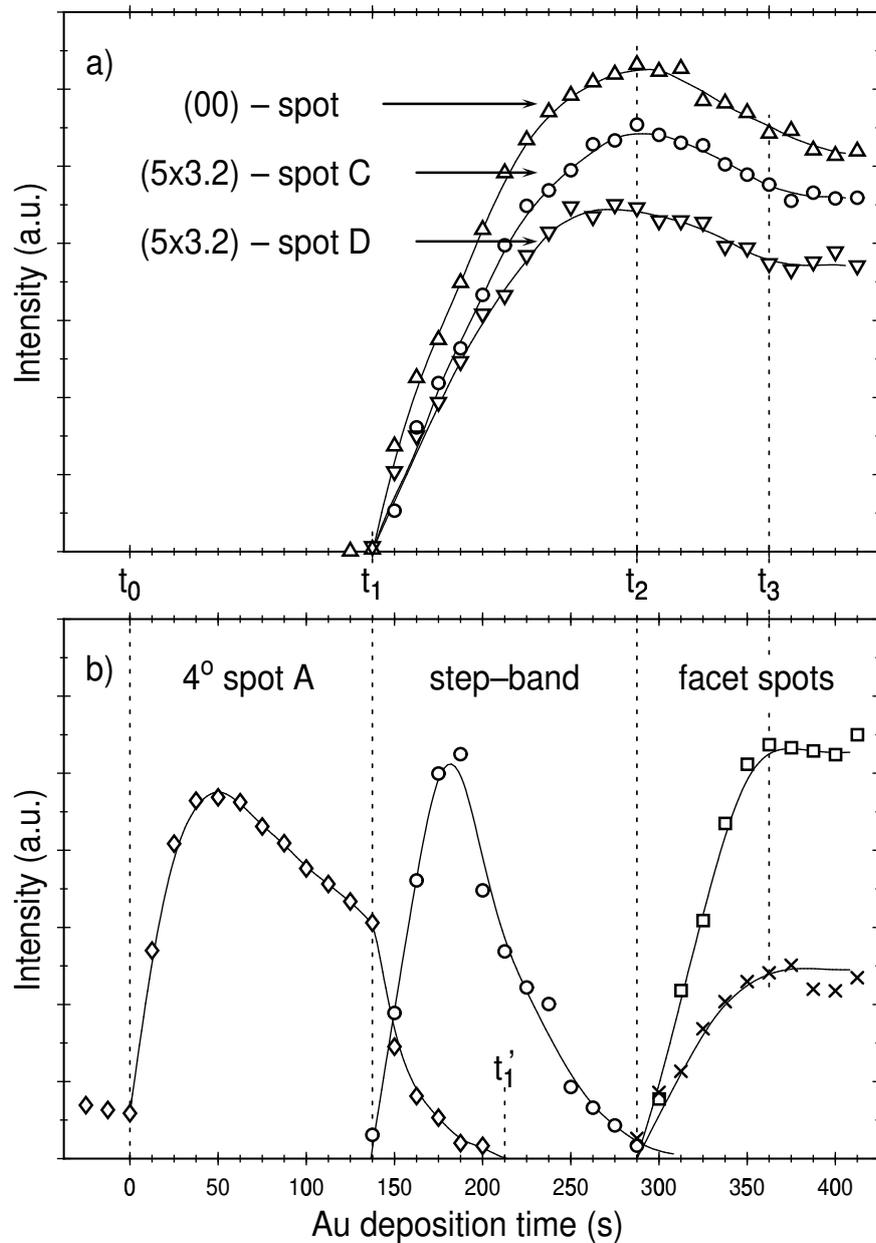


Abbildung 4.9: Integrale Intensitäten der Reflexe in Abb. 4.8. (a) Intensitäten von Reflexen der (5×3.2) Rekonstruktion. (b) Intensitäten der Reflexe geneigter Probenbereiche.

sprüngliche Doppelstufenfolge der Ausgangsfläche wird zerstört und es entstehen ebene (001) Terrassen, die von einer losen Ansammlung von Stufen getrennt werden. Deren Abstände sind geringer als diejenigen der Ausgangsfläche, da die Gesamtanzahl der Stufen erhalten bleiben muß, der verfügbare Platz jedoch durch die entstandenen (001) Terrassen verringert wurde. Die Neigung dieser sogenannten "Stufenbänder" ist daher größer als die 4° der Ausgangsfläche. Im SPA-LEED äußern sie sich durch einen Reflex, der in Abb. 4.8 links von dem 4° Spot A liegt und mit SB bezeichnet ist.

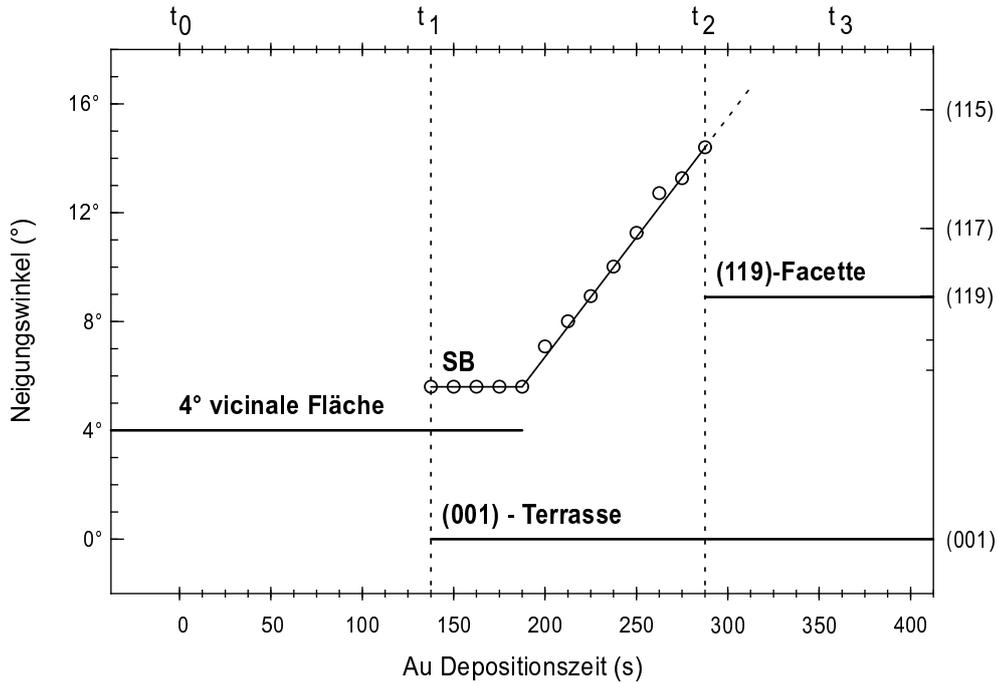


Abbildung 4.10: Position der Reflexe über der Zeit. Für das Stufenband wurde die Reflexposition aus SPA-LEED Profilen bestimmt. Das Stufenband wird mit steigender Bedeckung steiler und erreicht einen Maximalwinkel von 15° .

Zum Zeitpunkt t_1 ist noch nicht die gesamte Fläche in Terrassen und Facetten zerfallen, denn der 4° Spot A ist immer noch vorhanden. Im Zeitraum bis t'_1 werden jedoch immer mehr (001) Terrassen an unterschiedlichen Stellen auf der Probe gebildet. Dies ist in Abb. 4.9 an einer rapiden Abnahme der Intensität des 4° Spot A und einem ebenso rapiden Intensitätsgewinn des Stufenbandreflexes zu erkennen. Nach dem Verschwinden des 4° Spot A bei t'_1 ist die gesamte Fläche in ebene Terrassen und Stufenbänder zerfallen. Während die (001) Terrassen bereits jetzt perfekt geordnet sind (die Halbwertsbreite der Reflexe ist stets durch die Transferweite des SPA-LEED von ca. 2000\AA begrenzt), sind die zwischen den Terrassen liegenden Stufenbänder noch ungeordnet, wie der Halbwertsbreite des Stufenbandreflexes SB entnommen werden kann.

4.4 Das Stufenband: $t'_1 \rightarrow t_2$

Nach Bildung der ersten (001) Terrassen bei t_1 führt die weitere Deposition von Gold entweder dazu neue (001) Bereiche zu bilden, oder aber die vorhandenen Terrassen zu vergrößern. Mit dieser Argumentation wurde bereits der lineare Anstieg der Intensität des (00) Reflexes in Abb. 4.9 erklärt.

4.5. DAS “OVERSHOOTING”



Nachdem zum Zeitpunkt t_1 keine um 4° geneigten Bereiche auf der Probe mehr vorhanden sind, entfällt der Prozeß der Neubildung, und nur die Vergrößerung vorhandener Terrassen ist noch möglich. In den Stufenbändern zwischen den Terrassen müssen daher die Stufenabstände immer kleiner werden, d.h. in der Elektronenbeugung muß der Stufenbandreflex nach außen wandern. Dies ist in Abb. 4.8 deutlich zu sehen. In Abb. 4.10 wurde aus der Position des Stufenbandreflexes der Neigungswinkel abgeschätzt und über der Zeit aufgetragen. Zum Zeitpunkt t_1 kann ein Stufenbandreflex mit einem Neigungswinkel von 5.6° relativ zur (001) Richtung identifiziert werden. Die Position des Reflexes bleibt zunächst konstant, bis der 4° Spot A vollständig verschwunden ist. Dann allerdings beginnt der Reflex nach außen zu wandern, bis zum Zeitpunkt t_2 . Dort beträgt die Neigung des Stufenbandes fast 15° .

4.5 Das “Overshooting”: $t_2 \rightarrow t_3$

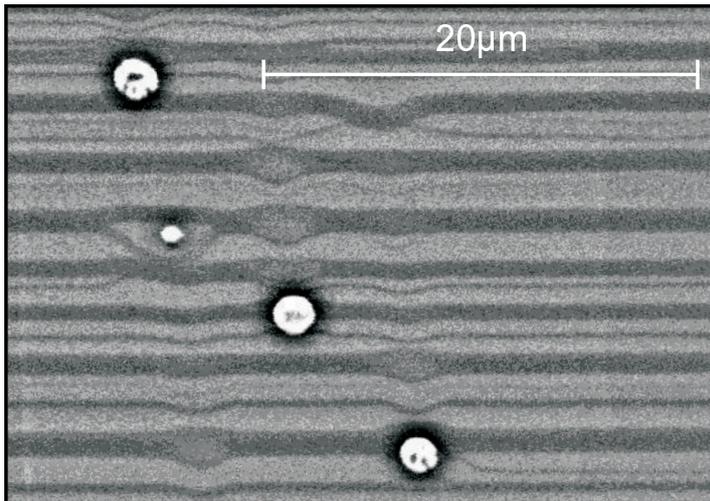


Abbildung 4.11: Überschüssiges Gold wird in Cluster eingebaut, die aufgrund von Elektromigration über die Oberfläche wandern [82] und die Superterrassen zerstören. Die dunklen Ringe um die Cluster sind ein Artefakt der Bildverarbeitung.

Es ist leicht vorstellbar, daß die Stufen des Stufenbandes nicht beliebig dicht zusammengeschoben werden können. Der maximal beobachtete Neigungswinkel von 15° entspricht bereits fast einer (115) Facette ($\vartheta_{(115)} = 15.79^\circ$), d.h. im Stufenband folgt auf jedes dritte Atom eine Stufe. Zusätzlich deponiertes Gold kann dann nicht mehr dazu verwendet werden, die (001) Terrassen weiter zu vergrößern, sondern das Gold muß auf dem Stufenband adsorbieren. Dies führt zu einer strukturellen Umordnung des Stufenbandes mit der Tendenz zur Ausbildung von (119) Facetten.

Abhängig von der Adsorptionstemperatur ist diese Umordnung mehr oder weniger vollständig, weshalb temperaturabhängig unterschiedliche Facettenorientierungen beobachtet werden (siehe Abschnitt 4.2). Erfolgt die Deposition bei Substrattemperatu-

ren oberhalb von 850°C, so werden ausschließlich (119) Facetten gebildet, die mit 8.93° einen geringeren Neigungswinkel als das Stufenband ($\vartheta_{SB} = 15^\circ$) besitzen. Die (119) Facetten benötigen aufgrund ihrer geringeren Neigung jedoch mehr Platz auf der Oberfläche als das Stufenband. Die Umordnung in (119) Facetten muß daher auf Kosten der (001) Terrassen geschehen. Dies erklärt den Intensitätsabfall der Terrassenreflexe in Abb. 4.9 zwischen t_2 und t_3 .

Nach der Umordnung des rauhen Stufenbandes in Facetten ist der Prozeß der Facettierung abgeschlossen. Die gesamte Ausgangsfläche ist in eine Berg- und Tal Landschaft aus (001) Terrassen und (119) Facetten zerfallen. Weitere Adsorption von Gold verändert die Oberflächenstruktur nicht mehr, sondern das überschüssige Gold wird in Clustern auf der Oberfläche gebunden. Dies ist in der elektronenmikroskopischen Aufnahme (SEM) Abb. 4.11 gezeigt. Die Zusammensetzung der Cluster ist bis heute nicht geklärt, so gehen einige Autoren davon aus, daß es sich um Silizide handelt, andere behaupten hingegen, es handele sich um reines Gold [82].

Die klar aufgelöste regelmäßige Folge von Terrassen und Facetten kann von den Clustern stark beeinträchtigt werden. Im Fall von Abb. 4.11 erfolgte das Heizen der Proben während der Präparation mit Widerstandsheizung. Die dadurch in Abb. 4.11 hervorgerufene Elektromigration der Cluster und ihr Einfluß auf die Terrassenstruktur wurde im Rahmen dieser Arbeit allerdings nicht untersucht.

4.5.1 Facettenorientierung

Die Ordnung und Orientierung der Facetten kann durch die Adsorptionstemperatur stark beeinflusst werden. Dies ist in Abb. 4.12 gezeigt. Dort wurden für Goldadsorption bei unterschiedlichen Temperaturen $k_{||}$ - k_{\perp} Schnitte des reziproken Raumes generiert. Die gezeigten Ausschnitte stellen einen Bereich von 240% BZ dar, die Elektronenenergie wurde zwischen Phase 2 (82eV) und Phase 3 (185eV) variiert. Im Gegensatz zu den Abbildungen 4.2 und 4.6 sind die hier gezeigten Bilder jedoch aus Platzgründen um 25% in k_{\perp} -Richtung gestaucht worden.

Nach Adsorption bei $T = 775^\circ\text{C}$ (a) wird ein sehr ungeordnetes Ensemble von verschiedenen Facettenrichtungen beobachtet. Da sich alle Facettenstangen in den Bragg-Bedingungen schneiden, ist an diesen Stellen sehr hohe Intensität zu beobachten, die bei leichter Variation von k_{\perp} diffus wird und an Intensität verliert. Bei dieser niedrigen Adsorptionstemperatur wird das Stufenband noch nicht vollständig in Facetten umgeordnet. Neben den diffusen Reflexen des Stufenbandes sind daher Stangen von Facetten zu beobachten, deren Neigungswinkel mit dem Winkel des Stufenbandes über-

4.5. DAS “OVERSHOOTING”

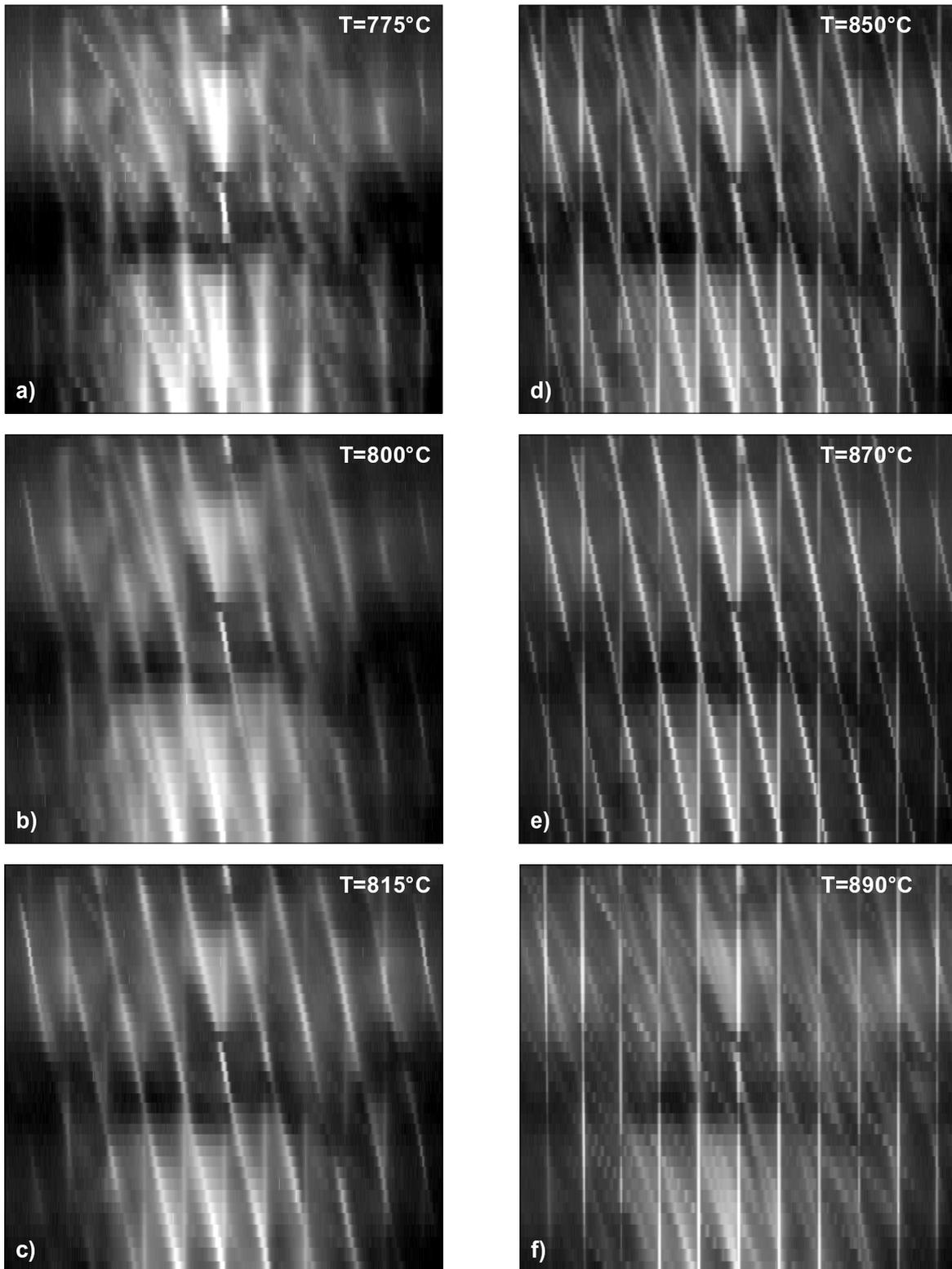


Abbildung 4.12: $k_{||}$ - k_{\perp} Schnitte des reziproken Raumes nach Goldadsorption und Abkühlen auf Raumtemperatur. (a)-(e): Zwischen 775°C und 850°C wird immer bessere Ordnung und Tendenz zur (119) Facettierung beobachtet. (f) Die ungeordnete Struktur bei 890°C entsteht erst beim Abkühlen der Probe auf Raumtemperatur.

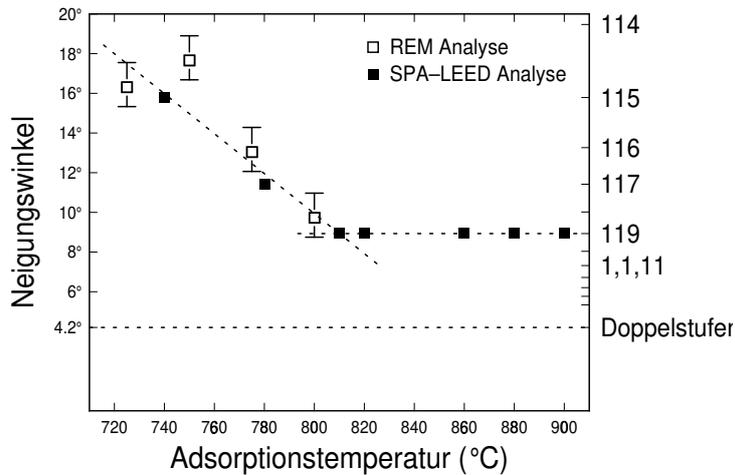


Abbildung 4.13: Temperaturabhängigkeit der Facettenrichtung. Bei niedrigen Adsorptionstemperaturen finden sich stark geneigte Facetten zwischen (113) und (117). Erst ab 800° Substrattemperatur dominiert die (119) Facette.

einstimmt. Für (115) und (117) Facetten mit Neigungswinkeln von 15.8° und 11.4° ist diese Bedingung erfüllt.

Bei höheren Adsorptionstemperaturen ist die Umordnung des Stufenbandes in Facetten vollständiger. So zeigt das Experiment bei 800°C (b) nur noch (117) Facetten. Zusätzlich sind bereits (119) Facetten zu beobachten. Das Facettenensemble des Stufenbandes, das nur nahe der Bragg Bedingungen beobachtet werden kann, ist deutlich besser geordnet. Diese Tendenz setzt sich bei weiterer Erhöhung der Adsorptionstemperatur fort. Bei 815°C (c) sind bereits ausschließlich (119) Facetten zu beobachten. Allerdings ist aus dem diffusen Erscheinungsbild, das in einer großen Halbwertsbreite der Facettenreflexe begründet ist, auf eine hohe Rauigkeit und geringe Größe der Facetten zu schließen. Bei weiterer Temperaturerhöhung (d) wird das Bild zunehmend schärfer, d.h. die (119) Facetten werden besser geordnet. Das Optimum wird bei 870°C erreicht (e).

Bei noch höherer Adsorptionstemperatur (f) entfällt die treibende Kraft für die Facettierung. Eine Änderung der Oberflächenmorphologie während der Deposition findet nicht statt. Alles adsorbierte Gold wird in einem Gittergas auf der Oberfläche gebunden. Erst beim Abkühlen der Probe auf Raumtemperatur wird der Facettierungsprozeß im Zeitraffer durchlaufen. Das beobachtete "Chaos" der verschiedensten Richtungen wird daher durch den Abkühlvorgang bestimmt, und nicht durch die Kinetik der Facettierung. Der scheinbare Widerspruch der Adsorptionstemperatur zu Abb. 5.10 ist auf prinzipbedingte Ungenauigkeiten der pyrometrischen Temperaturmessung zurückzuführen.

Für eine quantitative Auswertung der Facettenrichtung ist in Abb. 4.13 der Neigungswinkel der jeweils stärksten Facette in Abhängigkeit von der Adsorptionstemperatur gezeigt. In dem Bereich zwischen 820°C und 850°C treten zusätzlich andere Orientie-



rungen auf, erst oberhalb von 850°C werden ausschließlich (119) Facetten beobachtet. Zusätzlich wurde das Diagramm Abb. 4.13 durch elektronenmikroskopische Daten einer Kooperation mit dem Tokyo Institute of Technology ergänzt [83]. Die Facettenorientierung wurde aus dem Kontrastverhalten der Bilder in Abb. 4.14 bestimmt. Auf Details der Bildentstehung und -verzerrung soll hier nicht eingegangen werden, da sie an anderer Stelle beschrieben sind [23, 36, 84]. In den gezeigten Hellfeldabbildungen entsteht im REM eine regelmäßige Folge von hellen und dunklen Streifen. Die hellen Streifen entsprechen (001) Bereichen, die dunklen Bereiche repräsentieren Facetten. Aus dem Breitenverhältnis der Streifen kann der Facettenwinkel grob bestimmt werden. Seien T_L und T_F^{\parallel} die Breiten der Terrassen und Facetten wie sie im REM Bild erscheinen, d.h jeweils auf die (001) Richtung projiziert, so berechnet sich mit bekannter Fehlneigung $\Delta = 4^\circ$ der Neigungswinkel der Facette anhand geometrischer Überlegungen zu

$$\varphi = 90 - \arctan \left\{ \frac{1}{\tan \Delta} \cdot \frac{T_F^{\parallel}}{(T_L + T_F^{\parallel})} \right\} \quad (4.1)$$

Die Qualität dieser Auswertung ist leider begrenzt: Die Bildverzerrungen des REM sowie die bei tiefen Temperaturen stark unregelmäßigen Strukturen limitieren die Genauigkeit. Durch die Welligkeit der Strukturen entlang der Richtung niedriger Auflösung im REM ist zusätzlich die Ablesegenauigkeit beeinträchtigt. Bei einem angenommenen Ablesefehler von je 0.5 mm ergeben sich die in Abb. 4.13 eingetragenen Fehlerbalken. Während dieser Fehler bei hohen Adsorptionstemperaturen noch ausreicht, die Abweichung von den SPA-LEED Daten zu erklären, liegt die stärkere Abweichung bei tiefen Temperaturen in der zunehmenden Unordnung der REM Bilder begründet (siehe dazu Abb. 4.14).

4.5.2 Verhalten der Einfachstufen während der Deposition

Während der Adsorption von Gold spielen die in Kapitel 4.1.1 eingeführten ungeradzahigen Terrassen eine wichtige Rolle, die in Abschnitt 4.3.1 noch nicht erwähnt wurde. Während der Kondensation der ersten Terrassen ist es für die entstehenden Keime unerheblich, ob sie auf einer geradzahigen oder ungeradzahigen Terrasse gebildet werden. Die Wahrscheinlichkeit für Kondensation auf einer ungeradzahigen Terrasse hängt ausschließlich vom Flächenanteil dieser Terrassen an der Gesamtfläche ab, und darf im Fall einer 4° fehlgeneigten Si(001) Fläche nicht vernachlässigt werden, wie Abb. 4.4(b) zeigt. Nach der Kondensation unterscheidet sich die weitere Entwicklung des auf einer ungeradzahigen Terrasse gebildeten Keims zunächst kaum von dem Verhalten der restlichen, außer daß die goldinduzierte (5×3.2) Rekonstruktion um 90°

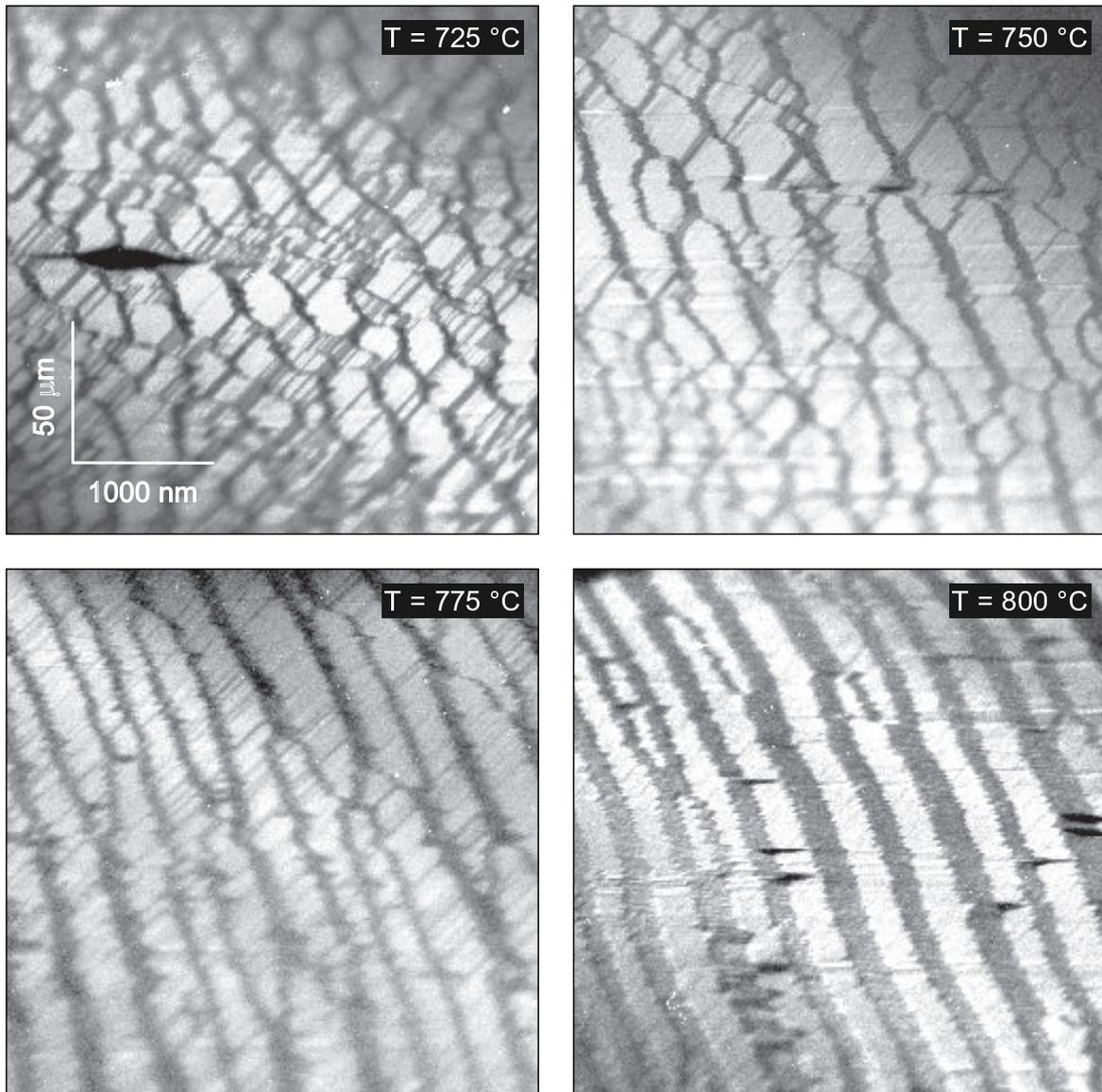


Abbildung 4.14: REM Aufnahmen bei unterschiedlichen Temperaturen zeigen die Schwierigkeit bei der Auswertung der Facettenrichtungen.

gedreht ist (Abb. 4.16).

Dies ermöglicht es, mit SPA-LEED das Verhalten der ungeradzahligen Terrassen von den geradzahligen Terrassen zu separieren. Äquivalent zu Abb. 4.8 wurden in Abb. 4.15 erneut eindimensionale Profile während der Deposition aufgenommen. Bei jedem zweiten Profil wurde jedoch die Richtung um 90° gedreht. Auf der linken Seite (a) in Abb. 4.15 sind invertiert die Resultate für die geradzahligen Terrassen dargestellt, auf der rechten Seite sind die um 90° gedrehten Scans gezeigt (b). Nachdem das Verhalten der Reflexe in Abb. 4.15 (a) bereits anhand Abb. 4.8 beschrieben wurde, soll im

4.5. DAS “OVERSHOOTING”

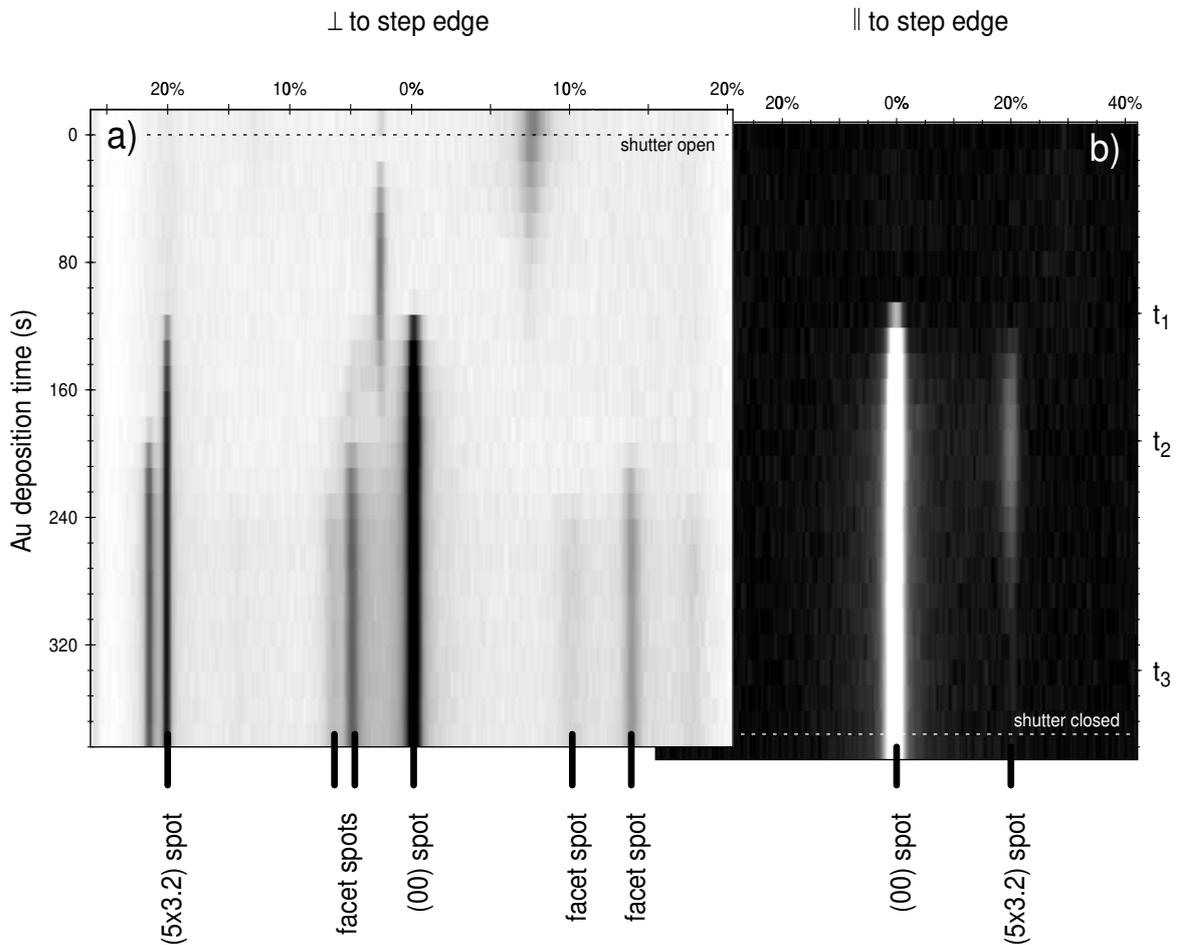


Abbildung 4.15: Scans während der Deposition in zwei Richtungen. (a) Vergleiche Abb. 4.8. (b) Zum Zeitpunkt t_1 entstehen ungeradzahlige Terrassen mit (3.2×5) Rekonstruktion, die bis t_3 wieder zurückgebildet werden. Die unterschiedliche Skalierung der beiden Teilbilder ist in der Verwendung einer externen Elektronenkanone begründet.

Folgenden der rechte Teil der Abbildung diskutiert werden.

Der Ursprung des gewählten Koordinatensystems, in dem die Drehung erfolgte, wurde in die (001) Stange gelegt. Zu Beginn der Deposition existiert diese Stange noch nicht, da nur die 4° aufgespaltenen Reflexe beobachtet werden. Aus diesem Grund ist in der gedrehten Richtung zu Beginn der Deposition keine Intensität vorhanden.

Nach Kondensation der ersten Terrassen bei t_1 entsteht ein (00) Reflex auf der (001) Stange, der in beiden Teilabbildungen bei 0% BZ klar erscheint. Es muß darauf hingewiesen werden, daß die Skalierung des reziproken Raumes von (a) und (b) stark unterschiedlich ist, bedingt durch Verwendung der externen Elektronenkanone des SPA-LEED und einer daraus resultierenden, richtungsabhängigen Verzerrung des Beugungsbildes. Dies führt zu einer horizontalen Stauchung des Teilbildes (b) um etwa

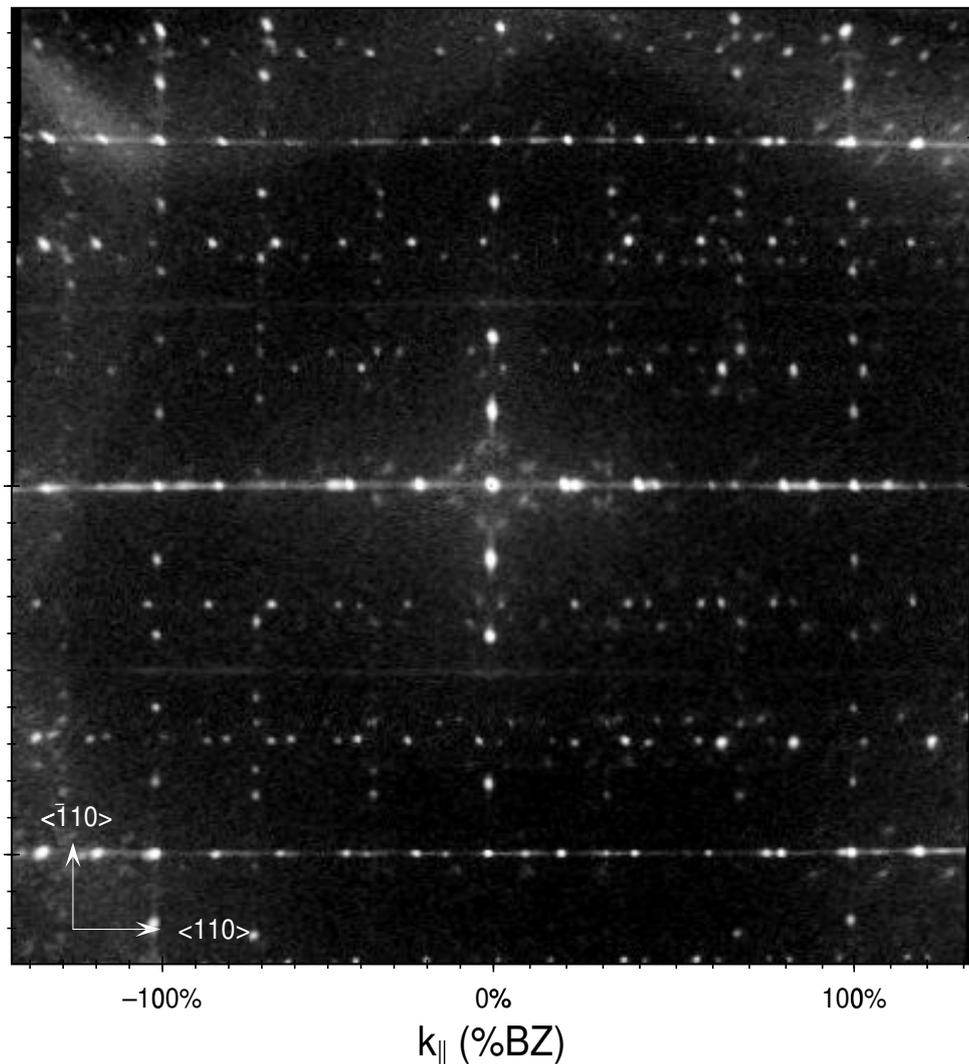


Abbildung 4.16: SPA-LEED Beugungsbild mit (5×3.2) und relativ dazu um 90° gedrehten (3.2×5) Überstrukturdomänen.

50%. Daher liegt der zweite, bei t_1 gebildete Reflex, ebenfalls bei 20%BZ. Auch dieser gehört also zu Bereichen einer (5×3.2) Rekonstruktion, die hier allerdings um 90° gedreht ist, bedingt durch die Geometrie der Terrassen des Substrates. Bis zum Zeitpunkt t_2 steigt die Intensität des Reflexes zunächst, äquivalent zu den Reflexen der geradzahligen Terrassen, an. Dann beginnt die Intensität jedoch abzufallen und der Reflex ist im Endzustand bei t_3 nahezu vollständig verschwunden.

Während zu Beginn der Deposition also die ungeradzahligen Bereiche zunächst vergrößert werden, muß eine Begründung gefunden werden, weshalb diese Terrassen zum Ende des Facettierungsprozesses wieder verschwinden. Die Erklärung soll in Kapitel [8.2.1](#) nachgereicht werden, wenn erläutert wird, wie die Vergrößerung der (001) Berei-

4.5. DAS “OVERSHOOTING”



che im Einzelnen geschieht.

4.6 Proben anderer Fehlneigungswinkel

Um den Einfluß der Fehler in der Doppelstufenfolge des Substrates auf das spätere Verhalten der ungeradzahligen Terrassen zu überprüfen, wurden die Adsorptionsexperimente auf Proben der Fehlneigung 0.5° und 8° wiederholt. Bei der Probe geringer Fehlneigung wurde bereits vor dem Adsorptionsexperiment keine Doppelstufenfolge beobachtet: beide Rotationsdomänen der (2×1) Rekonstruktion waren vorhanden (siehe dazu auch Abb. 4.4). Die große Anzahl ungeradzahliger Terrassen bleibt stets präsent und wird während des Experiments auch nicht vollständig zurückgebildet. Die Reflexe der rotierten (5×3.2) Rekonstruktion zeigen nur schwache Intensität, können aber klar identifiziert werden. Im Gegensatz dazu bilden die Proben hoher Fehlneigung bereits nach der Präparation eine perfekte Doppelstufenfolge aus. Ungeradzahlige Terrassen konnten auf diesen Flächen in keinem Stadium der Adsorption beobachtet werden.

Da während der Goldadsorption alle vicinalen Si(001) Oberflächen zwischen 0.5° und 8° in (001) Terrassen und (119) Facetten zerfallen, scheint ein Adsorptionsexperiment auf der reinen (119) Fläche interessant. Hier sollen erste Ergebnisse von SPA-LEED Untersuchungen an diesem System vorgestellt werden. In Abb. 4.17 (a) ist ein Schnitt des reziproken Raumes äquivalent zu Abb. 4.2 gezeigt. Die Gitterstangen der Si(119) Fläche sind um 8.93° gegenüber der (001) Richtung geneigt. Während der Goldadsorption rauht die Fläche massiv auf, (001) Terrassen werden gebildet und von einem Stufenband kompensiert (b). Der Neigungswinkel des Stufenbandes war bereits in den vorigen Abschnitten zu ca. 15° relativ zu (001) bestimmt worden. Eine partielle Umordnung der (119) Fläche hin zu diesem Neigungswinkel ermöglicht es, einen Anteil von 32% der Oberfläche mit (5×3.2) rekonstruierten (001) Terrassen zu bedecken. Weitere Adsorption von Gold zwingt das Stufenband wieder in die (119) Richtung zurück, die (5×3.2) Bereiche verschwinden fast vollständig aus dem Beugungsbild. Im Endstadium sind nur noch goldbedeckte (119) Bereiche, sowie Reste von (001) Terrassen und (113) Facetten vorhanden. Da systematische Untersuchungen an diesem System noch fehlen, kann über die Gründe hierfür nur spekuliert werden.

Einerseits könnten Defekte an der Oberfläche die Stufenmorphologie pinnen und die Umordnung des Stufenbandes verhindern. Da die vorliegenden Untersuchungen direkt nach dem Ausheizen der Apparatur durchgeführt wurden, ist dies nicht auszuschließen.

Andererseits ist es verwunderlich, daß neben den (001) Terrassen ausschließlich (113) Facetten Bestand haben. Die Neigung der (113) Facette ist mit 25.4° deutlich größer als der mittlere Winkel des Stufenbandes, d.h. das Stufenband durchläuft diesen Neigungswinkel typischerweise nicht. Nach Untersuchungen von Bermond et al. [85] findet

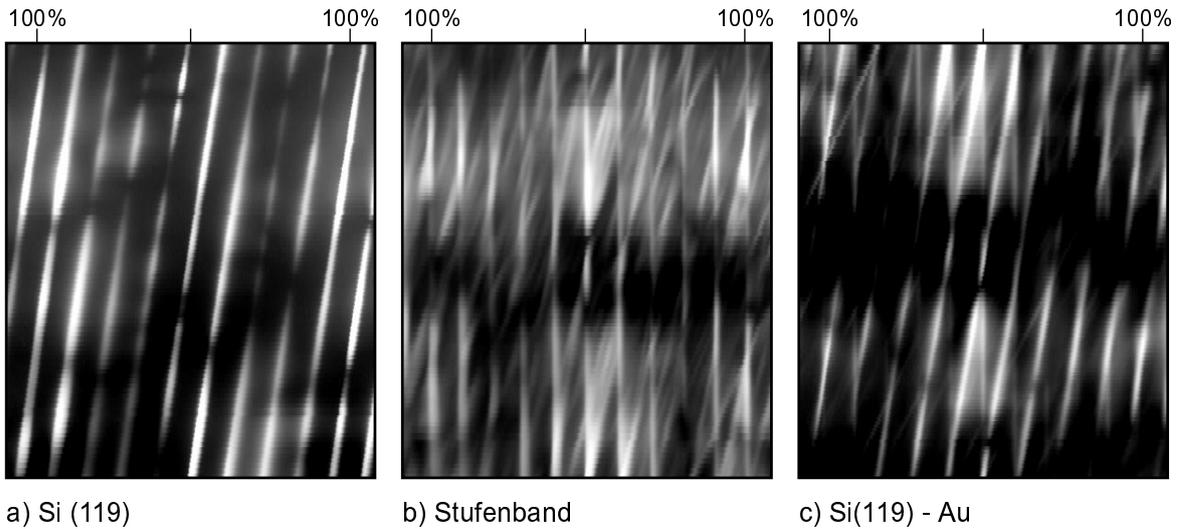


Abbildung 4.17: Goldinduzierte Facettierung von Si(119). Alle Richtungen und Skalierungen entsprechen Abb. 4.2. a) Si (119) Ausgangsfläche. Das Stangensystem ist um 8.93° gegenüber der (001) Richtung geneigt. b) Abbruch während der Adsorption. Beim Abkühlen der Probe bildet das Stufenband (117), (115) und (113) Facetten. c) Endstadium. Die Facetten sind größtenteils zurückgebildet, nur wenige (113) Facetten sind vorhanden. Der Neigungswinkel wird durch (001) Bereiche kompensiert.

sich in der Kurve der winkelabhängigen Oberflächenenergie ein deutliches Minimum für Si(113), während die Minima der typischen Stufenbandrichtungen (115) und (117) zu klein sind, um mit der verwendeten Methode aufgelöst zu werden. Es liegt daher der Schluß nahe, daß, wenn einmal eine (113) Facette gebildet wurde, diese kinetisch bedingt stabil bleibt und nicht wieder zurückgebildet werden kann.

4.7 Das Gittergasmodell

4.7.1 Adsorption und Desorption

Wird nach Erreichen des Endzustandes der Verdampfershutter geschlossen, die Probe jedoch weiterhin bei der Adsorptionstemperatur belassen, so kann die Rückbildung der Superterrassen beobachtet werden. Dies ist in Abb. 4.18 gezeigt. Die Adsorptionstemperatur in diesem Fall beträgt 840°C . Nach Öffnen des Shutters sind die 3 Stadien der Facettierung, Kondensation, Ausbildung des Stufenbandreflexes sowie Overshooting unter Bildung von (119) Facetten zu erkennen, dann wird der Verdampfer geschlossen. Die damit einhergehende schlagartige Positionsänderung aller Facettenreflexe ist ausschließlich experimenteller Art. Durch die Betätigung des Verdampfershutters werden

die elektrischen Felder vor der Probe leicht gestört und damit der Einfallswinkel des Elektronenstrahls der externen Elektronenkanone geringfügig verändert. In der Ewald Konstruktion bedeutet eine kleine Änderung des Einfallswinkels der Elektronen um ihren Sollwinkel von ca. 60° in der externen Geometrie eine starke Änderung von k_\perp (proportional zu $1/\cos^2 \vartheta$) und damit eine Positionsveränderung der Facettenreflexe gegenüber den Normalreflexen.

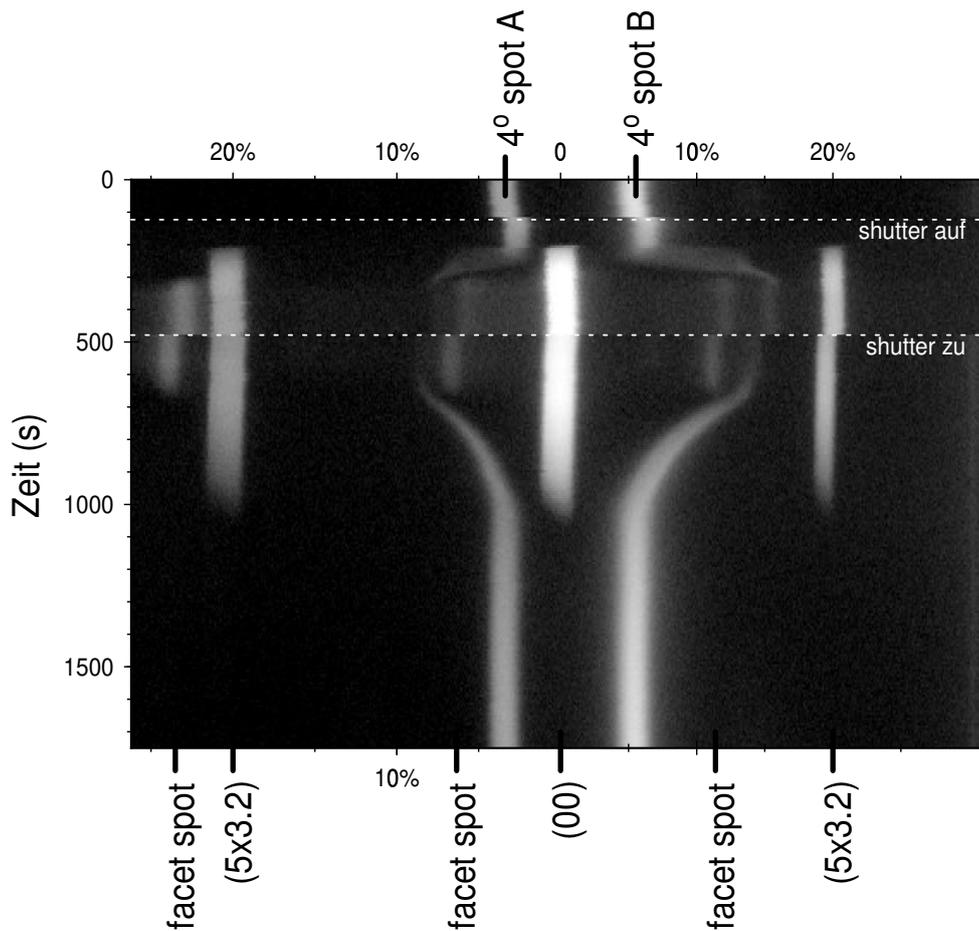


Abbildung 4.18: Adsorption und Desorption. Der Facettierungsprozeß nach Öffnen des Shutters ist mit der Desorption des Goldes nach Schließen des Shutters vollständig reversibel. Der Versatz der Facettenreflexe bei Betätigung des Shutters ist experimentell bedingt.

Die Reversibilität des Facettierungsprozesses wird in Abb. 4.18 sofort deutlich. Die Facetten werden in Stufenbündel umgeordnet, der Neigungswinkel des Stufenbandes nimmt ab und die Intensität des (00) Reflexes wird geringer. Schließlich verbleiben nur noch die Aufspaltungsreflexe der doppelt gestuften Ausgangsfläche.

Anhand zu erwartender Dotierprofile für Au-Diffusion aus unerschöpflicher Quelle und der benötigten Zeit für die vollständige Rückbildung der Superterrassen wurde



abgeschätzt, ob Desorption oder Volumendiffusion der entscheidende Prozeß für das Verschwinden des Goldes ist [36]. Es zeigt sich, daß die Desorption bei Temperaturen oberhalb von 780°C stets mindestens zehnmal stärker ist als die Volumendiffusion. Für 880°C ergibt sich bereits ein Faktor von 20. Die Volumendiffusion spielt daher in diesem System eine untergeordnete Rolle, während die Desorption zu keinem Zeitpunkt vernachlässigt werden darf.

4.7.2 Ratengleichungen

Anhand der zeitlichen Intensitätsentwicklung der Reflexe im SPA-LEED wurde bereits in Abschnitt 4.3 die Änderung der Oberflächenmorphologie während der Adsorption verfolgt. In Abb. 4.19 ist für einen kompletten Adsorptions- Desorptionszyklus bei 840°C die Spitzenintensität des (00) Reflexes, bezogen auf die (001) Terrassen, aufgetragen.

Nach Öffnen des Shutters sind zunächst keine Änderungen der Oberflächenmorphologie zu beobachten. Das Gold adsorbiert in Form eines Gittergases auf der Fläche. Bei Erreichen der Bedeckung Θ_{krit} beginnt die Ausbildung der (001) Terrassen. Bis $\Theta_{\text{sät}}$ werden die (001) Bereiche vergrößert und das Stufenband gebildet. Anschließend steigt die Adatomdichte auf den Stufenbändern. Dies geschieht wieder in Form eines Gittergases, das schließlich zu (119) Facetten kondensiert. Nach dem Schließen des Shutters verläuft dieser Prozeß exakt reversibel.

Quantitativ kann das Verhalten durch Ratengleichungen, der Anteil der Desorption durch die Polanyi-Wigner Gleichung beschrieben werden.

$$R_{\text{des}} = -\frac{d\Theta}{dt} = \Theta^m \nu_0 e^{-\frac{E_D}{k_B T}}$$

Hierbei beschreibt Θ die Bedeckung, E_D die Desorptionsenergie und ν_0 den Frequenzfaktor. Die Potenz m gibt die Ordnung der Desorption an und hängt von dem geschwindigkeitsbestimmenden Schritt des Desorptionsprozesses ab. Für $m = 1$ (Desorption 1. Ordnung) ist die Desorptionsrate direkt proportional zu der Zahl der Adsorbatatome, bei Desorption 2. Ordnung sind zur Desorption jeweils zwei Atome notwendig (Molekülbildung, z.B. bei der Desorption von Wasserstoff von einer Silizium Oberfläche). Desorption aus einer festen Anzahl bevorzugter Plätze, z.B. Stufenkanten, führt zu Desorption 0. Ordnung wenn die Diffusionslänge der Adsorbatatome so groß ist, daß die benötigte Zeit für die Diffusion zu den Desorptionszentren vernachlässigt werden darf. Ist diese Bedingung erfüllt, wird die Lösung der Differentialgleichung für die Desorption sehr einfach, und die Desorptionsrate ist vollkommen unabhängig von der Bedeckung. Dieser Fall tritt in Abb. 4.19 in dem Bereich zwischen $\Theta_{\text{sät}}$ und Θ_{krit} ein.

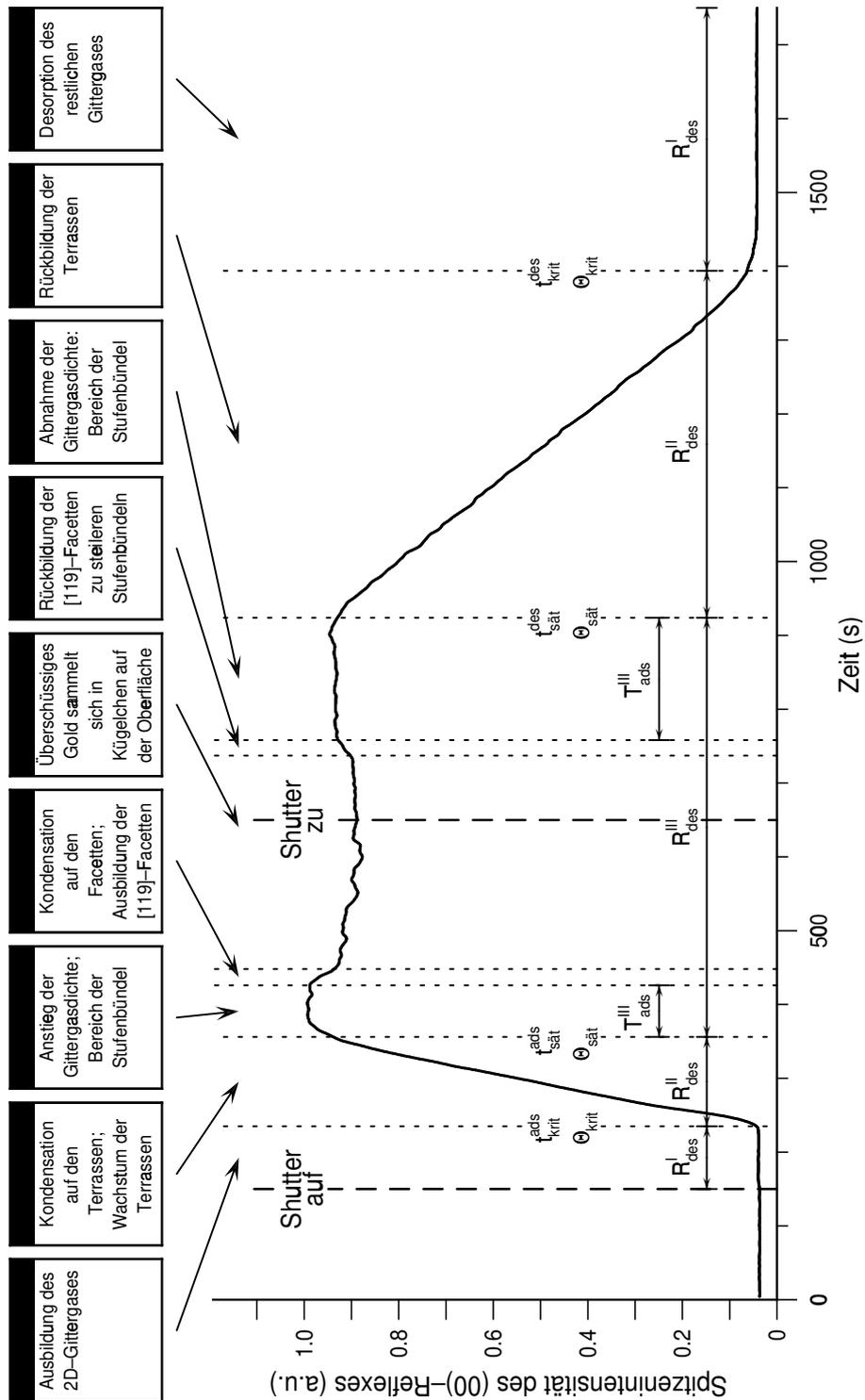


Abbildung 4.19: Intensitätsverlauf des (00) Reflexes während der Adsorption und Desorption in Begriffen des Gittergases. Bei $t=150s$ beginnt die Au Deposition. Nach Schließen des Shutters bei $t=480s$ verläuft der Facettierungsprozeß mit der Desorption des Goldes vollständig reversibel.

4.8. DESORPTION AUS DEM GITTERGAS



Die Intensität des (00) Reflexes zwischen $t_{\text{sät}}^{\text{des}}$ und $t_{\text{krit}}^{\text{des}}$ verläuft vollkommen linear, d.h. die Desorptionsrate ist konstant.

Aufgrund der massiven Änderung der Oberflächenmorphologie unter Goldangebot ist es zunächst nicht auszuschließen, daß sich der Desorptionsmechanismus während der Adsorption ändert und, z.B. zwischen Öffnen des Shutters und Erreichen von Θ_{krit} , Desorption 1. Ordnung stattfindet. Es hat sich jedoch gezeigt, daß die Lösung der Ratengleichungen unter Annahme von Desorption 1. Ordnung nicht mit den experimentellen Befunden in Übereinstimmung zu bringen ist [36]. Auch nach Erreichen der Sättigungsbedeckung könnte sich die Ordnung der Desorption ändern. In diesem Bereich ist die Bedeckung jedoch sehr hoch ($\Theta \sim 1$), weshalb Fehler durch Wahl einer falschen Desorptionsordnung vernachlässigbar werden. Es soll aus den angeführten Gründen daher für alle Stadien des Adsorptionsprozesses Desorption 0. Ordnung angenommen werden.

Die Bedeckung berechnet sich dann für jede Phase des Experiments aus der Differenz zwischen Adsorption und Desorption.

4.8 Desorption aus dem Gittergas: $0 \leq \Theta \leq \Theta_{\text{krit}}$

Für den zeitlichen Verlauf der Bedeckung während der Adsorption gilt:

$$\Theta(t) = (R_{\text{ads}} - R_{\text{des}})(t - t_0) + \Theta_0 \quad (4.2)$$

mit den Bezeichnungen aus Abb. 4.19 folgt daraus für den Zeitpunkt $t = t_{\text{krit}}^{\text{ads}}$

$$R_{\text{des}}^{\text{I}} = R_{\text{ads}} - \frac{\Theta_{\text{krit}}}{t_{\text{krit}}^{\text{ads}}} \quad (4.3)$$

Gleichungen für den Verlauf des Experimentes nach Schließen des Shutters können für das reine Gittergas leider nicht formuliert werden, da für die Desorption der Zeitpunkt $\Theta = 0$ unbekannt ist. Es kann jedoch die Annahme getroffen werden, daß die Desorptionsraten $R_{\text{des}}^{\text{I}}$ und $R_{\text{des}}^{\text{II}}$ ungefähr übereinstimmen. Dies erscheint vernünftig, denn der entscheidende Beitrag der Desorption stammt aus dem Gittergas, das auch nach der Terrassenbildung noch auf der Fläche vorhanden ist. Es ist dann möglich, auf den folgenden Abschnitt vorzugreifen und Gleichung 4.2 durch Gleichung 4.8 zu teilen:

$$\frac{\Theta_{\text{krit}}}{\Theta_{\text{sät}} - \Theta_{\text{krit}}} = \frac{(R_{\text{ads}} - R_{\text{des}}^{\text{I}}) \cdot t_{\text{krit}}^{\text{ads}}}{(R_{\text{ads}} - R_{\text{des}}^{\text{II}})(t_{\text{sät}}^{\text{ads}} - t_{\text{krit}}^{\text{ads}})} \quad (4.4)$$

$$\Leftrightarrow \frac{\Theta_{\text{sät}}}{\Theta_{\text{krit}}} = \frac{R_{\text{ads}} - R_{\text{des}}^{\text{II}}}{R_{\text{ads}} - R_{\text{des}}^{\text{I}}} \left(\frac{t_{\text{sät}}^{\text{ads}}}{t_{\text{krit}}^{\text{ads}}} - 1 \right) + 1 \quad (4.5)$$

$$\sim \frac{t_{\text{sät}}^{\text{ads}}}{t_{\text{krit}}^{\text{ads}}} \quad (4.6)$$

Desorption während der Terrassenbildung: $\Theta_{\text{krit}} \leq \Theta \leq \Theta_{\text{sät}}$

In dem Bereich zwischen Kondensation der ersten Terrassen und Erreichen der Sättigungsbedeckung, bei der die (001) Terrassen ihre maximale Größe erreicht haben, steigt die Bedeckung linear an. Alle angegebenen Zeiten müssen jedoch um $t_{\text{krit}}^{\text{ads}}$, alle Bedeckungen um Θ_{krit} korrigiert werden. Außerdem muß zwischen dem Bereich der Adsorption und der reinen Desorption unterschieden werden. Für den Bereich der Adsorption gilt

$$\Theta(t) = (R_{\text{ads}} - R_{\text{des}}^{\text{II}})(t - t_{\text{krit}}^{\text{ads}}) + \Theta_{\text{krit}} \quad (4.7)$$

Die Sättigungsbedeckung ergibt sich durch Einsetzen des Zeitpunktes $t = t_{\text{sät}}^{\text{ads}}$ und der Bedeckung $\Theta_{\text{sät}}$

$$\Theta_{\text{sät}} - \Theta_{\text{krit}} = (R_{\text{ads}} - R_{\text{des}}^{\text{II}})(t_{\text{sät}}^{\text{ads}} - t_{\text{krit}}^{\text{ads}}) \quad (4.8)$$

Aus der reinen Desorption im zweiten Teil des Experimentes folgt mit analogen Überlegungen

$$\Theta(t) = \Theta_{\text{sät}} - R_{\text{des}}^{\text{II}}(t - t_{\text{sät}}^{\text{des}}) \quad (4.9)$$

und wiederum nach Einsetzen des Zeitpunktes $t_{\text{krit}}^{\text{des}}$ und der Bedeckung $\Theta = \Theta_{\text{krit}}$

$$\Theta_{\text{sät}} - \Theta_{\text{krit}} = R_{\text{des}}^{\text{II}}(t_{\text{krit}}^{\text{des}} - t_{\text{sät}}^{\text{des}}) \quad (4.10)$$

Diese Gleichung läßt sich nach der Desorptionsrate $R_{\text{des}}^{\text{II}}$ auflösen

$$R_{\text{des}}^{\text{II}} = \frac{\Theta_{\text{sät}} - \Theta_{\text{krit}}}{t_{\text{krit}}^{\text{des}} - t_{\text{sät}}^{\text{des}}} \quad (4.11)$$

Da die Desorptionsraten für den Bereich mit und ohne Adsorption identisch sind, können die gewonnenen Gleichungen aus den beiden Bereichen kombiniert werden. Hier erweist es sich als nützlich, zunächst Gleichung 4.11 in Gleichung 4.8 einzusetzen.

$$\Theta_{\text{sät}} - \Theta_{\text{krit}} = R_{\text{ads}} \left(\frac{(t_{\text{sät}}^{\text{ads}} - t_{\text{krit}}^{\text{ads}})(t_{\text{krit}}^{\text{des}} - t_{\text{sät}}^{\text{des}})}{t_{\text{krit}}^{\text{des}} - t_{\text{sät}}^{\text{des}} + t_{\text{sät}}^{\text{ads}} - t_{\text{krit}}^{\text{ads}}} \right) \stackrel{!}{=} \Gamma R_{\text{ads}} \quad (4.12)$$

Hier wird die Konstante Γ definiert, die nur noch von Größen abhängt, die direkt im Experiment bestimmt werden können. Es soll bereits an dieser Stelle betont werden, daß R_{ads} in beliebigen Einheiten angegeben werden kann und sich die Desorptionsrate $R_{\text{des}}^{\text{II}}$ in denselben Einheiten berechnet, da Γ einheitenfrei ist.

Eine weitere wichtige Beziehung ergibt sich, werden Gleichung 4.8 und Gleichung 4.10 durcheinander geteilt:

$$\frac{\Theta_{\text{sät}} - \Theta_{\text{krit}}}{\Theta_{\text{sät}} - \Theta_{\text{krit}}} = \frac{(R_{\text{ads}} - R_{\text{des}}^{\text{II}})(t_{\text{sät}}^{\text{ads}} - t_{\text{krit}}^{\text{ads}})}{R_{\text{des}}^{\text{II}}(t_{\text{krit}}^{\text{des}} - t_{\text{sät}}^{\text{des}})} \quad (4.13)$$



Es wird dann möglich, $R_{\text{des}}^{\text{II}}$ direkt zu berechnen

$$R_{\text{des}}^{\text{II}} = R_{\text{ads}} \cdot \frac{t_{\text{sät}}^{\text{ads}} - t_{\text{krit}}^{\text{ads}}}{t_{\text{krit}}^{\text{des}} - t_{\text{sät}}^{\text{des}} + t_{\text{sät}}^{\text{ads}} - t_{\text{krit}}^{\text{ads}}} \stackrel{!}{=} \Delta R_{\text{ads}} \quad (4.14)$$

Auch die einheitenfreie Konstante Δ hängt ausschließlich von direkt bestimmbaren Größen ab.

4.8.1 Desorption während der Facettenbildung

Es war bereits anhand einer früheren Abbildung erwähnt worden (Abb. 4.11), daß nach Ende des Facettierungsprozesses überschüssiges Gold in Silizidkügelchen auf der Oberfläche gebunden wird. Die Anzahl und Größe dieser Kügelchen hängt davon ab, wie lange nach Erreichen des Endstadiums der Verdampfershutter noch geöffnet ist. In die Ratengleichungen für diesen Bereich des Experimentes muß daher die Zeit bis zum Schließen des Shutters eingehen.

$$\Theta_{\text{Shutter zu}} = (R_{\text{ads}} - R_{\text{des}}^{\text{III}})(t_{\text{Shutter zu}} - t_{\text{sät}}^{\text{ads}}) \quad (4.15)$$

Bei der Desorption bleibt zunächst die Bedeckung auf der Fläche konstant, da desorbiertes Gold aus den Silizidkügelchen nachgeliefert wird. Die Silizidtröpfchen dienen als Reservoir für Gold, ändern allerdings den Desorptionsmechanismus nicht. Für den zweiten Teil des Experimentes ergibt sich daher als Ratengleichung

$$\Theta_{\text{Shutter zu}} = R_{\text{des}}^{\text{III}}(t_{\text{sät}}^{\text{des}} - t_{\text{Shutter zu}}) \quad (4.16)$$

Die Menge adsorbierten und desorbierten Goldes vor und nach Schließen des Shutters muß gleich sein, weshalb gilt:

$$R_{\text{des}}^{\text{III}} = R_{\text{ads}} \frac{t_{\text{Shutter zu}} - t_{\text{sät}}^{\text{ads}}}{t_{\text{sät}}^{\text{des}} - t_{\text{sät}}^{\text{ads}}} \quad (4.17)$$

4.8.2 Vergleich mit dem Experiment

SPA-LEED Messungen

Anhand von Adsorptions- und Desorptionszyklen bei verschiedenen Temperaturen ist es möglich, die im vorigen Kapitel eingeführten Größen aus den Knickstellen der Meßkurven zu bestimmen und so das Gittergasmodell anhand der aufgestellten Ratengleichungen experimentell zu überprüfen. Es wurde bereits erwähnt, daß die Gültigkeit der Ratengleichungen unabhängig von der Wahl der Einheiten für R_{ads} ist, weshalb es sich

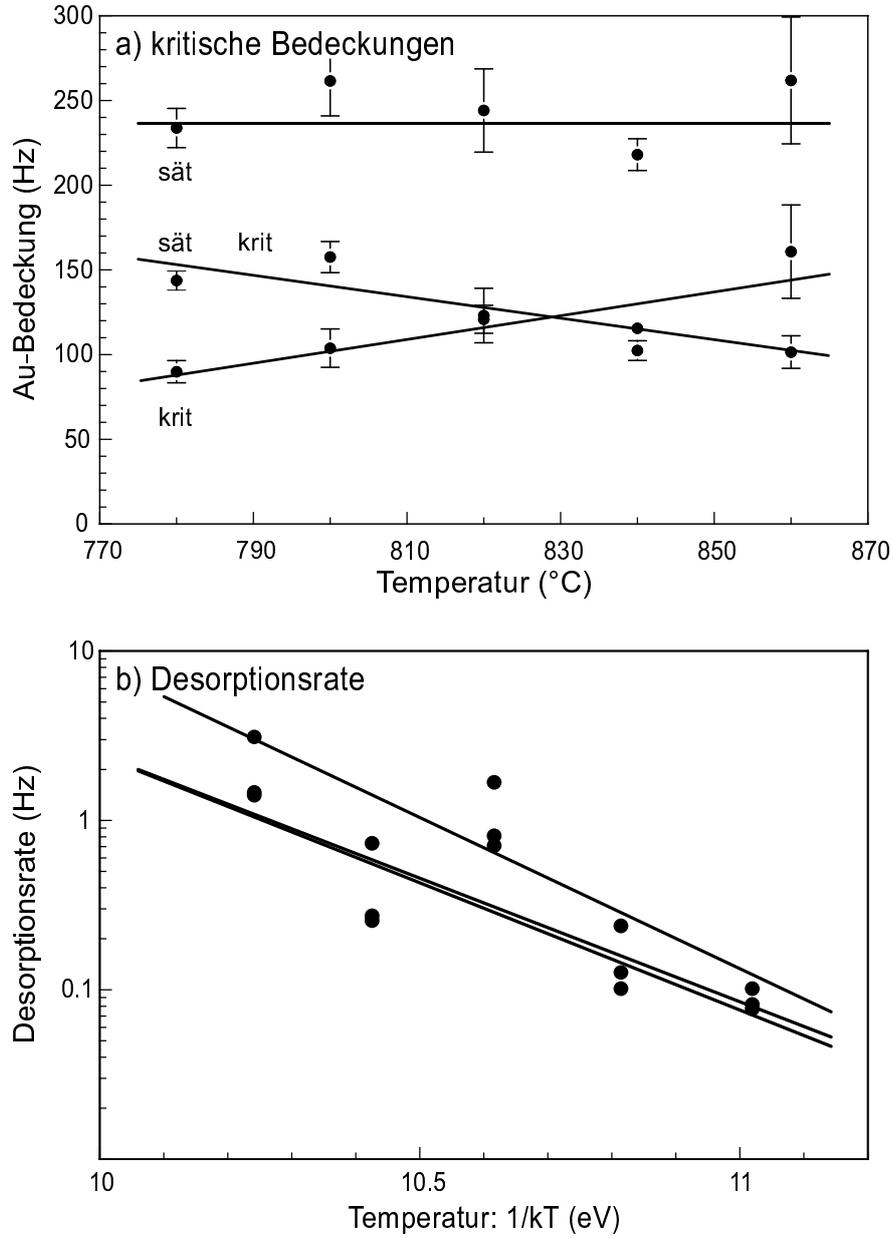


Abbildung 4.20: Gittergasmodell. (a) Kritische Bedeckung Θ_{krit} und Sättigungsbdeckung $\Theta_{\text{sät}}$. (b) Berechnete Desorptionsrate.

anbietet, zunächst die mit einer Quarzwaage (in Hz) bestimmte relative Kalibrierung für die adsorbierte Goldmenge zu verwenden. Durch Kombination der Gleichungen 4.12 und 4.6 ergibt sich:

$$\Theta_{\text{krit}} = \frac{R_{\text{ads}}\Gamma}{\frac{t_{\text{sät}}^{\text{ads}}}{t_{\text{krit}}^{\text{ads}}} - 1}, \quad \Theta_{\text{sät}} = \frac{R_{\text{ads}}\Gamma}{1 - \frac{t_{\text{krit}}^{\text{ads}}}{t_{\text{sät}}^{\text{ads}}}}, \quad \Theta_{\text{sät}} - \Theta_{\text{krit}} = \Gamma R_{\text{ads}} \quad (4.18)$$

Diese Werte können aus den Messungen direkt bestimmt werden und sind in Abb. 4.20



(a) aufgetragen. Es zeigt sich, daß die Sättigungsbedeckung $\Theta_{\text{sät}}$ für alle Proben identisch ist. $\Theta_{\text{sät}}$ wird durch die in der (5×3.2) Überstruktur gebundene Goldmenge bestimmt und hängt damit nicht von der Temperatur, sondern nur von dem Fehlneigungswinkel der Proben ab. Die kritische Bedeckung Θ_{krit} steigt hingegen mit der Temperatur langsam an. Θ_{krit} gibt an, wieviel Gold im Gittergas gebunden werden kann, bevor die Kondensation einsetzt. Bei höheren Temperaturen kann durch die erhöhte Mobilität der Adatome im Gittergas eine höhere Konzentration erreicht werden, bis die Bildung von (001) Terrassen einsetzt.

Erwartungsgemäß fällt die Differenz $\Theta_{\text{sät}} - \Theta_{\text{krit}}$ langsam ab, der Betrag der Steigung ist identisch mit der Steigung von Θ_{krit} . Es konnte gezeigt werden [36], daß dieses selbstverständliche Ergebnis nur unter Annahme von Desorption 0. Ordnung aus dem Gittergas erhalten werden konnte.

Mit der Kenntnis von Θ_{krit} und $\Theta_{\text{sät}}$ können zu jedem Zeitpunkt die Desorptionsraten bestimmt werden.

$$R_{\text{des}}^{\text{I}} = R_{\text{ads}} - \frac{\Theta_{\text{krit}}}{t_{\text{krit}}^{\text{ads}}}, \quad R_{\text{des}}^{\text{II}} = R_{\text{ads}} \Delta, \quad R_{\text{des}}^{\text{III}} = R_{\text{ads}} \frac{t_{\text{Shutter zu}} - t_{\text{sät}}^{\text{ads}}}{t_{\text{sät}}^{\text{des}} - t_{\text{sät}}^{\text{ads}}} \quad (4.19)$$

Das Ergebnis der Auswertung dieser Gleichungen ist in dem Arrheniusplot 4.20 (b) gezeigt. Wie erwartet sind die Desorptionsraten für $R_{\text{des}}^{\text{I}}$ und $R_{\text{des}}^{\text{II}}$ nahezu identisch. Im Gegensatz dazu ist die Rate $R_{\text{des}}^{\text{III}}$ deutlich größer. Das Verhältnis $R_{\text{des}}^{\text{III}} / R_{\text{des}}^{\text{II}}$ beträgt ungefähr 2.25.

Bedeckungsseichung mit MEIS

Um die Desorptionsraten und Bedeckungen, die bislang immer nur in Einheiten des Verdampferquarzes angegeben wurden, in apparaturunabhängige Größen umzurechnen wurden zwei Proben mit einer Fehlneigung von 1° bei einer Temperatur von 830°C präpariert und die absolute Bedeckung mit Ionenstreuung (MEIS) bestimmt [86]. Die Ergebnisse sind in Abb. 4.21 zusammengefaßt. Wie im vorigen Abschnitt wurde auch hier wieder die Intensität des (00) Reflexes über der Zeit aufgenommen. Bei Probe a) ($\Theta_{\text{MEIS}} = 0.64\text{ML}$) wurde die Adsorption unmittelbar nach Erreichen der Sättigungsbedeckung unterbrochen, bei Probe b) ($\Theta_{\text{MEIS}} = 0.8\text{ML}$) einige Zeit nach Ausbildung der Facettierung. Beide Proben wurden vor Brechen des Vakuums mit einer Schicht von 30 \AA amorphen Siliziums belegt, um die Goldschicht auf dem Transportweg zu schützen. Dieses sogenannte "cappen" der Proben wurde bei Raumtemperatur durchgeführt um eine Vermischung des Goldfilms mit der Schutzschicht zu verhindern. Beide Proben wurden unmittelbar nacheinander, bei möglichst identischen experimentellen Bedingungen präpariert.

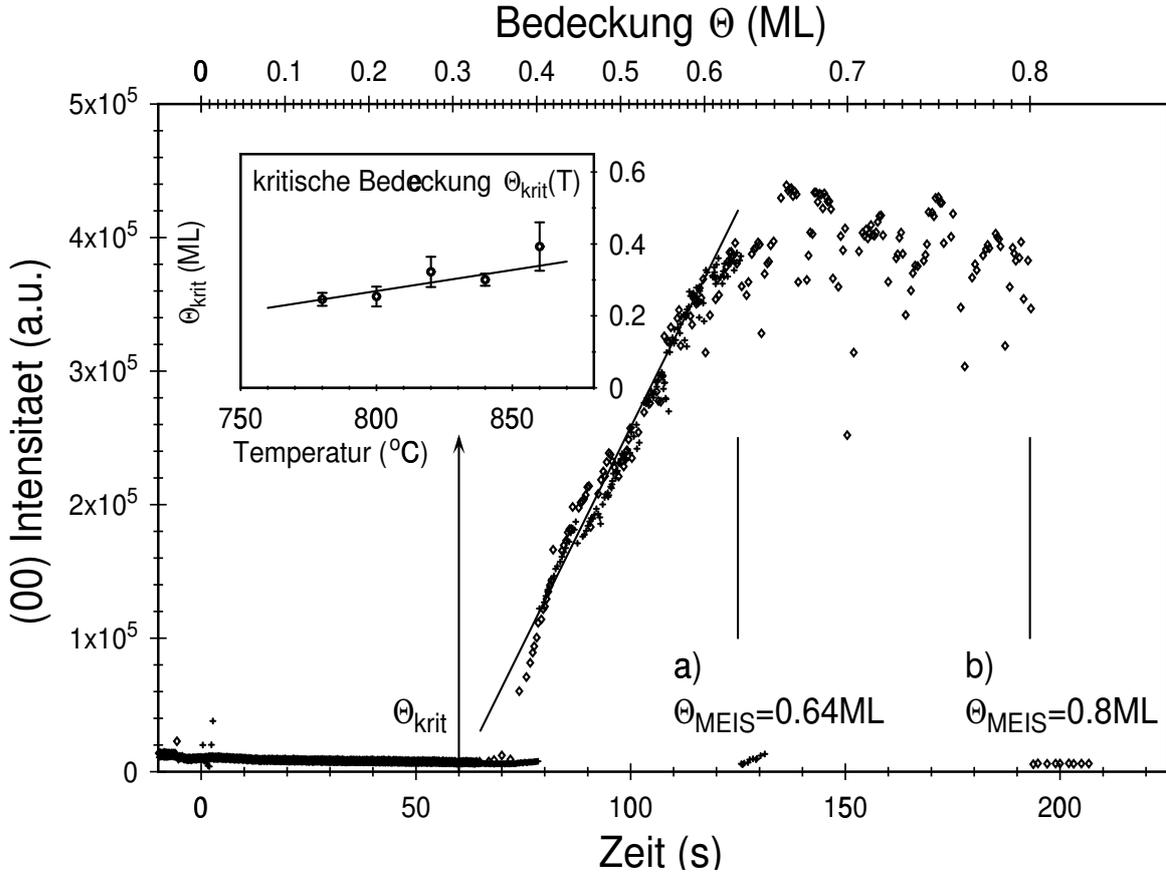


Abbildung 4.21: Kritische Bedeckungen und Desorptionsrate aus dem Gittergasmodell

Aus einem Vergleich mit dem Gittergasmodell folgt sofort:

$$\Theta_{\text{sät}} = 0.64ML$$

Dieser Wert ist unabhängig von der Adsorptionstemperatur, wie in Abb. 4.20 (a) gezeigt wurde. Da bereits $R_{\text{des}}^I = R_{\text{des}}^{II}$ vorausgesetzt wurde, folgt ebenfalls:

$$\Theta_{\text{krit}}(830^\circ C) = \frac{t_{\text{krit}}^{\text{ads}}}{t_{\text{sät}}^{\text{ads}}} \Theta_{\text{sät}} = 0.31ML$$

Da die Adsorptionsrate während der beiden Experimente nicht verändert wurde, kann aus den MEIS Daten das Verhältnis

$$\frac{R_{\text{des}}^{III}}{R_{\text{des}}^{II}} = 2.15$$

bestimmt werden. Dieser Wert stimmt sehr gut mit dem bereits in Abb. 4.20 (b) aus Adsorptions- Desorptionszyklen bestimmten Wert überein. Die MEIS Daten erweisen sich also als konsistent mit dem Gittergasmodell. Um R_{ads} und R_{des}^{I-III} direkt zu bestimmen, kann daher auf die vorherigen Messungen zurückgegriffen werden. Dies ist

4.8. DESORPTION AUS DEM GITTERGAS



notwendig, da bei den MEIS-Proben die Bestimmung der Desorptionszeiten natürlich nicht möglich war. Für den Zyklus in Abb. 4.19 ergibt sich $R_{\text{ads}} = 0.19 \text{ML}/\text{min}$, $R_{\text{des}}^{\text{I}} = R_{\text{des}}^{\text{II}} = 0.04 \text{ML}/\text{min}$ und $R_{\text{des}}^{\text{III}} = 0.09 \text{ML}/\text{min}$.



Kapitel 5

Lichtbeugung

Wie bereits anhand des SEM Bildes 4.11 deutlich wurde, liegt die Größe der durch Goldadsorption entstehenden Strukturen im μm Bereich, d.h. im Bereich der Wellenlänge sichtbaren Lichtes. Daher ist eine Beobachtung von Beugungseffekten bereits mit dem bloßen Auge zu erwarten. In diesem Kapitel soll das Phänomen zunächst beschrieben werden, bevor ein Experiment zur quantitativen Auswertung der mittels Lichtbeugung erhältlichen Informationen vorgestellt wird.

5.1 Mikroskopie

Nach einer Strukturierung bei optimaler Wachstumstemperatur ($T = 860^\circ\text{C}$) ist auf den Proben unter entsprechender Beleuchtung ein streifenartiges Schimmern zu beobachten. Die Intensität dieses Schimmerns hängt stark vom Beobachtungs- und Beleuchtungswinkel ab. Bei Blickrichtung senkrecht auf die Probe und unter Beleuchtung mit weißem Halogenlicht *entlang* der Stufenkanten des Substrates ist keine Struktur zu erkennen. Unter Beleuchtung *senkrecht* zu den Stufenkanten sind jedoch Streifen zu erkennen, die im Idealfall vom oberen Rand der Probe über die gesamte Probe bis zum unteren Rand laufen. Ein lichtmikroskopisches Bild, das unter diesen Beleuchtungsbedingungen aufgenommen wurde, ist in Abb. 5.1 gezeigt. Der abgebildete Ausschnitt entspricht einem Bereich von $1.5\text{mm} \times 1\text{mm}$ der Probenoberfläche. Ob dieses Bild wirklich einer Realraumabbildung entspricht und insbesondere warum es bunt ist, soll im Folgenden geklärt werden.

Durch die Goldadsorption entsteht auf den Proben eine regelmäßige Folge von (001) Terrassen und (119) Facetten, wobei im Mittel der Neigungswinkel der Ausgangsfläche



Abbildung 5.1: Mikroskopisches Bild einer superterrasierten Silizium Oberfläche. Der gezeigte Ausschnitt entspricht einem Bereich von $1.5\text{mm} \times 1\text{mm}$ auf der Probe.

nachgebildet wird. Wie in Abb. 5.2 skizziert entsteht hierdurch eine “Sägezahnstruktur” relativ zur Ausgangsfläche mit Neigungswinkeln von $\Delta = -4.2^\circ$ und $\varphi = 4.7^\circ$. Die Periodenlänge n dieses Sägezahns hängt von den Präparationsbedingungen ab. Für eine typische Periodenlänge $n_T + n_F = 1\mu\text{m}$ ergeben sich als Kenngrößen die Werte in Tabelle 5.1. Experimentell wurden mit Elektronenmikroskopie (SEM) Periodenlängen zwischen wenigen nm bis zu $4\mu\text{m}$ beobachtet.

Der beschriebene Sägezahn bildet ein Phasengitter (ein sogenanntes Blaze-Gitter) für Licht im sichtbaren Bereich. Dem Schillern der Proben liegt also ein Beugungseffekt im Mikroskop zugrunde. Fraglich ist nur, weshalb dieses Beugungsbild im Mikroskop mit einem Ortsraumbild verknüpft zu sein scheint. Mit Hilfe der Abbe’schen Mikroskoptheorie findet sich jedoch eine Erklärung für dieses Phänomen. Wie bereits erwähnt, erfolgt die Beleuchtung der Proben schräg von der Seite. Das Blaze Gitter der Probe erzeugt nun aus dem teilweise kohärenten Halogenlicht ein Beugungsmuster. Der Spiegelreflex gelangt wegen der schrägen Beleuchtung nicht ins Mikroskop, sondern es wird, abhängig vom Beleuchtungswinkel, ein Teil aus dem Beugungsspektrum herausgeschnitten. Während die Position des Spekularreflexes für alle Wellenlängen identisch

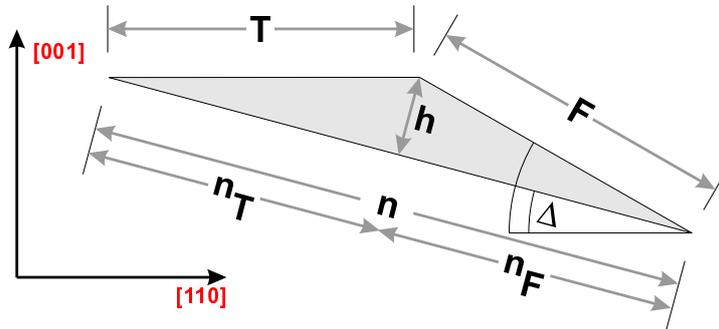


Abbildung 5.2: Definition der im Folgenden verwendeten Größen: Terrassenlänge T , Facettenlänge F , Strukturhöhe h , Facettenwinkel φ , Fehlneigungswinkel Δ , Periodenlänge n . n_T und n_F stellen die Projektionen von T und F auf die Ausgangsfläche dar.

Facette	φ	T (nm)	F (nm)	h (nm)	S_{632nm}	Δ_{rms} (nm)
(1 1 3)	25.24	841.9	171.7	61.7	0.097	17.8
(1 1 5)	15.79	738.4	269.1	54.1	0.086	15.6
(1 1 7)	11.42	634.8	369.8	46.5	0.074	13.4
(1 1 9)	8.93	531.2	471.8	38.9	0.062	11.2
(1 1 11)	7.32	427.7	574.3	31.3	0.050	9.04
(1 1 13)	6.21	324.1	677.2	23.7	0.038	6.85

Tabelle 5.1: Kenngrößen superterrasierter Proben. Als Periodenlänge wurde $1\mu\text{m}$ vorausgesetzt. φ : Neigungswinkel der Facette bezogen auf die (001) Richtung, T : Länge der Terrasse, F : Länge der Facette, h : Position des höchsten Punktes relativ zur 4° fehlgeneigten Fläche, S : Beugungsphase bezogen auf die HeNe Laser Wellenlänge (632.8nm), Δ_{rms} : RMS-Rauhigkeit der Probe.

ist, hängt die Lage der höheren Beugungsordnungen jedoch mit $1/\lambda$ von der Wellenlänge ab. Das entstehende Bild hängt schließlich wenig von der Ortsraumstruktur ab, sondern wird nahezu ausschließlich von der Fourierfilterung durch den Eintrittsspalt bestimmt.

5.1.1 Simulation der Mikroskopbilder

Um den beschriebenen Kontrastmechanismus zu überprüfen, wurde der Bildentstehungsprozeß simuliert. Hierzu wurde zunächst ein (1 dimensionales) Gitter am Rechner generiert und anschließend mittels eines FFT Algorithmus fouriertransformiert. Da das Mikroskop keine spektralen Anteile außerhalb des Raumwinkels, der durch die Apertur des Objektivs begrenzt ist, verwendet, wurden in dem gewonnenen (komplexen) Spektrum alle Bereiche außerhalb der angenommenen Apertur ausgeblendet. Das Verbleibende wurde mittels inverser FFT in den Realraum zurücktransformiert.

Die exakte Darstellung von Farben in der Natur auf dem Computer ist ein sehr komplexes Problem [87]. Prinzipiell muß in die Berechnung eines Farbbildes sowohl die spektrale Verteilung der Beleuchtungsquelle, als auch die spektrale Empfindlichkeit des Auges eingehen. Die erhaltenen Intensitätswerte in Abhängigkeit von der Wellenlänge müssen dann in den (Rot,Grün,Blau) Farbraum des Computers transformiert werden, um das Bild überhaupt darstellen zu können. Schließlich kommen Probleme mit den Ausgabegeräten, d.h. Farbverfälschungen durch den gewählten Drucker oder Bildschirm hinzu.

Sollen jedoch keine quantitativen Vergleiche durchgeführt werden, sondern nur Farbefekte erklärt werden, so genügt es, die Lichtquelle als dreifarbig zu betrachten und die spektrale Intensität des Auges als konstant anzusehen. Die benötigten Wellenlängen wurden bereits 1931 im System der Commission International d'Eclairage (CIE) zu blau=435.8nm, grün=546nm und rot=700nm festgelegt [88].

In der Mikroskopsimulation bedeutet die Einbeziehung der Wellenlänge eine Skalierung des k -Raumes. Da die Apertur im Mikroskop ortsfest ist, werden unterschiedliche Bereiche aus den Fourierspektren ausgewählt. Äquivalent zur Skalierung des k -Raumes ist daher eine Skalierung der Aperturgröße und, wenn die Beleuchtung nicht senkrecht zur Oberfläche erfolgt, der Aperturposition notwendig. Für die im Folgenden zu diskutierenden Bilder wurde daher nach der Fouriertransformation der Ausgangsfläche für jede der drei Grundfarben eine andere Apertur verwendet, und für jede Farbe einzeln das Realraumbild berechnet. Die gewonnenen Realraumbilder wurden schließlich im RGB-Farbraum inkohärent überlagert. Die Aperturgrößen- und Positionen wurden so gewählt, daß sie ungefähr der experimentellen Situation von Abb. 5.1 bei einer Beleuchtung unter 45° entsprechen.

Das Ergebnis der Simulation ist in Abb. 5.3 an zwei Beispielen gezeigt. Die Serie (a) zeigt die Simulation an einem perfekten Gitter, Serie (b) entspricht einem statistisch gestörten Gitter. Die Teilbilder (a1) und (b1) zeigen jeweils die Ausgangsflächen. Von (a2) bis (a5) und (b2) bis (b5) wurde von Bild zu Bild die Aperturgröße jeweils um einen Faktor zwei verkleinert. Das perfekte Gitter wird bei großer Apertur von dem "Mikroskop" sehr gut abgebildet (a2). Es treten keine Farbfehler auf. Bei (a3) sind bereits Abbildungsfehler durch höhere Ordnungen im Fourierspektrum zu erkennen, bis schließlich bei noch kleinerer Apertur (a4) nur noch die erste Ordnung analysiert wird. Das Rechteckgitter wird als Sinusfunktion abgebildet. Farbfehler treten erst auf, wenn die erste Ordnung für alle Farben nicht mehr in die Apertur passt (a5). Es ergibt sich dann eine gleichmäßige Färbung des Bildes, da die erste Ordnung im Fall des perfekten Gitters (mit periodischen Randbedingungen) nahezu punktförmig ist. Es ist daher möglich, durch Variation des Einfallswinkels die Farbe des Bildes von

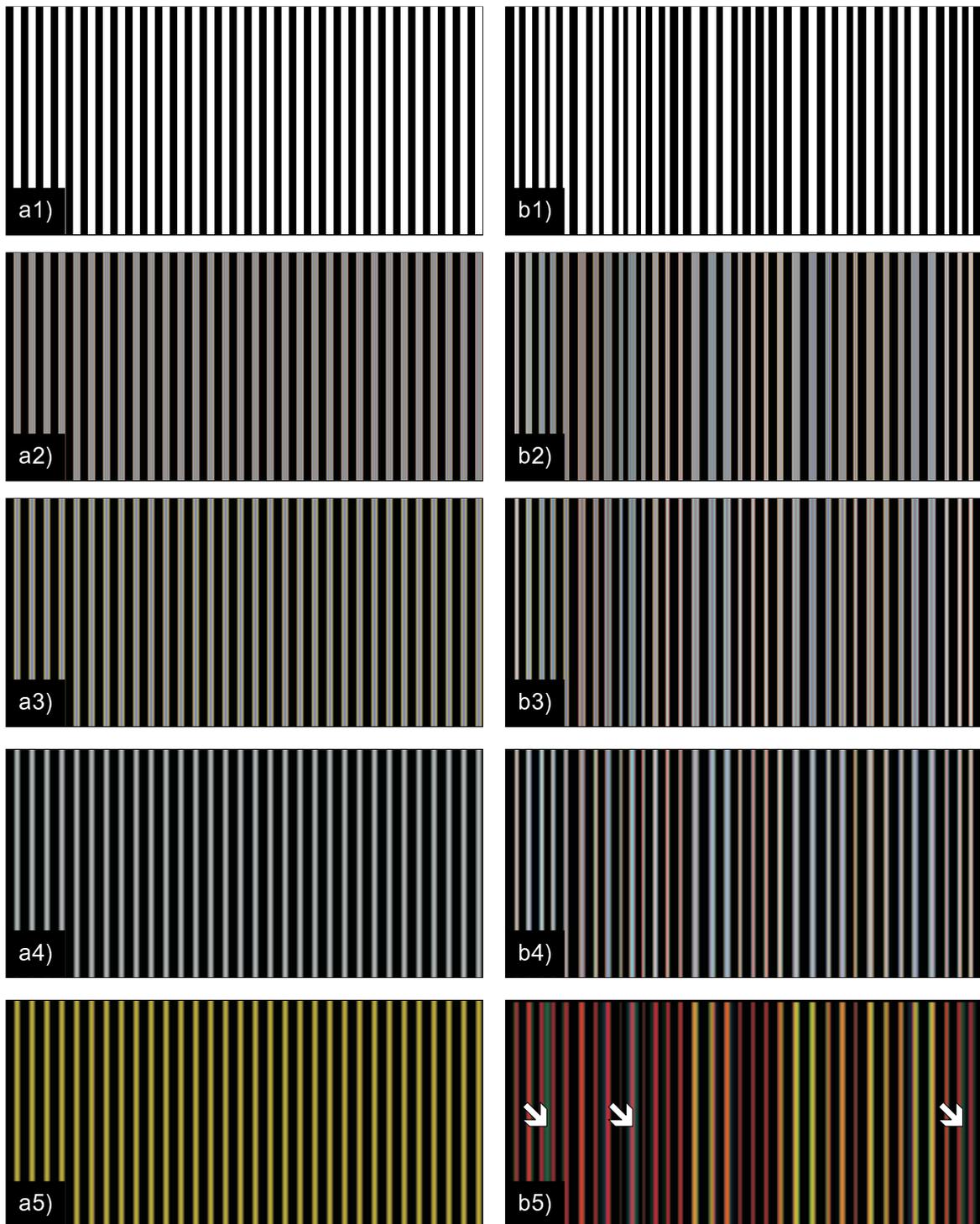


Abbildung 5.3: Simulierte Mikroskopbilder bei unterschiedlichen Aperturen. a) perfektes Gitter, a2)-a6) Apertur wird verkleinert. b) gestörtes Gitter: b1) Ausgangsfläche, b2)-b6): verschiedene Aperturen, wie in (a2)-(a6).

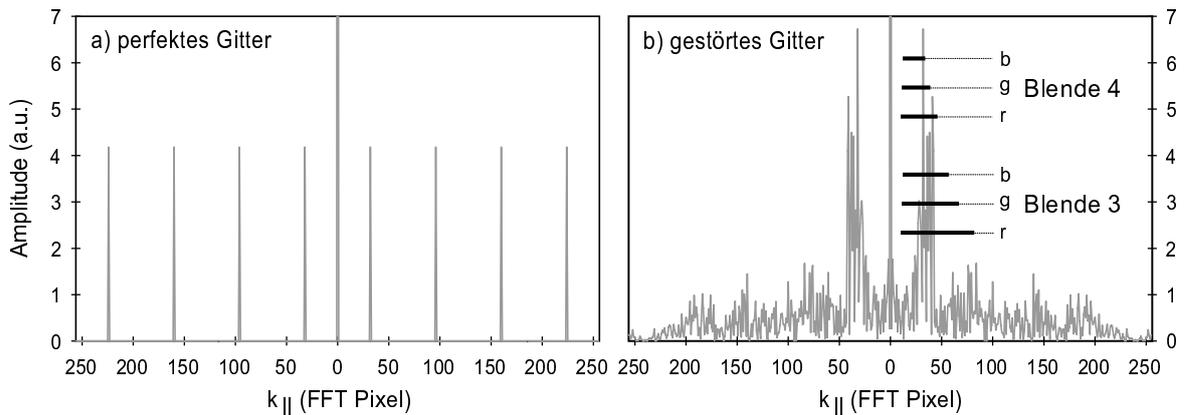


Abbildung 5.4: Fourierspektren der Gitter aus Abb. 5.3. Die Skalierung der Spektren entspricht in der Simulation der Beleuchtung mit blauem Licht. Für zwei Blenden sind Filterbereiche der unterschiedlichen Farben eingetragen.

rot über grün bis blau zu verändern, wenn die Apertur so klein ist, daß die erste Ordnung vollständig getrennt werden kann. Im Fall des gestörten Gitters (b1) stellt sich die Situation anders dar. Bereits bei der größten Apertur treten in der Abbildung leichte Farbsäume auf (b2), höhere Beugungsordnungen stören massiv das Bild (b3). Bei (b4) erscheint das Bild bereits bunt, und wird in (b5) unscharf. Hier ist eine deutliche Färbung zu erkennen, und das Bild stimmt an den gekennzeichneten Stellen nicht mehr mit dem Original überein. Eine weitere Verkleinerung der Apertur führt zu massiver Unschärfe und zu deutlichen Abweichungen des Bildes von dem originalen Gitter.

Da die Aperturen der Serie (a) zu denen der Serie (b) identisch sind, können die Einzelbilder direkt miteinander verglichen werden. Es fällt zunächst auf, daß Farbeffekte bei Serie (b) im Gegensatz zu (a) bereits bei viel größeren Aperturen auftreten. Dies liegt in der Unregelmäßigkeit des Gitters (b) begründet. In Abb. 5.4 sind die eindimensionalen Fourierspektren der Gitter aus Abb. 5.3 gezeigt. Im Unterschied zu Gitter (a), wo alle Beugungsordnungen extrem scharf “gepeakt” sind, bestehen die verbreiterten Ordnungen im Spektrum von Gitter (b) aus einer Vielzahl von einzelnen Maxima. Dies liegt zum Einen in dem Verlust der perfekten periodischen Randbedingungen begründet, zum Anderen aber darin, daß durch die Unregelmäßigkeit des Gitters kleine Abweichungen von der idealen Periodenlänge Intensität nahe der ursprünglichen Beugungsordnungen erzeugen. Wird das Gitter (b) mit farbigem Licht beleuchtet, so überlappen die Maxima erster Ordnung für die unterschiedlichen Farben aufgrund der großen Halbwertsbreite. Die Maxima für die einzelnen Farben können – im Gegensatz zum idealen Gitter (a) – nicht mehr voneinander getrennt werden, und das Bild wird bunt.

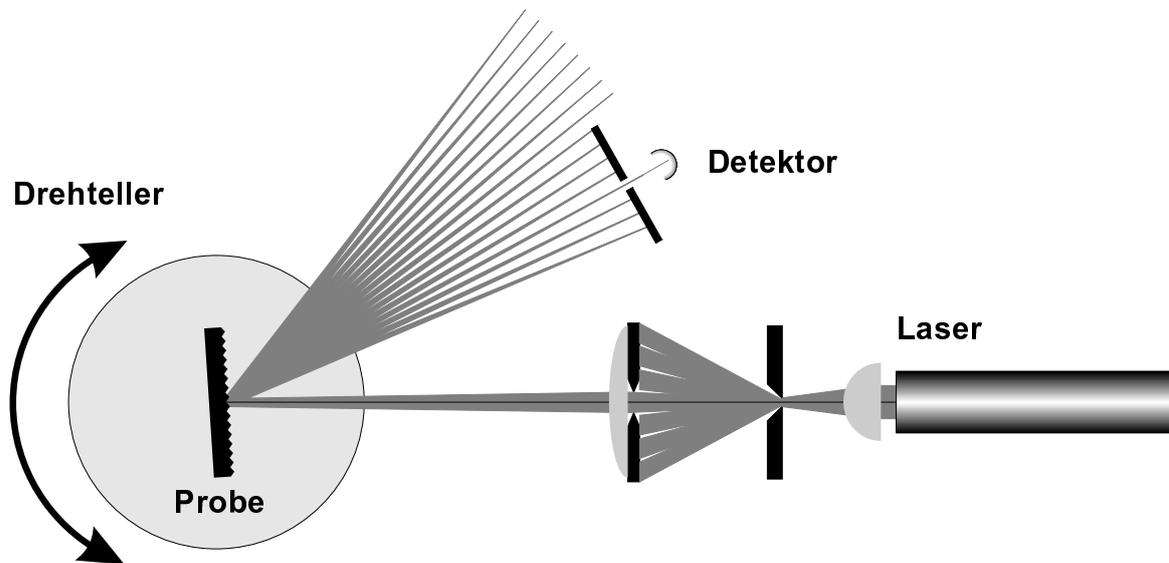


Abbildung 5.5: Experiment zur winkelaufgelösten Lichtbeugung

5.2 Winkelaufgelöste Lichtbeugung

Im vorigen Abschnitt wurde für das Auftreten von farbigen Streifen in den Mikroskopbildern eine gepeakte Intensitätsverteilung des gebeugten Lichtes angenommen. In diesem Kapitel kann diese Annahme experimentell bestätigt werden.

5.2.1 Experimenteller Aufbau

Hierzu wurde, außerhalb des Vakuums, ein Aufbau entsprechend der Schemaskizze in Abb. 5.5 realisiert. Im UHV durch Bedampfen mit Gold strukturierte Proben wurden auf einem Goniometer befestigt und mit einem HeNe Laser ($\lambda=632.8\text{nm}$) beleuchtet, die gebeugte Intensität wurde winkelaufgelöst von einem Computer mit einem Photodetektor aufgezeichnet. Die Strahlpräparation des Lasers erfolgte mittels eines Raumfilters zum Ausblenden unerwünschter Lasermoden und mit einem Teleskop.

Wie für ein Beugungsexperiment erforderlich wurde der Detektor, bestehend aus Eintrittsspalt, Graufilter und nachgeschalteter Photodiode, in die Fokusebene gestellt. Mit einem Schrittmotor konnte der Einfallswinkel des Laserstrahles auf der Probe computergesteuert mit einer Genauigkeit von $1/400^\circ$ eingestellt werden.

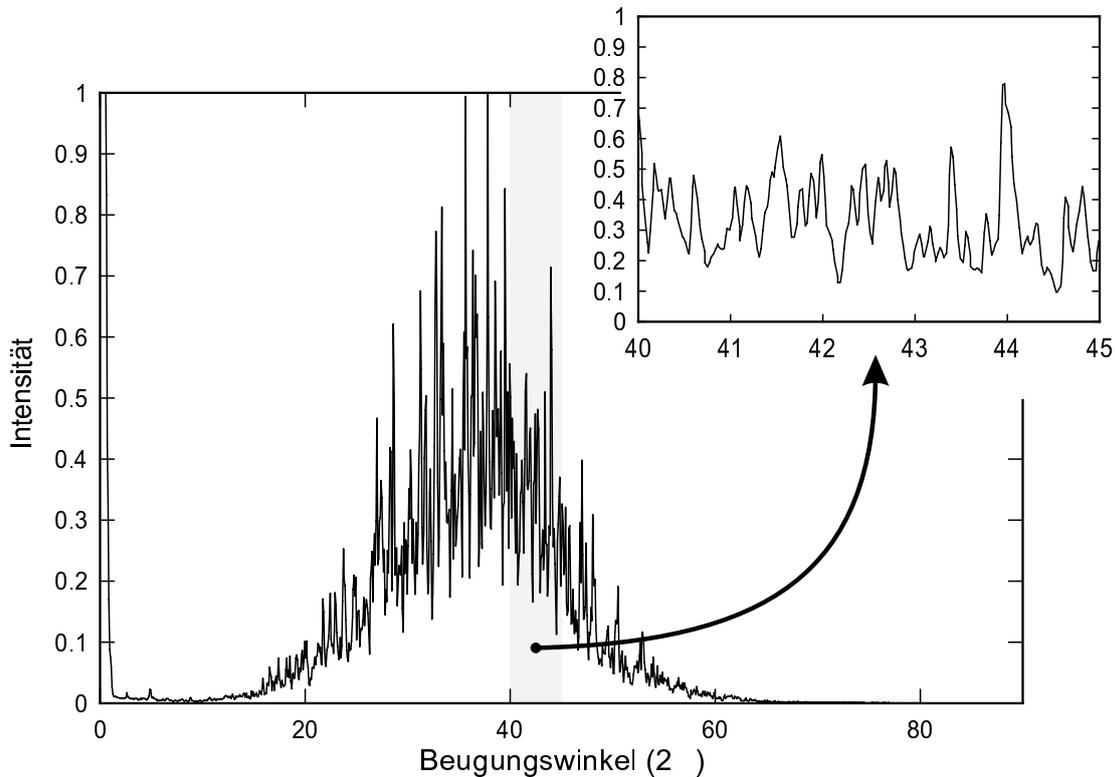


Abbildung 5.6: Gemessene Intensitätsverteilung mit dem Aufbau aus Abb. 5.5

5.2.2 Analyse der Ergebnisse

Die Proben wurden unter UHV Bedingungen präpariert und der Facettierungsprozeß mit SPA-LEED kontrolliert. Nach Transfer aus dem Vakuum und Beleuchtung mit dem Laser wird ein kompliziertes Beugungsmuster beobachtet, das aus einer Vielzahl von einzelnen Reflexen besteht. Die Anordnung dieser Reflexe ist stark anisotrop: in vertikaler Richtung liegen sie nahe der Ebene des Spiegelreflexes, horizontal wird dagegen fast der gesamte Halbraum vor der Probe ausgefüllt. Es zeigt sich (Kapitel 5.3.3), daß die Breite des Musters in vertikaler Richtung stark von den Präparationsbedingungen abhängt und bei höheren Adsorptionstemperaturen schmaler ist. Da mit dem Aufbau in Abb. 5.5 nur die horizontale Winkelverteilung aufgenommen werden kann, wurden ausschließlich Proben analysiert, bei denen die vertikale Verteilung der Reflexe aufgrund hoher Adsorptionstemperaturen zu einer feinen Linie entartete. In Abb. 5.6 ist ein Bereich des Beugungsmusters einer solchen Fläche aufgetragen. Die fehlende Hälfte des Spektrums ist zu der gezeigten spiegelsymmetrisch. Die Messung zeigt ein breites Maximum erster Ordnung bei 38° , entsprechend einer mittleren Periodenlänge n des Gitters von 500 nm. Um diesen Mittelwert erscheint das Beugungsmuster zunächst verwaschen. Dieser Eindruck täuscht jedoch, wie der Inset in Abb. 5.6 zeigt: das Beu-

5.3. IN-SITU EXPERIMENT



gungsspektrum weist eine Feinstruktur auf, die durch eine Vielzahl einzelner Reflexe erzeugt wird. Diese Feinstruktur ist ein Fingerprint der Probe und bei einem Nachmessen der Kurve exakt reproduzierbar.

5.3 In-situ Experiment

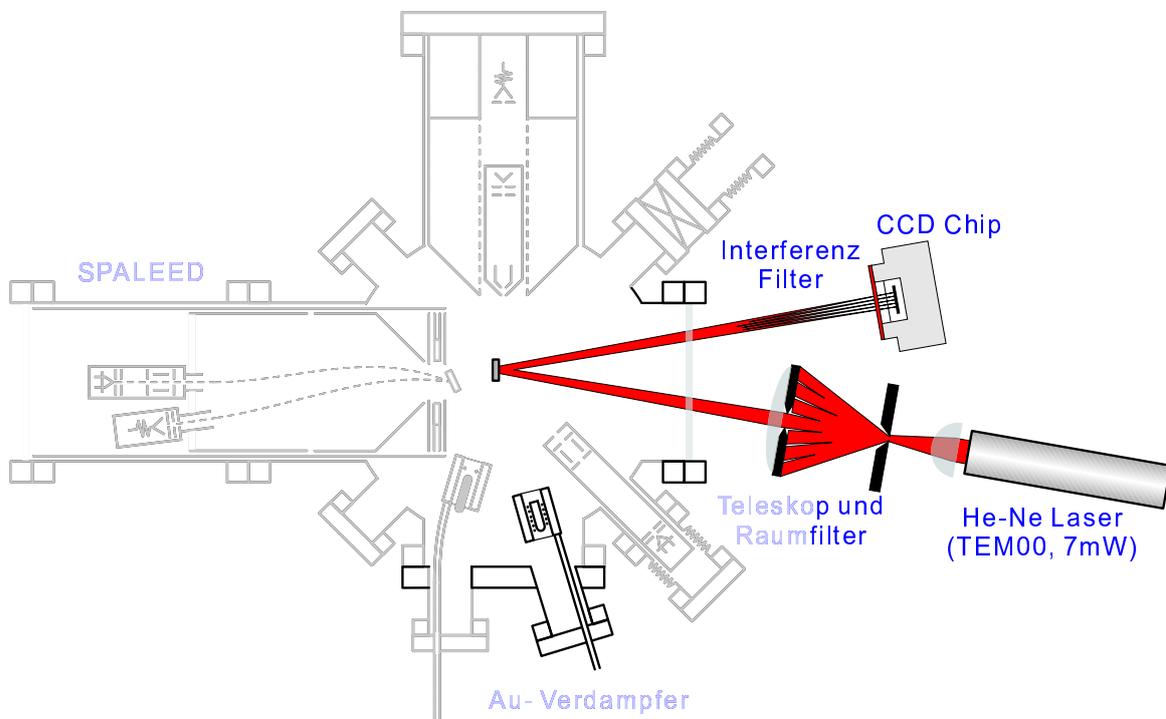


Abbildung 5.7: Experimenteller Aufbau für das in-situ Lichtbeugungsexperiment

Das Experiment aus Abschnitt 5.2.1 zeigt entscheidende Nachteile: Proben können nur *ex-situ*, d.h. außerhalb des Vakuums, vermessen werden, und es können nur Oberflächen analysiert werden, die bei hohen Temperaturen erzeugt wurden um die Reflexe in vertikaler Richtung auf einer Linie zu konzentrieren. Gerade die vertikale (“Breite”) der Strukturen variiert jedoch massiv mit der Temperatur, weshalb eine Auswertung dieser Information notwendig ist. Aus diesem Grund wurde ein weiteres Experiment aufgebaut, diesmal in Kombination mit einer UHV Kammer, bei dem es möglich ist, Proben mittels Lichtbeugung während des Facettierungsprozesses zu charakterisieren.

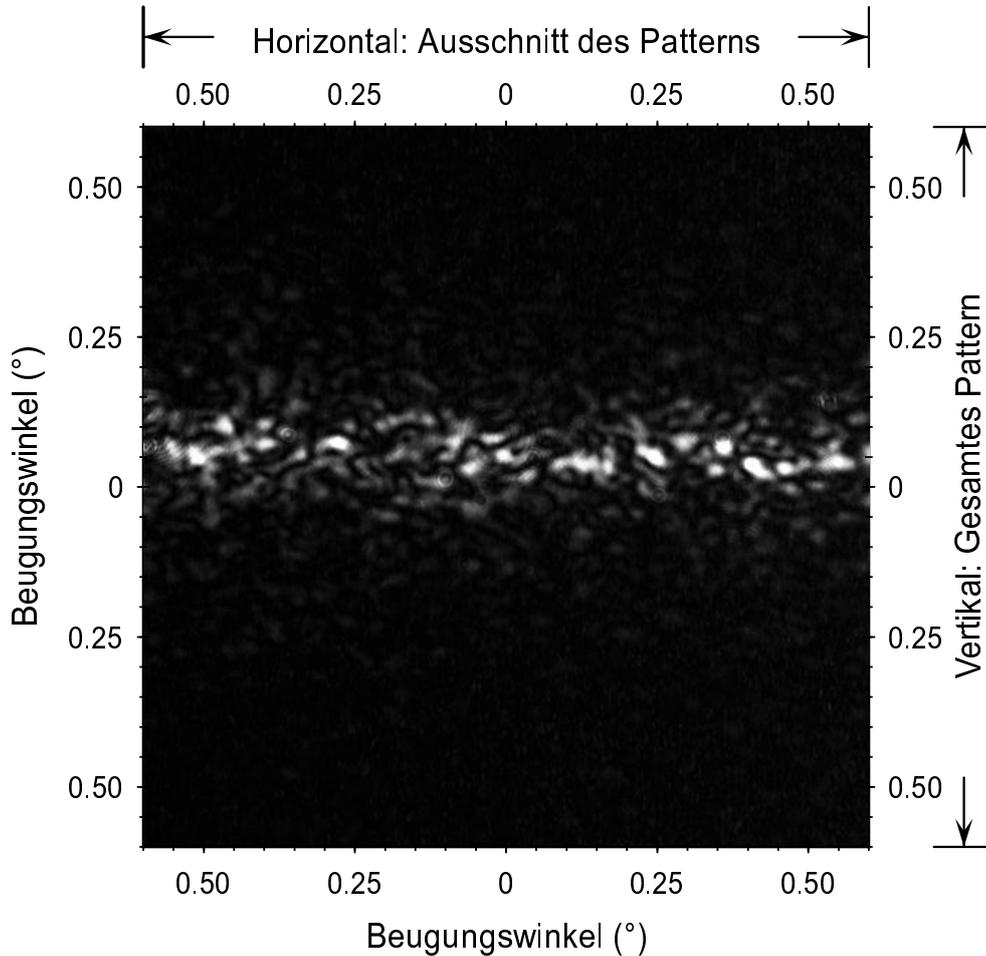


Abbildung 5.8: Typisches CCD Bild des *in-situ* Experimentes. Die Anordnung der Probe relativ zur Papierebene entspricht Abb. 5.1.

5.3.1 Experimenteller Aufbau

Der experimentelle Aufbau des *in-situ* Experimentes ist in Abb. 5.7 skizziert. Die Probe befindet sich im UHV und ist so justiert, daß sie gleichzeitig mit Gold bedampft und durch ein 8'' UHV-Fenster mit einem Laserstrahl beleuchtet werden kann. Der Laserstrahl wird, analog zum Aufbau in Abschnitt 5.2.1, von einem 5mW HeNe Laser erzeugt und mit einem Raumfilter und Teleskop präpariert. Das während der Bedampfung entstehende Beugungsmuster der Probenoberfläche gelangt durch das Fenster wieder aus dem Vakuum heraus und fällt auf den CCD Chip einer 16 Bit *slow-scan* CCD-Kamera der Firma Photometrics. Das Objektiv der Kamera wird entfernt, so daß der CCD Chip direkt als Photodetektor dient, wobei die Belichtungszeit über einen mechanischen Shutter eingestellt werden kann. Die Belichtungszeit liegt typischerweise bei wenigen Millisekunden. Die Bildfolgeschwindigkeit wird jedoch durch



das Auslesen des CCD Chips und den Transfer der Daten in den Computer auf ca. 3.5 Sekunden beschränkt.

Um Streulicht wirkungsvoll zu unterdrücken, wird die Öffnung der Kamera mit einem Interferenzfilter für die Laserwellenlänge verschlossen, zusätzlich wird die Kamera gekühlt, um elektrisches Rauschen des CCD Chips zu minimieren. Der CCD Chip selbst besteht aus 512×512 Bildpunkten mit einem Abstand von $19\mu\text{m}$. Bei den gegebenen geometrischen Abmessungen kann für den Spiegelreflex auf der Kamera ein gaußsches Strahlprofil mit einer Halbwertsbreite von 10 CCD Pixeln ($190\mu\text{m}$) detektiert werden — der erreichbare minimale Fokus wird durch die Qualität des (leicht gewölbten) UHV Fensters limitiert. Aus dem Abstand der Probe zur Kamera und der Größe des CCD Chips errechnet sich ein Beobachtungsbereich des Beugungsmusters von 1.2° , d.h. die erreichbare Winkelauflösung beträgt $1/40^\circ$.

Es muß an dieser Stelle betont werden, daß es mit dem auflösbaren Winkelbereich nicht möglich ist, das gesamte Beugungsbild aufzunehmen: in horizontaler Richtung erstreckt sich das Pattern typischerweise über einen Winkelbereich von über 40° . In dieser Richtung wird daher nur ein kleiner Bereich des Spektrums beobachtet, und insbesondere ist die wünschenswerte Messung der bedeckungsabhängigen Maximumposition in Abb. 5.6 nicht möglich. In vertikaler Richtung hingegen liegen alle Beugungsreflexe nahe der Ebene des Spiegelreflexes. Dieser Teil des Beugungsbildes kann daher von der Kamera vollständig aufgenommen werden. Eine typische CCD Aufnahme in der beschriebenen Geometrie ist in Abb. 5.8 gezeigt. Die Vielzahl der einzelnen Reflexe wurde bereits im vorigen Abschnitt erwähnt, allerdings wurde dort nur die Verteilung in horizontaler Richtung betrachtet. Hier gestaltet sich die Analyse schwieriger, auch mit dem Hintergrund, daß wesentliche Anteile der gebeugten Intensität nicht aufgezeichnet werden.

5.3.2 Integrale Intensität des Patterns

Die Entwicklung des Lichtbeugungssignal einer Probe im UHV kann nun direkt, während der Au-Deposition verfolgt werden. Das Ergebnis einer solchen Messung stellt eine Reihe von CCD Daten dar, deren Analyse auf verschiedene Weise möglich ist. Da alle Bilder einer Serie stets unter gleichen Bedingungen aufgenommen werden, ist es möglich, diese Bilder direkt miteinander zu vergleichen. Außerdem können die gemessenen Intensitäten jedes Bildes integriert werden. Der Integralwert ist näherungsweise proportional zur gesamten gebeugten Intensität, wenn der systematische Fehler durch das Ignorieren eines Großteils des Beugungsmusters vernachlässigt wird.

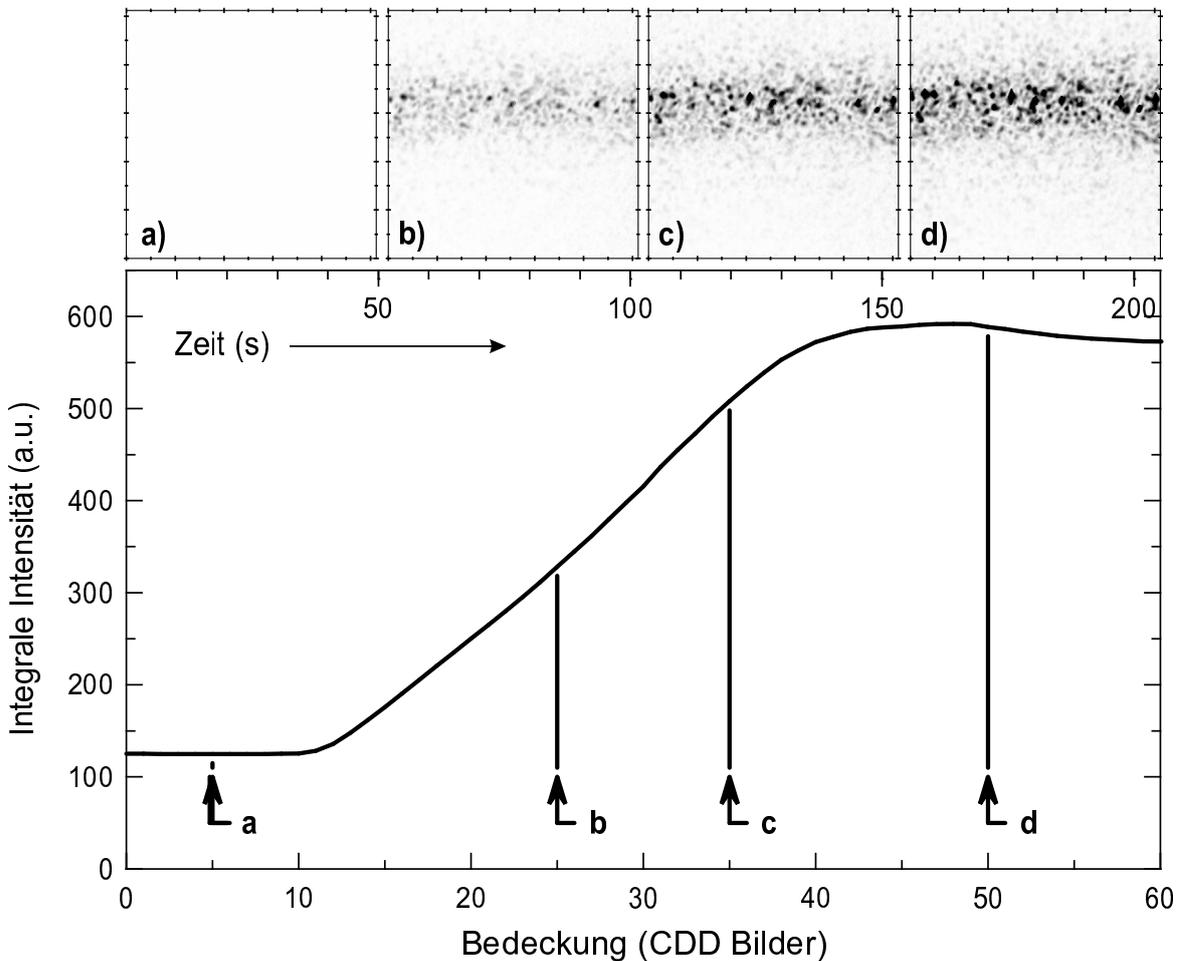


Abbildung 5.9: Integrale Intensität des Beugungsmusters während der Au Deposition. a) Vor Kondensation der Terrassen ist keine meßbare Intensität vorhanden. b),c) Die Intensität des Musters steigt mit der Bedeckung, die Feinstruktur ändert sich kaum. d) Endzustand und Schließen des Shutters. Der Intensitätsabfall nach (d) beruht auf Au Desorption nach Schließen des Shutters.

Für eine Substrattemperatur von 825°C ist in Abb. 5.9 die gemessene integrale Intensität über der Adsorptionszeit aufgetragen. Zusätzlich sind zu den markierten Stellen (a) bis (d) der Meßkurve die originalen CCD Aufnahmen gezeigt. Zu Beginn der Deposition wird am Ort der CCD Kamera ausschließlich Untergrundintensität detektiert (a). Nach Erreichen einer kritischen Bedeckung beginnt sich das Lichtbeugungsmuster zu formieren, was sich durch einen Intensitätsanstieg in dem Verlauf der integralen Intensität nach ca. 40 Sekunden Depositionszeit äußert. Mit steigender Bedeckung verhält sich die Lichtbeugungsintensität äquivalent zur integralen Intensität der SPA-LEED Terrassenreflexe in Abb. 4.9 (a). Die Intensität steigt zunächst über (b) und (c) linear an, flacht dann ab und erreicht schließlich ihren Sättigungswert. Nach Schließen des



Shutters (d) beginnt der Desorptionsprozeß und die integrale Intensität nimmt wieder ab.

Ein Vergleich der Einzelaufnahmen (a) bis (d) zeigt, daß nach dem ersten Auftreten des Patterns in (b) keine wesentliche Veränderung des Beugungsmusters mehr auftritt. Es erscheint zunächst, als würde das Beugungsbild nur an Intensität gewinnen, die “Feinstruktur” sich jedoch nicht verändern. Dies ist nicht ganz korrekt: werden die Einzelbilder mit einer geeigneten Software zu einem Film zusammengesetzt, so sind kleine Bewegungen der Einzelreflexe während des ersten Stadiums der Facettierung zu erkennen. Wie durch Vergleich der Abbildungen 5.9 (b) bis (d) erkennbar wird, sind diese Variationen jedoch so klein, daß Unterschiede in den Bildern nur mit Mühe gefunden werden können. Die prinzipielle Gestalt des Lichtbeugungsmusters, definiert durch die einzelnen Reflexpositionen, wird während der Kondensationsphase festgelegt, während die Reflexintensitäten durch einen anderen Mechanismus bestimmt werden (Abschnitt 5.3.5).

5.3.3 Länge der Strukturen

Abhängig von der Adsorptionstemperatur ändert sich die Form des Beugungsmusters erheblich. Es wurde bereits angemerkt, daß bei hohen Temperaturen nahezu alle Reflexe auf einer Linie liegen. Dies war die Voraussetzung für die Datenanalyse in Abschnitt 5.2.1. Zu niedrigen Temperaturen hin wird das Beugungsmuster jedoch in vertikaler Richtung immer breiter. Dies ist in Abb. 5.10 für sechs verschiedene Adsorptionsexperimente mit Substrattemperaturen zwischen 800°C und 900°C gezeigt. Um den Kontrast zu maximieren, wurden für jede Temperatur Vorexperimente durchgeführt, in denen die Intensität des Beugungspatterns mit Graufiltern an die Empfindlichkeit der CCD Kamera angepaßt und die Belichtungszeit der Kamera optimiert wurde. Aus diesem Grund sind die Skalierungen der Bilder in Abb. 5.11 unterschiedlich und die Intensitäten können nicht direkt miteinander verglichen werden.

Nur mit Mühe zu erkennen ist das Beugungsmuster nach einem Adsorptionsexperiment bei 800°C (a). Die Verteilung der Reflexe ist in vertikaler Richtung extrem breit und die Reflexe weisen extrem wenig Intensität auf. Die Verstärkung ist so hoch, daß bereits leichte Schlieren auf dem CCD Chip abgebildet werden (unten rechts). Bei 810°C (b) sind diese nicht mehr zu erkennen. Die Intensität des Patterns ist deutlich stärker, zusätzlich ist die Verteilung in vertikaler Richtung schmaler geworden. Diese Tendenz setzt sich in den Experimenten (c) bis (e) weiter fort: Die Intensität steigt weiter an (und ist durch Graufilter abgeschwächt worden), die Verteilung wird immer schmaler, bis nahezu alle Reflexe auf einer Linie liegen (f).

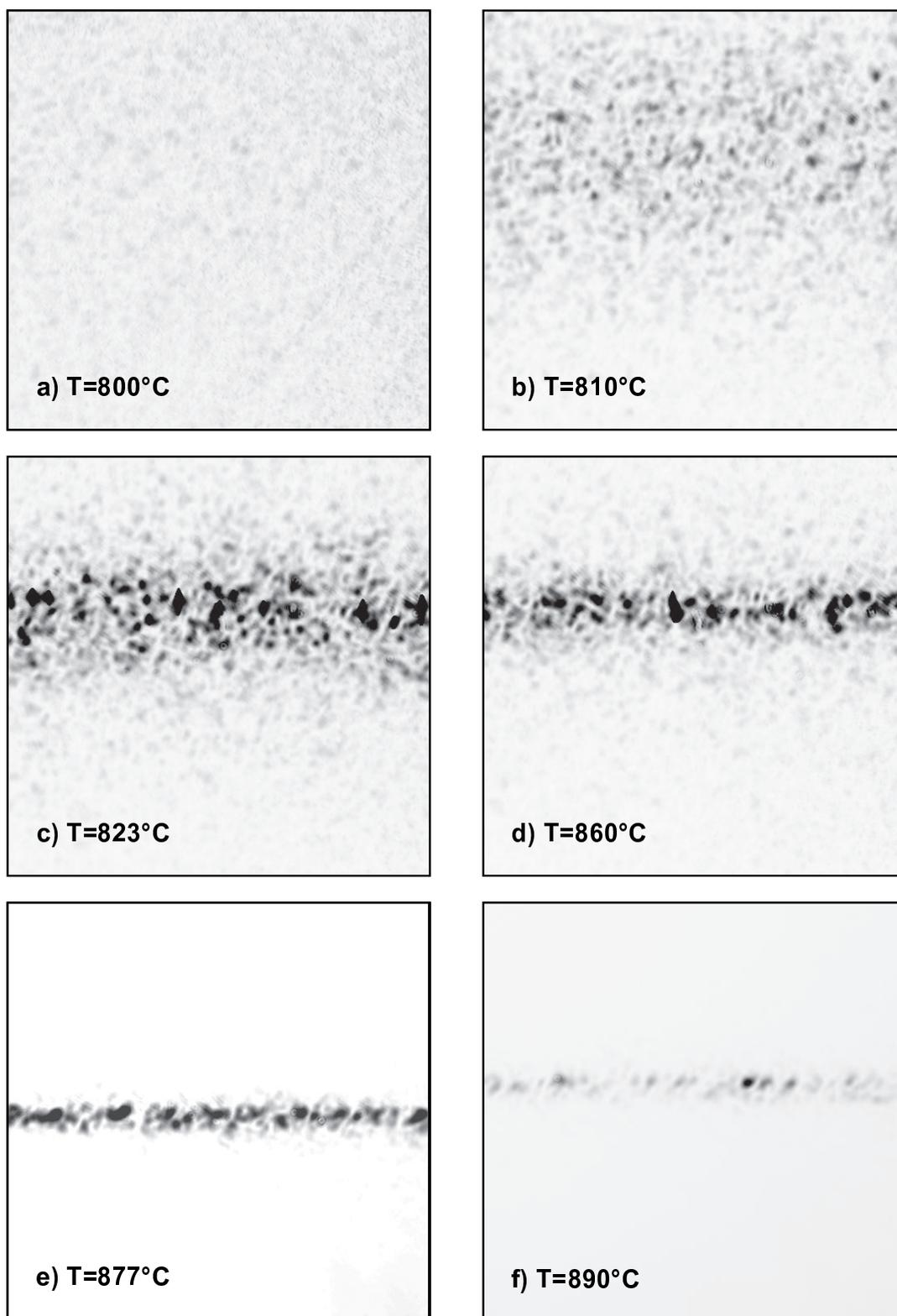


Abbildung 5.10: Breite des Beugungsmusters in Abhängigkeit von der Temperatur.

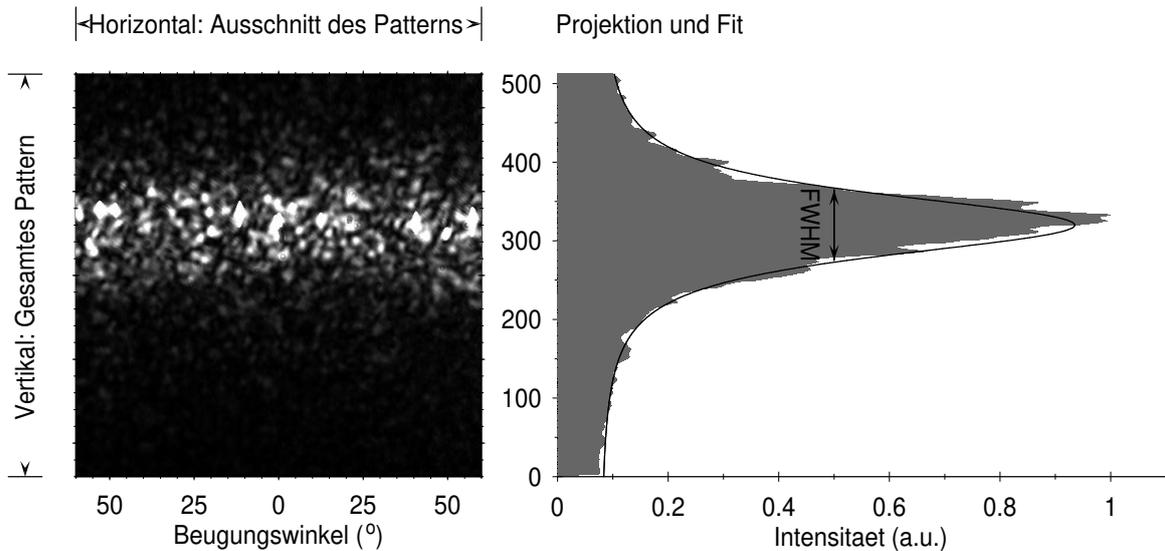


Abbildung 5.11: Bearbeitung der CCD Daten. Die Rohdaten (links) werden zunächst in horizontaler Richtung in eine Intensitätsverteilung umgerechnet (rechts, grau unterlegt) und durch Mittelung geglättet. Für die weitergehende Auswertung wird nur noch die Halbwertsbreite einer angepaßten Lorentzkurve verwendet (rechts, Linienzug).

Für eine quantitative Auswertung dieser Daten ist es erforderlich, aus den CCD Bildern durch Projektion in horizontaler Richtung eine Intensitätskurve zu generieren, so wie es in Abb. 5.11 dargestellt ist. Der grobe Verlauf der Projektion entspricht einer Lorentzkurve mit zusätzlichen, von der Intensität einzelner Reflexe abhängigen Nebenmaxima. Diese Maxima können jedoch durch Mittelung soweit beseitigt werden, daß sie den folgenden Anpassungsprozeß nicht behindern. Schließlich ist die Halbwertsbreite der angepaßten Kurve der eigentlich interessierende Meßwert. Diese Zahl ist ein Maß für die Länge der Terrassen (vgl. Abb. 5.1), im Gegensatz zu dem Experiment aus Kapitel 5.2.1, in dem die Breite der Terrassen, d.h. die Gitterperiode, bestimmt wurde.

Auch wenn für die Anpassung der Daten eine Lorentzkurve verwendet wurde, so ist dies nicht notwendigerweise erforderlich, da die Streuung der Daten und die Störungen durch Nebenmaxima auch beispielsweise die Anpassung einer Gaußfunktion erlauben. In der Praxis zeigt sich jedoch, daß die mittlere Abweichung der Daten von einer Lorentzkurve geringer ist als die Abweichung von der Gaußkurve, weshalb in der vorliegenden Arbeit die Lorentzfunktion gewählt wurde. Wegen der massiven Bearbeitung der Rohdaten vor dem eigentlichen Fitvorgang kann hieraus jedoch nicht unbedingt auf ein Verteilungsmodell geschlossen werden.

Um aus Daten entsprechend der Abb. 5.11 reale Größen abzuleiten, müssen die Halb-

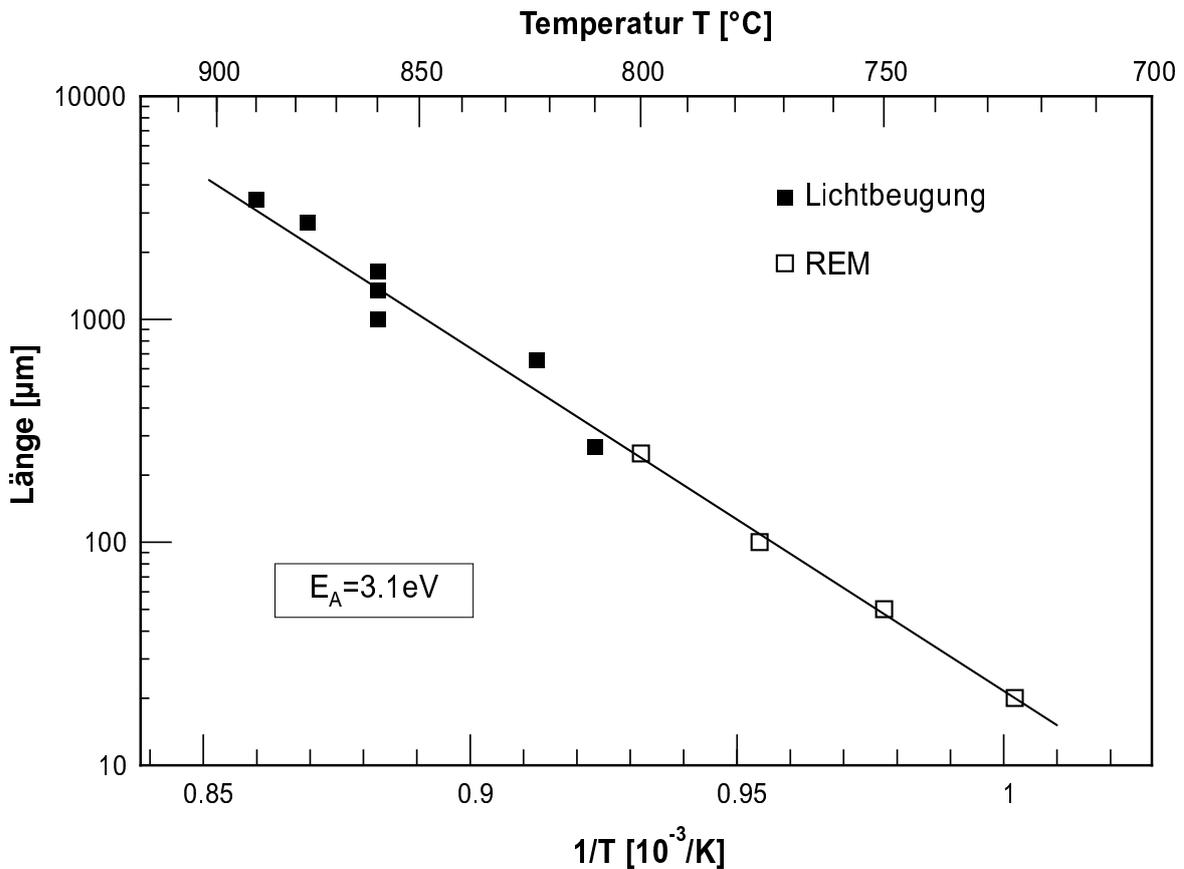


Abbildung 5.12: Länge der Terrassen in Abhängigkeit von der Temperatur. Aus der Arrhenius Darstellung ergibt sich eine Aktivierungsenergie von 3.1 eV.

wertsbreiten der angepaßten Lorentzkurven in reale Längen umgerechnet werden. Da die Verteilung der Terrassen auf der Oberfläche jedoch nicht bekannt ist, kann dies nur über Modellannahmen erfolgen. Es sollen im Folgenden drei unterschiedliche Ansätze diskutiert werden.

Geometrische Verteilung

Es liegt nahe, zur Auswertung der Lichtbeugungsdaten zunächst eine Analyse äquivalent zur Auswertung von SPA-LEED Daten durchzuführen. Da die gemittelten Profile keine Satellitenreflexe aufweisen, sondern eine Lorentzkurve die Daten gut beschreibt, sollte eine geometrische Verteilung auf das System anwendbar sein. Für die hier zu verwendende eindimensionale Betrachtung folgt [40]

$$I(k_{||}) = \frac{2}{\kappa^2 + k_{||}^2} \quad \text{mit} \quad \kappa = \frac{2}{\bar{l}} \quad (5.1)$$



Hierbei gibt $\bar{\Gamma}$ die mittlere Größe der nicht wechselwirkenden Streuer an. $\bar{\Gamma}$ kann aus der Bedingung $I(k_{\parallel}) = 1/2 \cdot I(0)$, d.h. aus der Halbwertsbreite der Lorentzkurve bestimmt werden. Die Halbwertsbreite ist demnach mit der mittleren Terrassengröße verknüpft wie $\bar{\Gamma} = 4/\text{FWHM}[1/\text{Å}]$. Für die Lichtbeugung berechnet sich FWHM aus dem Beugungswinkel des Experimentes, d.h. dem Abstand Probe–Detektor l und der Halbwertsbreite $2D$ auf dem CCD Chip. Einsetzen der Wellenlänge des HeNe Lasers liefert: $\text{FWHM} = 2\pi/\lambda \cdot 2 \cdot D/l$. Unter Annahme einer geometrischen Verteilungsfunktion können die Realraumgrößen daher gemäß der Gleichung

$$\bar{\Gamma} = \frac{1}{\pi} \cdot \lambda \frac{l}{D} \quad \sim \quad 0.32 \cdot \lambda \frac{l}{D} \quad (5.2)$$

berechnet werden.

Einfachspalt

Sind die Terrassen so groß, daß Interferenzeffekte zwischen ihnen nahezu vernachlässigbar sind, so sollte die gemessene Intensitätsfunktion durch eine inkohärente Überlagerung der Beugungsmuster von mehreren Einfachspalten gegeben sein. In diesem Fall stimmt die bestimmte Halbwertsbreite des Beugungsmusters mit der Halbwertsbreite des 0. Maximums eines Einfachspaltes überein. Es gilt die Gleichung [89]

$$I = I_0 \cdot \frac{\sin^2 \delta}{\delta^2} \quad \text{mit} \quad \delta = \frac{2\pi s}{\lambda} \sin \varphi \quad (5.3)$$

Im Gegensatz zum vorigen Abschnitt, in dem das Modell durch eine Verteilungsfunktion beschrieben wurde tritt hier, anstelle einer mittleren Terrassengröße $\bar{\Gamma}$, nur die Spaltbreite s auf. Der Beugungswinkel ist mit $\varphi = l/D$ bezeichnet.

Zur Berechnung der Halbwertsbreite reduziert sich das Problem auf die Lösung der Gleichung $\delta = I^{-1}(1/2)$. Das Ergebnis lautet

$$s \sim 0.44 \cdot \lambda \frac{l}{D} \quad (5.4)$$

Zunächst fällt auf, daß dieser Wert sich nur wenig von dem Modell der geometrischen Verteilung unterscheidet. Beide Modelle, das Modell der geometrischen Verteilung sowie das Einfachspaltmodell, widersprechen jedoch der beobachteten Feinstruktur des Beugungsmusters. Da das Beugungsbild eines Spaltes vollkommen symmetrisch aufgebaut ist, sagt dieses Modell eine Spiegelsymmetrie der Daten in Abb. 5.10 in der Horizontalen vorher. Diese Bedingung ist offensichtlich nicht erfüllt. Die inkohärente Überlagerung vieler Einfachspalte vernachlässigt die Interferenzterme zwischen den Terrassen, die zur Erklärung des Beugungsmusters notwendig sind.

Interferenz zwischen je zwei Terrassen

Sind nur zwei Terrassen auf der Probe vorhanden, so wirken diese wie ein Doppelspalt mit Abstand s^0 . Durch Hinzufügen einer weiteren Terrasse tritt eine neue charakteristische Länge auf — eine exakte Wiederholung der Gitterperiode durch die dritte Terrasse ist sehr unwahrscheinlich. Neben dem Gitterabstand s^0 müssen daher zusätzlich die Längen s^1 und s^2 berücksichtigt werden, die den Abstand der dritten Terrasse zu den bereits auf der Probe vorhandenen angeben. Prinzipiell berechnet sich das Beugungsspektrum aus der kohärenten Überlagerung aller Kombinationsmöglichkeiten (Paarkorrelation). Für diese Berechnung müßte jedoch die Verteilungsfunktion der Terrassen im Ortsraum genau bekannt sein.

Als eine sehr einfache Näherung der Paarkorrelation sollen hier nur Interferenzterme zwischen nächsten Nachbarn berücksichtigt werden. Das Problem der Halbwertsbreitenumrechnung in eine Realraumgröße reduziert sich dann auf ein Doppelspaltproblem. Hierbei liegt das 0. Maximum in der Einfallsebene des Laserstrahls, von den 1. Maxima soll angenommen werden, daß sie an den Halbwertsbreitenpositionen der Meßdaten liegen. Eine inkohärente Überlagerung vieler Beugungsbilder von Doppelspalten unterschiedlicher Gitterkonstante ergibt die Meßkurve. Die Gitterkonstante s berechnet sich zu

$$s = \lambda \frac{l}{D} \quad (5.5)$$

Hierbei ist l wiederum der Abstand des Detektors zur Probe und $2D$ entspricht der experimentell bestimmten Halbwertsbreite in μm . Dieses Modell hat den Vorteil, der Feinstruktur des Beugungsmusters nicht zu widersprechen. Sind zwei Spalte vertikal gegeneinander versetzt, so entsteht ein etwas verdrehtes Beugungsmuster.

Vermutlich ist bei tiefen Adsorptionstemperaturen, wenn die Strukturen klein sind und nahe beieinander liegen (Abb. 5.10 (a)-(d)), die Näherung des Doppelspaltes anzuwenden, während bei hohen Temperaturen, wenn alle Reflexe nahezu auf einer Linie liegen, ein fließender Übergang zu dem Einfachspaltmodell stattfindet. Da die Abweichung zwischen beiden Modellen jedoch “nur” einen Faktor zwei beträgt, soll hier ausschließlich das Doppelspaltmodell verwendet werden.

5.3.4 Auswertung der experimentellen Daten

Nach Einsetzen von λ und l sowie Umrechnung von D in Einheiten der CCD Kamera, ergibt sich aus Gl. 5.5 die für das Experiment spezifische einfache Formel: $s = 31.6\text{mm}/(\#\text{CCD Pixel})$ Mit dieser Gleichung ist es möglich, die temperatu-

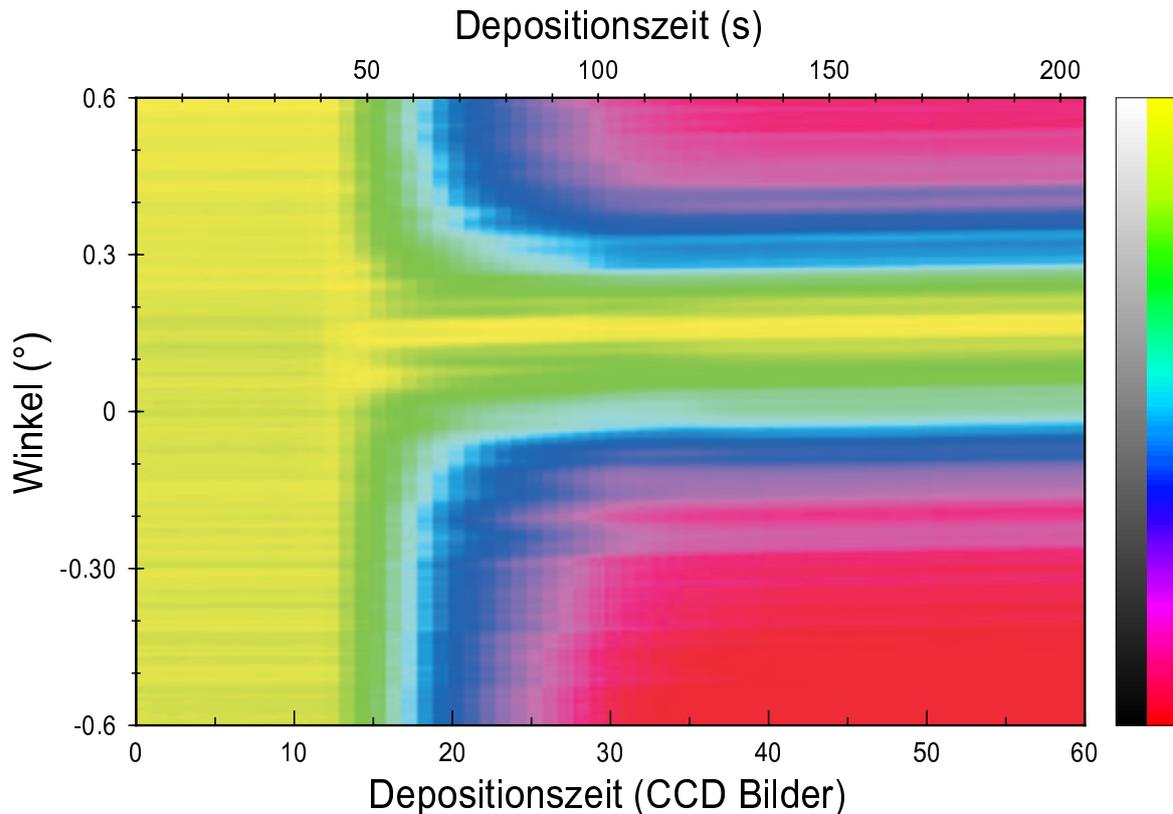


Abbildung 5.13: Zur Ausbreitungsgeschwindigkeit der Terrassen. Die Bearbeitung der CCD Aufnahmen erfolgte entsprechend Abb. 5.11, zusätzlich wurden die Profile auf ihre Maximalintensität normiert, um die Halbwertsbreiten vergleichen zu können.

abhängige Längenverteilung der Messung Abb. 5.10 zu bestimmen und in dem Arrhenius Graphen 5.12 darzustellen. Zusätzlich sind in das Diagramm die Strukturlängen der REM Aufnahmen aus Abb. 4.14 eingetragen. Alle Meßwerte lassen sich in der Arrhenius Darstellung sehr gut durch eine Gerade beschreiben, es gilt daher

$$s = s_0 \cdot \exp \left\{ -\frac{E_A}{k_B T} \right\} \quad (5.6)$$

mit einer durch die Steigung der Geraden bestimmten Aktivierungsenergie E_A von 3.1 eV. Außerdem rechtfertigt die gute Übereinstimmung von REM und Lichtbeugungsergebnissen im Nachhinein den verwendeten Algorithmus der Auswertung.

5.3.5 Geschwindigkeit der Strukturen

Die Breitenverteilung des Beugungsmusters in vertikaler Richtung hängt jedoch nicht nur von der Adsorptionstemperatur ab, sondern ändert sich, bei konstanten Positionen der Einzelreflexe, während der Adsorption. Die ist in Abb. 5.13 gezeigt. Für diese

Abbildung wurden die CCD Bilder nach dem in Abschnitt 5.3.3 erläuterten Verfahren erneut projiziert und gemittelt. Anschließend wurden die erhaltenen Profile auf eine feste Maximalintensität normiert. Der zeitliche Verlauf der Halbwertsbreite kann daher direkt aus Abb. 5.13 abgelesen werden. Um den Kontrast der Darstellung zu optimieren, wurde eine Falschfarbenpalette gewählt. Die Zuordnung der Graustufen zu der Palette ist am rechten Bildrand gezeigt, so entspricht niedrigste Intensität der Farbe rot, die höchste Intensität wird gelb dargestellt.

Zu Beginn der Deposition kann am Ort der CCD Kamera noch keine Intensität detektiert werden. Durch die Normierung auf Maximalintensität wird der gemessene Untergrund, der z.B. durch Reflexion des Laserstrahls am UHV Fenster oder durch Schlieren auf dem CCD Chip entsteht, jedoch so stark überhöht, daß in den ersten Profilen der Messung eine Struktur zu erkennen ist. Diese Struktur ist daher meßtechnisch bedingt und bleibt erwartungsgemäß während der ersten 40 Sekunden des Experimentes konstant. Nach dieser Zeit ist die kritische Bedeckung auf der Oberfläche erreicht und die Ausbildung des Phasengitters setzt ein. Es wird eine sehr breite Intensitätsverteilung beobachtet, die allerdings mit zunehmender Bedeckung immer schmaler wird. Nach 3 Minuten Depositionszeit ist der Endzustand erreicht und es kann keine weitere Veränderung des Beugungsmusters mehr detektiert werden. Die Fläche ist in (001) Terrassen und (119) Facetten zerfallen, wie in Kapitel 4 bereits beschrieben.

Es stellt sich die Frage, welche Eigenschaft des Phasengitters für die zeitliche Entwicklung der Halbwertsbreite verantwortlich ist. Zur Beantwortung ist die Entwicklung der Halbwertsbreite in Abb. 5.14 als doppelt logarithmische Darstellung über der Zeit aufgetragen. Es ist evident, daß die Halbwertsbreite zunächst einem Potenzgesetz folgt, bevor sich die Entwicklung verlangsamt und die Halbwertsbreite schließlich sogar wieder leicht ansteigt. Der für die Auswertung ausgewählte Datensatz entspricht demjenigen der Abb. 5.9. Durch Vergleich der beiden Graphen wird deutlich, daß die Gültigkeit des Potenzgesetzes nur direkt nach der ersten Keimbildung gegeben ist. Sobald die integrale Intensität in Abb. 5.9 von dem linearen Verlauf abknickt, gilt die folgende Beschreibung des Kurvenverlaufes nicht mehr.

Sei als Modellvorstellung zunächst eine einzelne Terrasse gegeben, die sich nach erfolgter Kondensation der (5×3.2) Rekonstruktion zum Zeitpunkt t_0 mit gleichmäßiger Geschwindigkeit v_0 ausbreitet. Dann gilt für die zeitabhängige Länge l_T dieser Terrasse: $l_T = v_0 \cdot (t - t_0)$ Mit Hilfe von Gleichung 5.5 kann aus dieser realen Länge l_T die erwartete Halbwertsbreite auf dem CCD Chip berechnet werden.

$$FWHM = 2\lambda \cdot \frac{l}{v_0(t - t_0)} \quad (5.7)$$



Dieses Ergebnis erklärt die Wahl der doppelt logarithmischen Darstellung in Abb. 5.14, denn eine angepaßte Funktion entsprechend der Gesetzmäßigkeit 5.7 ergibt dort genau einen linearen Verlauf (gestrichelt in Abb. 5.14). Aus den Fitparametern v_0 und t_0 sowie einem zusätzlichen Untergrundterm konnte die Ausbreitungsgeschwindigkeit v_0 zu $63 \mu\text{m/s}$ bestimmt werden. Dieser Wert stimmt sehr gut mit den Ergebnissen aus LEEM Untersuchungen überein, in denen für verschiedene Terrassen Geschwindigkeiten zwischen $2\mu\text{m/s}$ und $93\mu\text{m/s}$ beobachtet wurden. Einzelheiten des LEEM Experimentes sollen in Kapitel 8.1.1 diskutiert werden.

Die lineare Ausdehnung der Terrassen hat spätestens dann ein Ende, wenn deren Anzahl so zunimmt, daß eine Wechselwirkung der Terrassen untereinander auftritt. Dies führt zu einer Verlangsamung.

Weshalb die Halbwertsbreite zum Ende des Facettierungsprozesses sogar wieder leicht ansteigt, ist ohne Kenntnis der LEEM Studie nicht zu verstehen. Die Terrassen dehnen sich nicht nur in vertikaler Richtung aus, sondern auch geringfügig in horizontaler Richtung. Wenn die vertikale Ausdehnung durch das Zusammenstoßen zweier Terrassen gestoppt ist, findet ausschließlich horizontale Ausdehnung statt, und das Stufenband wird in (119) Facetten umgewandelt. Hierbei entstehen "Superkinken" (vergl. Abb. 8.6), die einerseits eine azimuthale Fehlorientierung der Proben kompensieren, andererseits jedoch die Korrelationslänge in vertikaler Richtung verkürzen: die Halbwertsbreite nimmt zu.

Es muß an dieser Stelle angemerkt werden, weshalb die Auswertung der Geschwindigkeiten nicht systematisch temperaturabhängig durchgeführt wurde. Es hat sich bei der Durchsicht der verschiedenen Bilderfolgen gezeigt, daß bei tiefen Temperaturen die Anzahl der kondensierenden Terrassen so groß ist, daß die Wechselwirkung quasi instantan mit der Kondensation einsetzt. Die sinnvolle Angabe einer Ausbreitungsgeschwindigkeit ist dann nicht mehr möglich.

Bei sehr hohen Temperaturen tritt ein anderes Problem auf. Bedingt durch die hohe Mobilität des Siliziums ist die Ausbreitungsgeschwindigkeit der Terrassen sehr hoch. Die Auflösung des Experimentes ist jedoch durch den Fokus des Lasers zum Einen und die Zeitauflösung der Kamera zum Anderen begrenzt. Dehnen sich die Terrassen beispielsweise mit einer Geschwindigkeit von $200\mu\text{m/s}$ aus, so ist die fokusbedingte Auflösungsgrenze von $s \sim 1.5 \text{ mm}$ bereits nach 8 Sekunden erreicht! In dieser Zeit wurden knapp 3 Bilder aufgenommen. Ein Potenzgesetz mit zwei freien Parametern ist dann sicherlich nicht mehr sinnvoll an den Kurvenverlauf anzupassen.

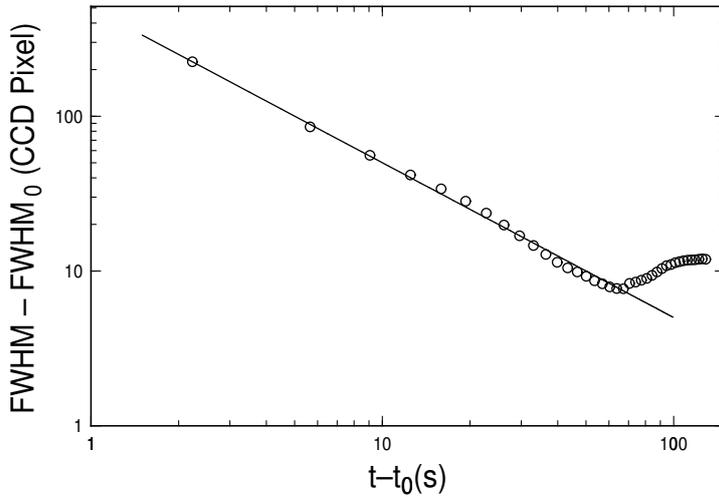


Abbildung 5.14: Zur Geschwindigkeit der Terrassen. Die Halbwertsbreite des Lichtbeugungsbildes ist in einem Log-Log Plot über der Zeit aufgetragen. Ein linearer Abfall entspricht in dieser Darstellung einer Audehnung der Terrassen mit gleichmäßiger Geschwindigkeit im Ortsraum.

5.4 Diskussion der Lichtbeugungsergebnisse

Während in Kapitel 4 der Verlauf der Facettierung auf mikroskopischer Skala analysiert wurde ist es mit Lichtbeugung möglich, das mesoskopische Verhalten der Probenoberfläche zu studieren. In dem vorliegenden Kapitel wurde nach der Erklärung der Farbigkeit der Mikroskopbilder die erhaltene Information auf verschiedene Arten analysiert. Diese gliedert sich in zwei Bereiche, je nach der Richtung, in der das Experiment empfindlich ist.

Aus der *ex-situ* Analyse in horizontaler Richtung können ausschließlich Informationen über die spektrale Verteilung gewonnen werden. Diese spektrale Verteilung weist neben einem Spiegelreflex ein deutliches erstes Beugungsmaximum auf, aus dessen Abstand zum Spiegelreflex die mittleren Terrassenabstände bestimmt werden können.

Die Möglichkeiten des *in-situ* Experimentes sind ungleich vielfältiger. Zunächst wurde die integrale Intensität der CCD Aufnahmen betrachtet, anschließend die temperaturabhängige Halbwertsbreite des Endzustandes untersucht und schließlich aus dem zeitlichen Verlauf der Halbwertsbreite auf eine lineare Ausbreitung der Terrassen in vertikaler Richtung geschlossen. Alle Informationen zusammen zeichnen ein Bild des Facettierungsprozesses, wie in Abb. 5.15 dargestellt.

Zu Beginn der Deposition wird das Gold in einem Gittergas auf der Oberfläche gebunden, eine morphologische Transformation findet weder auf atomistischer Skala (siehe Kapitel 4) noch auf makroskopischer Skala im Bereich der Laserwellenlänge statt. Zum Zeitpunkt (a) findet die Kondensation des Gittergases in der (5×3.2) Rekonstruktion statt und die ersten (001) Terrassen werden gebildet. Die Keimdichte hängt hierbei empfindlich von der Temperatur ab, denn die Anzahl der zu Beginn gebildeten Keime bestimmt, wie weit sich die Terrassen im Folgenden in vertikaler Richtung ausdehnen

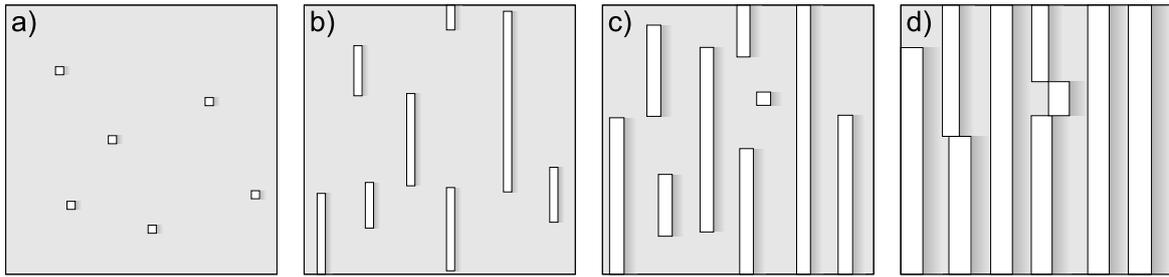


Abbildung 5.15: Zur Ausdehnung der Terrassen. a) Keimbildung b)-d) Ausdehnung der Terrassen und weitere Keimbildung. Den Schwerpunkt der Terrassen bildet zu jeder Zeit ihr Kondensationspunkt.

können, ohne sich zu begegnen. Bereits in der Keimbildungsphase wird daher die spätere endgültige Breite des Lichtbeugungsmusters festgelegt. Wegen Abb. 5.12 stellt die Keimbildung selbst einen thermisch aktivierten Prozeß mit einer Aktivierungsenergie von 3.1eV dar.

Nach der Kondensation der ersten Terrassen zum Zeitpunkt (a) in Abb. 5.15 dehnen sich diese in vertikaler Richtung mit gleichmäßiger Geschwindigkeit ($63\mu\text{m/s}$ bei 825°C) aus (b). In der Lichtbeugung äußert sich dies durch eine Verkleinerung der Halbwertsbreite des Beugungsbildes, während es mit SPA-LEED aufgrund der begrenzten Transferweite nicht möglich ist, diesen Effekt zu beobachten.

Die einzelnen Reflexe des Lichtbeugungsmusters bleiben jedoch, wie Abb. 5.9 (b) bis (d) zeigen, fast alle an festen Positionen, da nur eine Vergrößerung der Terrassen stattfindet, nicht aber eine Veränderung der mittleren Positionen. Kleinere Veränderungen des Beugungsbildes können jedoch durch Bildung von zusätzlichen Terrassen zu einem späteren Zeitpunkt der Facettierung erklärt werden (c). In Teilbild (d) ist der Endzustand erreicht: Die Terrassen sind so lang geworden, daß sie aneinanderstoßen, die ursprüngliche Ausdehnung mit gleichmäßiger Geschwindigkeit ist zum Stillstand gekommen, und die Halbwertsbreite des Patterns steigt sogar wieder an, da durch die Umwandlung des Stufenbandes in (119) Facetten Störungen in die zuvor sehr regelmäßige Struktur eingebracht werden (siehe hierzu Kapitel 8).



Kapitel 6

STM Untersuchungen

Im Gegensatz zu Abschnitt 4.2.2, in dem die Struktur der (5×3.2) Rekonstruktion mit Elektronenbeugung analysiert wurde und ein inkommensurables Strukturmodell vorgeschlagen wurde, sollen in diesem Kapitel Realraumbilder der (001) Terrassen mit atomarer Auflösung gezeigt werden, die das Vorhandensein einer inkommensurablen Anordnung der Atome ausschließen. Da LEEM Dunkelfelduntersuchungen in Kapitel 8 wiederum die Interpretation der LEED Daten unterstützen, besteht ein Erklärungsbedarf, wie das LEED Bild anhand der mit STM beobachteten Strukturelemente zusammengesetzt werden kann.

6.1 Die atomare Struktur der (5×3.2)

In Abb. 6.1 ist ein STM Bild der 4° vicinalen Si(001) Oberfläche nach Adsorption von Gold dargestellt. Das Bild zeigt einen (5×3.2) rekonstruierten Terrassenbereich einer Größe von 300\AA^2 . Die Orientierung der Probe ist aus technischen Gründen im Vergleich zu den LEED Bildern um etwa 45° gedreht, weshalb die $(1\bar{1}0)$ Richtung der Stufenkanten, parallel zu den dunklen Streifen in der STM Abbildung verläuft. Die dunklen Streifen entsprechen "Gräben" in der Oberfläche und stellen ein markantes Feature der (5×3.2) Rekonstruktion dar. Der Abstand der Gräben beträgt 19.2\AA , entsprechend einem 5-fachen Atomabstand in (110) Richtung. Im LEED führt diese Anordnung zu der beobachteten fünffachen Periodizität senkrecht zu den Stufenkanten. Nach einem Modell von Lin et. al. [90], die diese Struktur auf wohlorientierten Si(001) Flächen zuerst beobachteten, dienen die Gräben dem Abbau einer uniaxialen Verspannung von 17% in den Bereichen zwischen den Gräben.

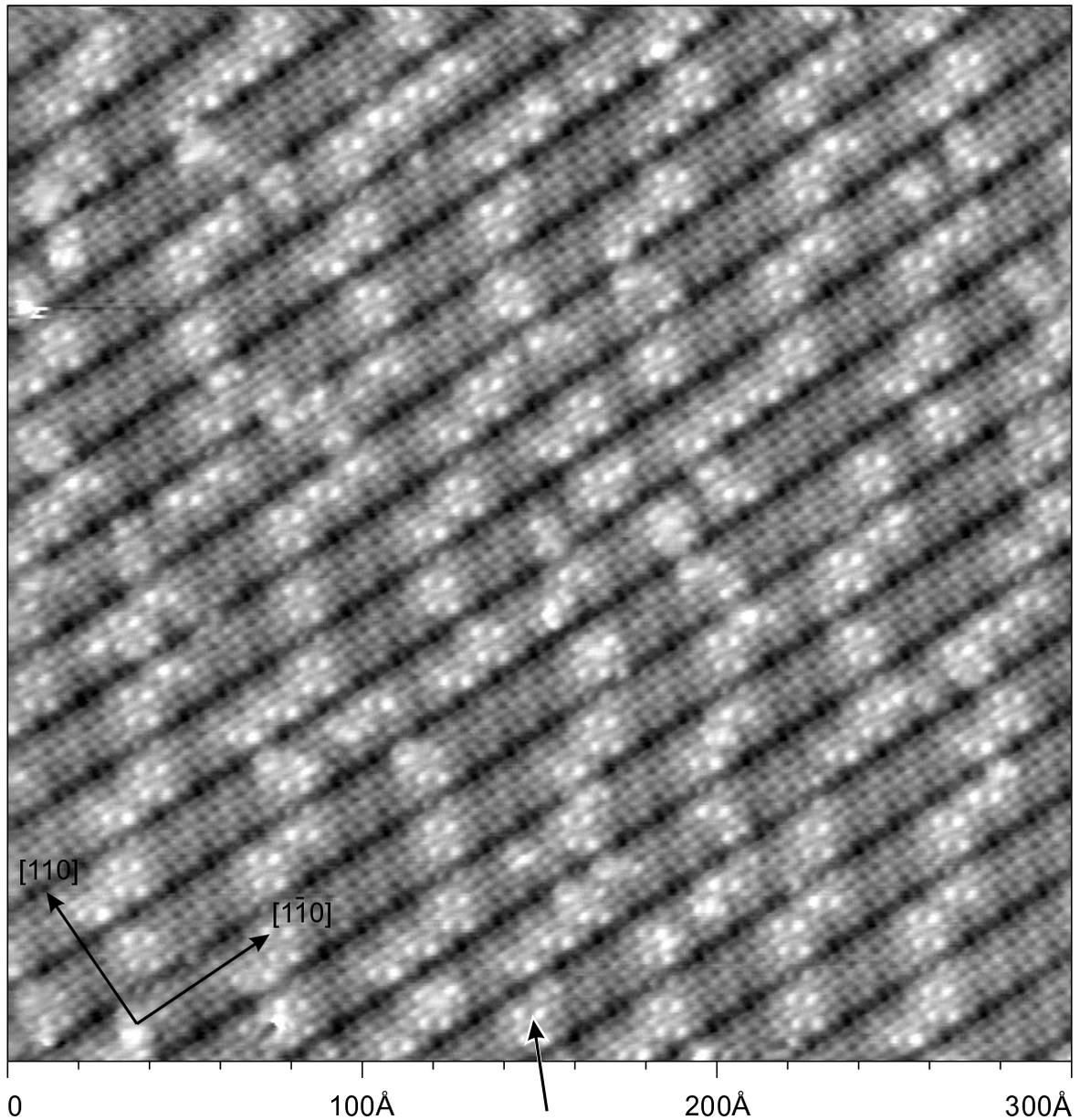


Abbildung 6.1: STM Bild der besetzten Zustände einer (5×3.2) rekonstruierten (001) Terrasse bei $U=-1.5\text{V}$ und $I=0.5\text{nA}$. Die Stufenkanten der Ausgangsfläche liegen parallel zu den dunkel abgebildeten Gräben. Die dunklen Bereiche entsprechen (5×3) rekonstruierten Bereichen, die hellen Bereiche bestehen aus $(\sqrt{29} \times 3)$ Einheitszellen. Die $(\sqrt{29} \times 3)$ Einheitszellen erzeugen einen Versatz in der Periodizität. Dies wird deutlich bei schräger Betrachtung des Bildes in der Pfeilrichtung.

Dort ist die Oberfläche aus zwei unterschiedlichen Strukturelementen zusammengesetzt, die in Abb. 6.1 dunkel und hell abgebildet werden. Die goldbedeckte Si(001) Oberfläche setzt sich nach einem Modell von Lin zusammen aus (5×3) Einheitszellen,

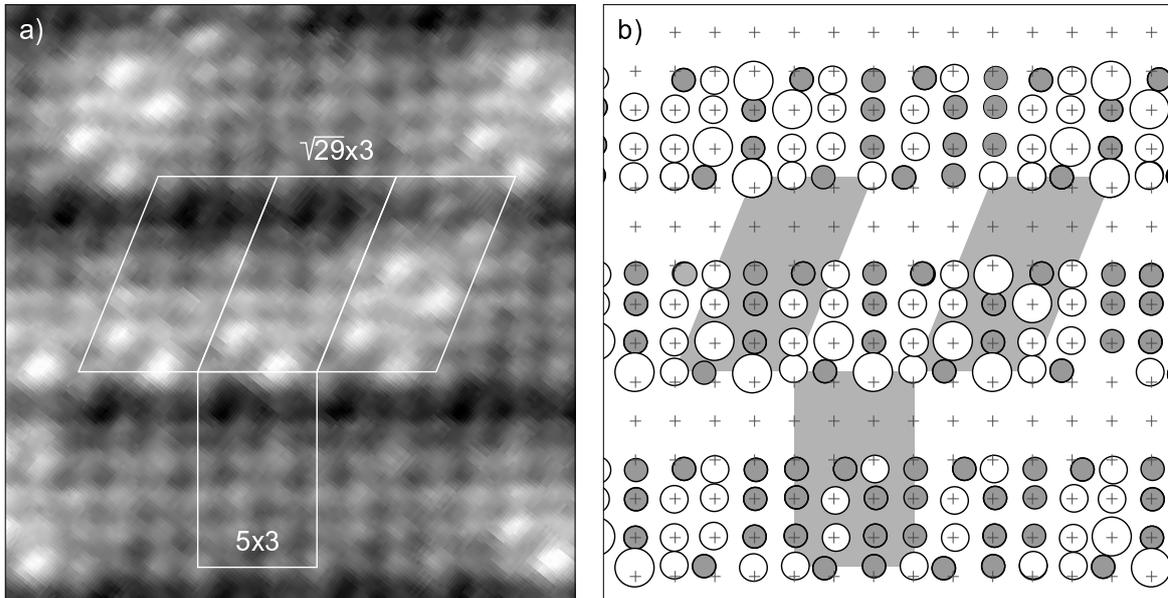


Abbildung 6.2: Definition der Einheitszellen. (a) Die $(\sqrt{29} \times 3)$ Einheitszellen sind gegenüber den (5×3) Einheitszellen um zwei Gitterkonstanten geschert. Zusätzlich sind sie mit zwei bzw. vier Adatomen pro Einheitszelle versehen. (b) Atomistisches Strukturmodell von (a), einem Vorschlag von Lin [90] folgend.

die in Abb. 6.1 dunkel erscheinen, und $(\sqrt{26} \times 3)$ Einheitszellen, die hell abgebildet werden. Die $(\sqrt{26} \times 3)$ Zellen sind an den hervorstechenden, in zweier- oder Vierergruppen auftretenden Adatomfeatures leicht zu erkennen. Es muß betont werden, daß diese beiden Strukturelemente niemals isoliert beobachtet werden konnten. Eine reine (5×3) oder eine reine $(\sqrt{26} \times 3)$ Rekonstruktion existiert auf der Si(001) Fläche nicht, sondern beide Strukturen treten ausschließlich gemischt auf.

Gegensätzlich zu dem Modell von Lin hat es sich bei der Auswertung der STM Daten als günstig erwiesen, zur Beschreibung der Struktur anstelle der vorgeschlagenen $(\sqrt{26} \times 3)$ Einheitszellen eine vollkommen äquivalente Beschreibung über $(\sqrt{29} \times 3)$ Einheitszellen zu wählen. Eine $(\sqrt{26} \times 3)$ Einheitszelle kann aus einer (5×3) Einheitszelle durch eine Scheroperation um $1/3$ der Zellenbreite erzeugt werden, während für eine $(\sqrt{29} \times 3)$ Zelle Scherung um $2/3$ notwendig ist. Mit Elektronenbeugung können beide Strukturen nicht unterschieden werden. Im vorliegenden Fall ist jedoch die Wahl der $(\sqrt{29} \times 3)$ vorteilhaft, da diese die Domänenwandstruktur der in Ketten angeordneten Adatomfeatures besser beschreiben kann.

In Abb. 6.2 (a) ist ein stärker vergrößerter und gedrehter Ausschnitt des STM Bildes gezeigt, in den einige Einheitszellen eingetragen sind. Ergänzend ist in Teilbild (b) ein Strukturmodell der Fläche in (a) gezeigt, das bis auf die Verwendung der $(\sqrt{29} \times 3)$

Einheitszelle der Interpretation von Lin folgt. Es wird deutlich, daß der Unterschied zwischen den beiden Strukturelementen nicht nur in den hellen Adatomen besteht, sondern daß durch Einbringen der $(\sqrt{29} \times 3)$ Einheitszellen die regelmäßige Anordnung der (5×3) sowohl entlang der Streifen als auch über die Gräben hinweg unterbrochen wird. In Abb. 6.3 ist skizziert, wie zwei (5×3) Bereiche durch eine $(\sqrt{29} \times 3)$ Einheitszelle getrennt sind, und ein Versatz zwischen den (5×3) Einheitszellen von einer Gitterkonstante entsteht. Nach drei $(\sqrt{29} \times 3)$ Einheitszellen können die (5×3) Einheitszellen wieder in ihrer ursprünglichen Periodizität einrasten. Der Versatz zwischen den Einheitszellen ist in Abb. 6.1 besonders deutlich zu erkennen, wenn das Bild in Richtung des Pfeils unter schrägem Winkel betrachtet wird. An dieser Abbildung ist zu erkennen, daß gegeneinander versetzte (5×3) Einheitszellen sich niemals direkt berühren, sondern immer durch $(\sqrt{29} \times 3)$ Bereiche getrennt sind.

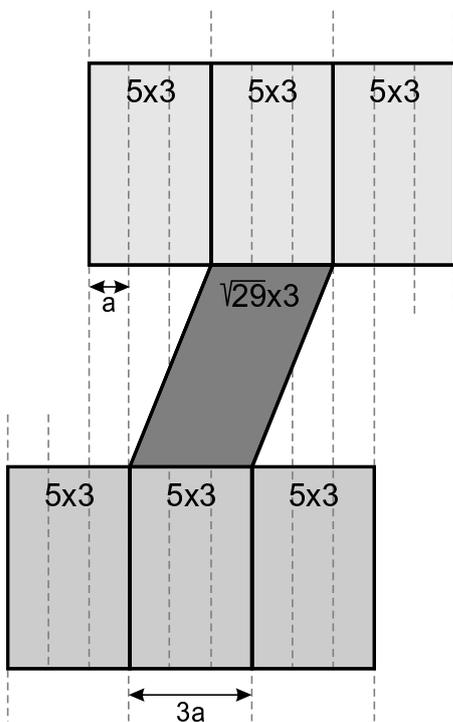


Abbildung 6.3: Skizze der Einheitszellen an einer Domänenwand

Eine streng langreichweitige Anordnung der $(\sqrt{29} \times 3)$ Einheitszellen kann jedoch nicht gefunden werden, vielmehr zeigt die statistische Auswertung, daß eine stochastische Verteilung der nächsten Nachbarabstände vorliegt.

Während in der Arbeit von Lin bereits eine Beschreibung der Domänenstruktur erfolgt, findet sich dort kein Hinweis auf eine regelmäßige Anordnung der $(\sqrt{29} \times 3)$ Einheitszellen. Diese deutet sich jedoch bereits in Abb. 6.1 an. Um dies noch weiter zu verdeutlichen ist in Abb. 6.4 ein größerer Ausschnitt der Oberfläche gezeigt. Die $(\sqrt{29} \times 3)$ Einheitszellen bilden Ketten auf der Oberfläche, die einen gemeinsamen mittleren Winkel mit den Gräben einschließen. Der Betrag dieses Winkels hängt von den Präparationsbedingungen ab und entspricht im vorliegenden Fall etwa 34° . Eine statistische Auswertung der Einheitszellenpositionen in Abb. 6.1 zeigt, daß der bevorzugte Abstand zwischen je zwei $(\sqrt{29} \times 3)$ Einheitszellen 55\AA beträgt [31]. Dieser Wert entspricht 14 Atomabständen und kann beispielsweise durch die Kombinationen

“ $1 \times (\sqrt{29} \times 3)$ und $3 \times (5 \times 3)$ ” erzeugt werden.

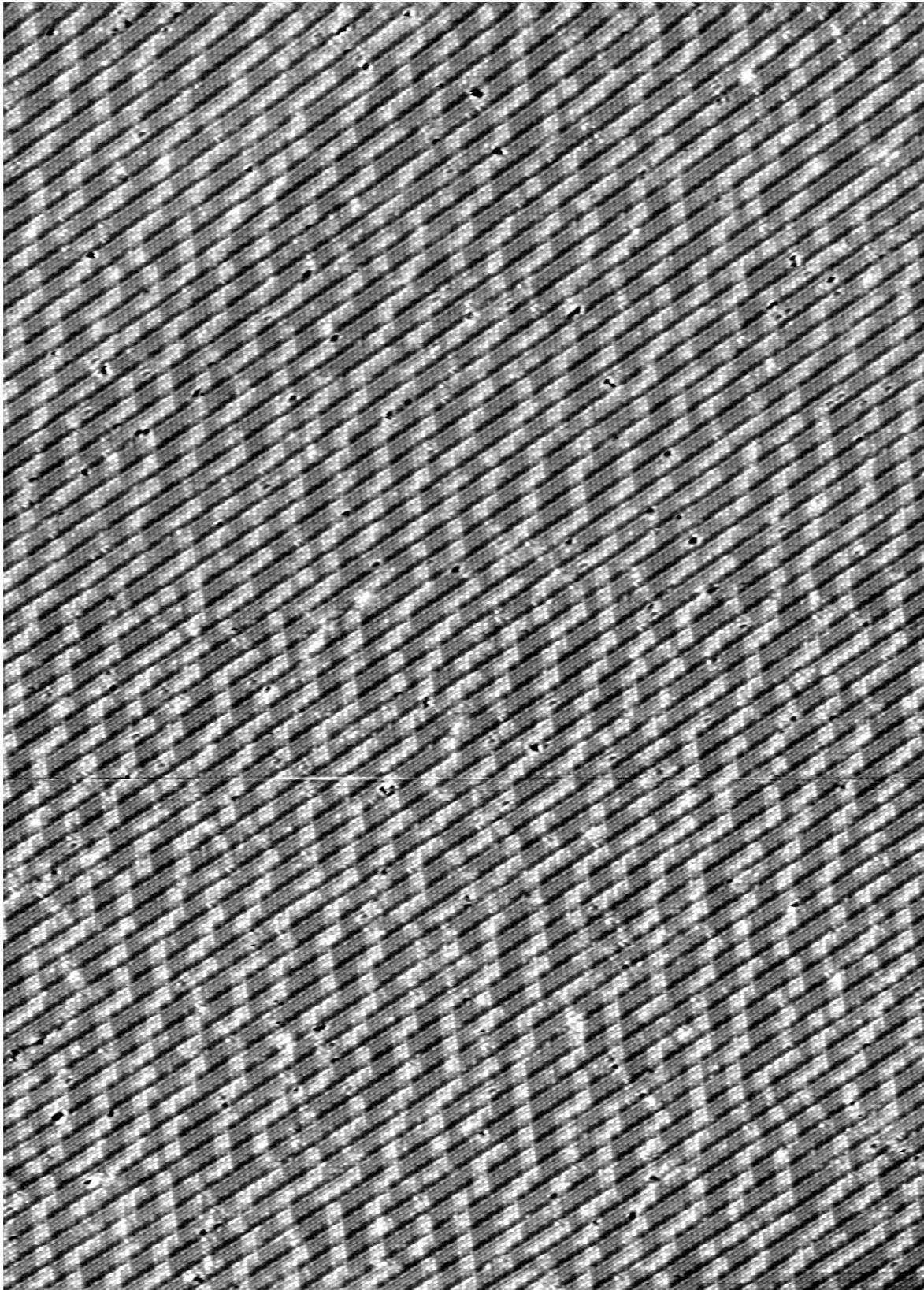


Abbildung 6.4: Die Domänenwandstruktur der (5×3.2) im Überblick.

6.2 Kommensurabel oder inkommensurabel?

Anhand der gezeigten STM Bilder kann bezüglich der Interpretation der (5×3.2) Rekonstruktion festgestellt werden, daß es sich um eine eindeutig kommensurable Domänenwandstruktur handelt. Dies stellt einen Widerspruch zu der Interpretation der LEED Ergebnisse in Kapitel 4 dar, wo in Anlehnung an Ref. [23] ein inkommensurables Modell vorgeschlagen wurde. Um diese Diskrepanz zwischen den beiden unterschiedlichen Methoden aufzuheben, sind in Abb. 6.5 ein aus dem STM Bild Abb. 6.4 berechnetes Beugungsbild und eine SPA-LEED Aufnahme gegenübergestellt. Die lin-

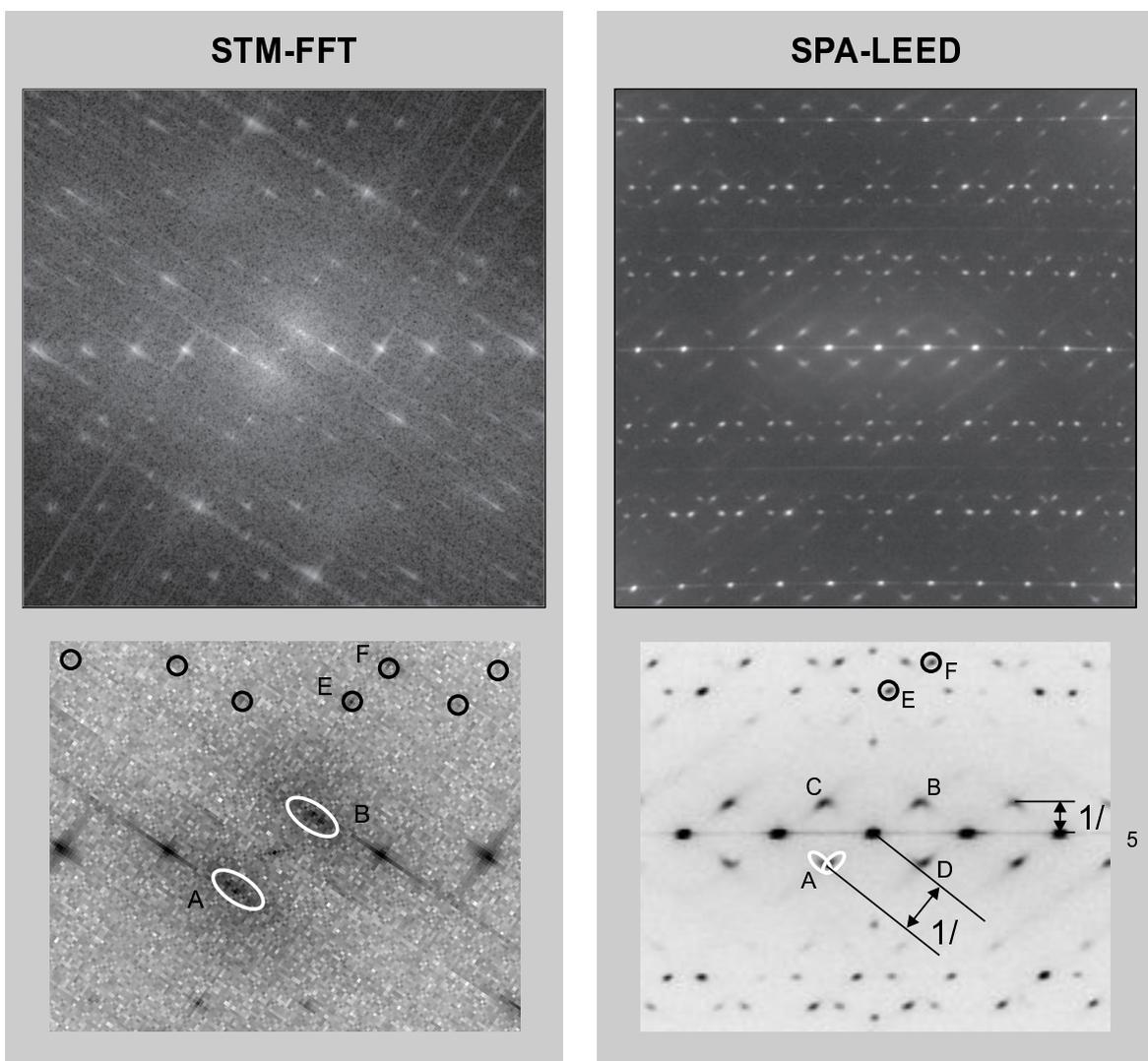


Abbildung 6.5: Vergleich von STM und LEED Daten zur (5×3.2) Rekonstruktion. Links: Fouriertransformierte eines Teilbereiches von Abb. 6.4. Rechts: SPA-LEED Bild einer 1° vicinalen Si(001) Fläche nach Ende der Facettierung. Reste ungeradzahlicher Terrassen sind erkennbar. Unten: Vergrößerte Ausschnitte (ca. 25%BZ) um den Zentralreflex.



ke Seite der Abbildung zeigt das fouriertransformierte Realraumbild, das zur besseren Vergleichbarkeit mit den LEED Daten gedreht wurde. Die schräg durch das Bild verlaufenden Streifen repräsentieren Artefakte des verwendeten FFT Algorithmus. Auf der rechten Seite ist das LEED Bild einer 1° vicinalen Si(001) Fläche nach Abschluß der Facettierung gezeigt. Auch wenn noch Reste von ungeradzahligem Terrassen auf der Oberfläche vorhanden sind, wie das Vorhandensein der (3.2×5) Rotationsdomäne im Beugungsbild zeigt, so erweist sich diese Fehlneigung dennoch als vorteilhaft zum Vergleich mit den transformierten STM Bildern, da die Facettenreflexe nur sehr geringe Intensität zeigen. In dem unteren Bildbereich sind jeweils Vergrößerungen eines Ausschnittes von etwa 25%BZ um den Zentralreflex gezeigt.

Erstaunlicherweise ist die Struktur beider Beugungsbilder bis auf Reflexintensitäten und das Fehlen einer Spiegeldomäne in dem STM Bild identisch. Auch das fouriertransformierte STM Bild könnte daher mit dem Modell der inkommensurablen Einheitszelle aus Kapitel 4 beschrieben werden. Hier soll jedoch versucht werden, die Reflexpositionen mit der Anordnung der Domänenwände zu erklären. Werden beispielsweise die Reflexe A und B betrachtet, so entspricht ihr Abstand zum (00) Reflex $1/\bar{\Gamma}$, wenn $\bar{\Gamma}$ den mittleren Abstand der Domänenwände angibt. Diese Reflexe wurden bislang als die 3. Ordnung desjenigen Netzes von Reflexen interpretiert, das seinen Ursprung im (01) Reflex besitzt. Die Länge $1/\bar{\Gamma}_5$ in Abb. 6.5 entspricht im Realraum einer Länge von 42\AA , die der statistischen Auswertung folgend den mittleren Abstand der $(\sqrt{29} \times 3)$ Einheitszellen entlang der Gräben in Abb. 6.4 angibt. Aus den LEED Daten bestimmt sich $\bar{\Gamma}_5$ zu 50\AA . Die Abweichungen zwischen den beiden Werten sind leicht durch Meßungenauigkeit, thermische Drift und unterschiedliche Präparationsbedingungen zu erklären. Werden die Reflexe A und B als eine Aufspaltung des (00)

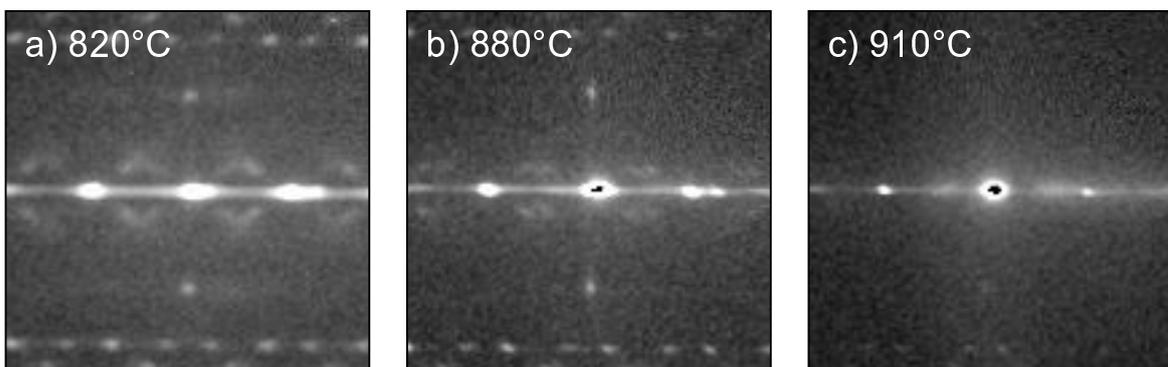


Abbildung 6.6: Temperserie zur Position der Domänenwandreflexe. a) Nach 2 min. Tempern bei 820°C , b) anschließend 2 min. Tempern bei 880°C , c) anschließend 2 min Tempern bei 910°C . Die (5×3.2) Rekonstruktion ist zurückgebildet und das Beugungsbild der Ausgangsfläche wird beobachtet.

Reflexes interpretiert, so sollten auch alle anderen Reflexe der 5-fachen Periodizität aufgespalten sein. Bei Vorhandensein einer zusätzlichen Spiegeldomäne der (5×3.2) Rekonstruktion führt dies zu den “bananenförmigen” Reflexen A–D im rechten unteren Teilbild. Diese bestehen jeweils aus der Überlagerung einer Domänenwand–aufspaltung des (00) Reflexes mit einer Spiegeldomänenwand–aufspaltung des $(1/5,0)$.

Die Interpretation des Beugungsbildes über Domänenwände erfordert jedoch eine Abhängigkeit der Reflexaufspaltung von den Präparationsbedingungen. Wird auf eine Oberfläche Au bei Raumtemperatur aufgebracht, und der Film für immer gleiche Zeiten bei immer höherer Temperatur getempert (isochronal annealing), so können kurz vor der endgültigen Desorption des Goldes Bilder wie in Abb. 6.6 beobachtet werden. Alle Bilder sind bei Raumtemperatur nach jeweils 2 minütigem Tempern aufgenommen. Deutlich ist zu erkennen, wie die Domänenwandreflexe zwischen Teilbild (a) und (b) ihre Position verändern, bevor in (c) das Gold vollständig und irreversibel desorbiert. Eine quantitativere Auswertung der temperaturabhängigen Reflexpositionen wird in Kapitel 8 anhand von Abb. 8.13 vorgenommen.

Das Domänenwandmodell kann einen großen Teil des Beugungsbildes durch eine (5×3) Rekonstruktion erklären, bei der Reflexaufspaltungen durch eine regelmäßige Abfolge von $(\sqrt{29} \times 3)$ Domänenwänden vorhanden sind. Es gibt allerdings immer noch offene Fragen. Beispielsweise beträgt der Abstand der Reflexe E und F in Abb. 6.5 ebenfalls $1/\bar{\Gamma}$, jedoch entsprechen die Positionen der Einzelreflexe oder ihr Schwerpunkt nicht einer (5×3) Position, sondern wird besser durch eine (5×3.2) Rekonstruktion beschrieben. Es sind daher weitere Untersuchungen der Domänenwandstruktur, insbesondere mit dem STM, erforderlich.

6.3 Die Spiegel– und Rotationsdomäne

Aus den LEED Beugungsbildern während und nach der Adsorption von Gold in Kapitel 4 wurde auf das Vorhandensein weiterer Strukturen auf der Oberfläche geschlossen, insbesondere wurde die (5×3.2) Rekonstruktion als aus zwei Spiegeldomänen zusammengesetzt betrachtet, und das Vorhandensein von Einfachstufen vorhergesagt. Dies kann mit dem STM bestätigt werden.

6.3.1 Spiegeldomäne

Das STM Bild Abb. 6.7 (a) zeigt einen Ausschnitt der Oberfläche mit mehreren Spiegeldomänen. Breite und dunkle Überstrukturdomänengrenzen trennen die (5×3.2)

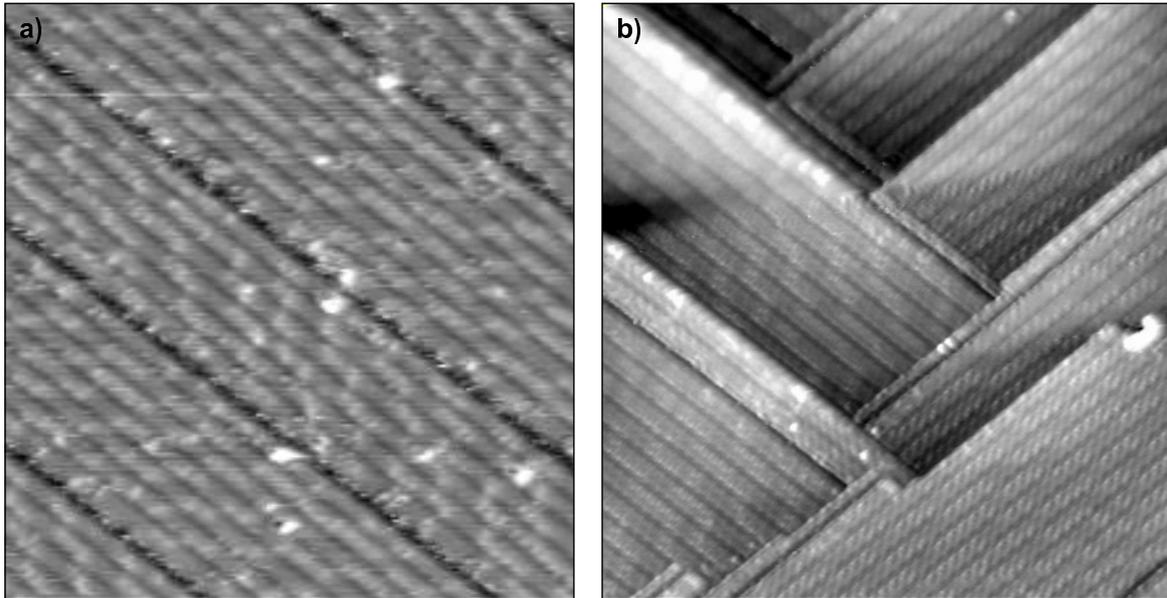


Abbildung 6.7: Aus SPA-LEED Daten in Kapitel 4 vorhergesagte Strukturen. (a) Spiegeldomäne der (5×3.2) Rekonstruktion, (b) Rotationsdomäne an Einfachstufen.

rekonstruierten Bereiche, die anhand der bereits beschriebenen Gräben in der (5×3.2) Rekonstruktion zu erkennen sind. Beide Einheitszellentypen, (5×3) und $(\sqrt{29} \times 3)$, werden von dem Mikroskop aufgelöst, und es wird deutlich, daß die beiden Spiegeldomänen sich ausschließlich durch die Scheroperation der $(\sqrt{29} \times 3)$ Einheitszellen unterscheiden. Eine Scherung der Einheitszelle nach “links” führt zu Ketten von Einheitszellen, die in Abb. 6.7 (a) nach oben verlaufen, Scherung nach “rechts” bewirkt einen ungefähr waagerechten Verlauf der Ketten. Für eine Erklärung der SPA-LEED Daten wurde in Abb. 4.7 (c) das Beugungsbild durch Überlagerung zweier gescherter Netze von Einheitszellen beschrieben, die gegeneinander gespiegelt waren. Diese Vorstellung erweist sich als konsistent mit den STM Beobachtungen. Es ist zu betonen, daß für einen Wechsel der Domänenorientierung keine (Doppel-) Stufen notwendig sind. Vielmehr findet in Teilbild (a) das Umklappen von einer Spiegeldomäne in die andere mitten auf der (5×3.2) rekonstruierten Terrasse statt. Auch das Ende einer Domänengrenze, zu erkennen an dem plötzlichen Ende einer dunkel abgebildeten Domänengrenze, kann direkt auf einer Terrasse auftreten.

6.3.2 Ungeradzahlige Terrassen

Um rekonstruierte ungeradzahlige Terrassen beobachten zu können, muß den LEED Untersuchungen zufolge entweder die Deposition während der Facettierung abgebro-

chen, oder eine Probe geringerer Fehlneigung verwendet werden. Da in dem STM Experiment die Verdampferrate nur schwer zu kontrollieren war und keine Möglichkeit zu einer *in-situ* Überwachung des Facettierungsprozesses existierte, wurde hier der erstgenannte Weg beschritten und eine nur um 1° vicinale Si(001) Probe verwendet.

Ein STM Bild der um 1° geneigten Si(001) Ausgangsfläche wurde bereits in Abb. 4.4 (a) gezeigt. Eine STM Aufnahme der Oberfläche nach Adsorption von Gold ist in Teilbild (b) von Abb. 6.7 abgedruckt. Deutlich sind Strukturen zu erkennen, die im rechten Winkel aufeinander stehen und durch Einfachstufen getrennt sind. Obwohl die Auflösung des Bildes kaum ausreicht, die Domänenstruktur auf den Terrassen zu trennen, so wird dennoch anhand der Richtung der Gräben in der (5×3.2) Struktur deutlich, daß die Orientierung der Rekonstruktion, wie erwartet, an jeder Einfachstufe um 90° gedreht auftritt.



Kapitel 7

SPE–LEEM: Spektromikroskopie in Echtzeit

Die LEEM und XPEEM Untersuchungen, die in diesem Kapitel vorgestellt werden, wurden am Synchrotron Speicherring ELETTRA in Triest (Italien) durchgeführt. Das dort installierte SPE–LEEM Gerät wurde Anfang der 90'er Jahre in Clausthal entwickelt [91] und dort zunächst ausschließlich für LEEM Messungen eingesetzt. Nach Aufrüstung mit einem Energieanalysator wurde es mehrfach für Meßzeiten am Speicherring BESSY I nach Berlin transportiert [92]. Seit Ende 1996 arbeitet das Gerät stationär an einer Undulator Beamline am Speicherring ELETTRA.

LEEM Geräte bieten eine Vielzahl von Kontrastmechanismen wie z.B. LEEM, LEED, MEM und PEEM, die durch Verwendung eines abbildenden Energieanalysators noch durch orts aufgelöste spektroskopische Methoden wie Photoemission mit weicher Röntgenstrahlung und AES ergänzt werden können. In diesem Kapitel soll die prinzipielle Funktionsweise eines LEEM erläutert und die Besonderheiten des Triestiner Gerätes genannt werden. Der folgende Abschnitt gibt einen Überblick über die verwendeten Komponenten, bevor auf die unterschiedlichen bildgebenden Verfahren eingegangen wird.

7.1 Aufbau eines LEEM

Auf den ersten Blick ist der Aufbau eines LEEM demjenigen eines TEM sehr ähnlich. allerdings durchdringen die Elektronen im LEEM aufgrund ihrer geringen Energie die

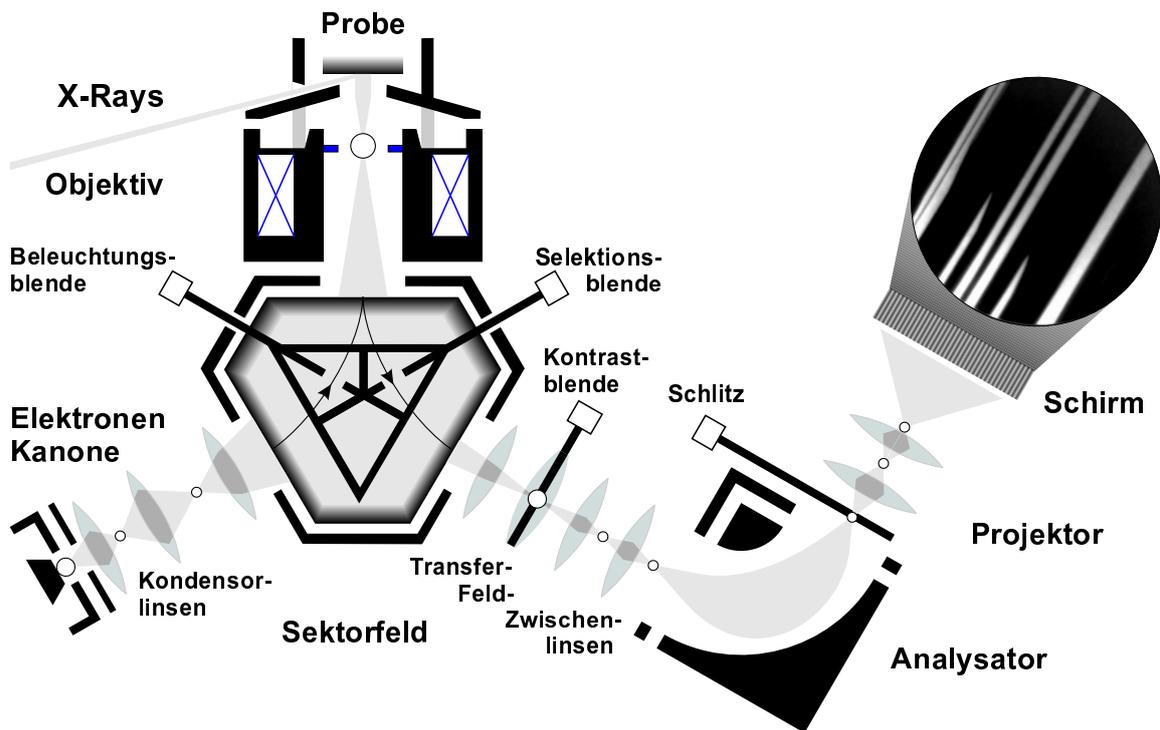


Abbildung 7.1: Experimenteller Aufbau des SPE-LEEM. Der Elektronenstrahl durchläuft von der Elektronenkanone ausgehend das Sektorfeld und die Objektivlinse, wird an der Probe reflektiert und auf dem Rückweg von dem Sektorfeld in die Abbildungssäule abgebildet.

Probe nicht, sondern werden an der Oberfläche reflektiert. Wegen der senkrechten Elektronenbeleuchtung müßten dann der Ort von Elektronenkanone und Detektor übereinstimmen, dies ist aus konstruktiven Gründen jedoch nicht möglich. Das Problem wird im LEEM durch die Einführung eines magnetischen Strahlteilers (“Sektorfeld”) gelöst. In der Prinzipskizze Abb. 7.1 durchfliegen von der Elektronenkanone erzeugte Elektronen das Sektorfeld und werden auf die Probe gelenkt. Dort findet die Reflexion statt, und die Elektronen gelangen nach einem erneutem Durchlauf des Sektorfeldes in den Abbildungsweig. Am Ort der Probe besitzen die Elektronen eine kinetische Energie zwischen minimal 0eV (MEM), dort werden sie bereits vor der Probe an dem äußeren Potential reflektiert, und maximal ca. 500eV.

Elektronen geringer Energie reagieren sehr empfindlich auf Störfelder. Deshalb liegen die Kathode der Elektronenkanone und die Probe auf einer BIAS-Spannung von $U = -18\text{kV}$ bezüglich der Laborumgebung, während die Objektivlinse auf Erdpotential liegt. In der Elektronenkanone werden die Elektronen daher auf eine kinetische Energie von 18keV beschleunigt und zwischen Objektiv und Probe vollständig abgebremst. Zusätzlich kann mittels einer (positiven) Offsetspannung die Potentialdifferenz zwischen Elektronenkanone und Probenoberfläche, und damit die kinetische Energie der



Elektronen am Probenort, im Bereich zwischen $U=-5V$ und $U=500V$ variiert werden. Nach erfolgter Reflektion werden die Elektronen erneut in Richtung der Objektivlinse beschleunigt, die sie mit $18keV$ kinetischer Energie verlassen. Mit dieser Energie fliegen die Elektronen fast — mit Ausnahme des Energiefilters, siehe Abschnitt 7.1.1 — durch den gesamten Abbildungsweig bis hin zum ersten Channelplate vor dem Leuchtschirm.

Wird die Elektronenkanone abgeschaltet und die Probe mit einer Quecksilberdampflampe (VPEEM) oder einer Röntgenquelle (XPEEM) beleuchtet, so findet an der Oberfläche Photoemission statt. Ein prinzipieller abbildungstechnischer Unterschied zwischen LEEM und PEEM existiert nicht, in den LEEM Geräten kann durch einfaches Ausschalten der Elektronenkanone und Inbetriebnahme der UV Lampe zwischen diesen beiden Kontrastmechanismen umgeschaltet werden. Zur Beschreibung der PEEM Abbildung muß ausschließlich im Folgenden der Begriff “LEED” durch “PEEAD” ersetzt werden.

7.1.1 LEEM Komponenten

Die Elektronenkanone

In gängigen LEEM Instrumenten werden heute verschiedene Arten von Elektronenemittern verwendet, wobei sich kommerzielle TEM Elektronenkanonen großer Beliebtheit erfreuen [93, 94]. Die Erzeugung der Elektronen geschieht auf vielfältige Weise, so reicht die Auswahl von thermischer Emission eines LaB_6 Filamentes (Clausthal) über Feldemitter und Kaltkathoden [93] hin zu Speziallösungen, wie der laserinduzierten spinpolarisierten Emission eines GaAs Kristalls [95].

Allen Aufbauten gemeinsam ist, daß die Emitter in Bezug auf erreichbare minimale Fokusgröße und minimale Energiebreite optimiert wurden.

Das Sektorfeld

Das Sektorfeld stellt einen der zentralen Bestandteile des LEEM dar. Es dient der Entkopplung von ein- und ausfallendem Elektronenstrahl. Diese Aufgabe ist nicht trivial, stellt doch die Umlenkung eines räumlich ausgedehnten Strahls immer eine Störung der Abbildung durch optische Weglängendifferenzen dar. Dieses Problem wurde durch definiert feldfreie Bereiche im Sektorfeld gelöst.

Beispiele für Sektorfeldaufbauten sind in Abb. 7.2 gezeigt. Typ (a) stellt den heute gebräuchlichsten Aufbau dar und wird auch in dem SPE-LEEM verwendet. Neuere

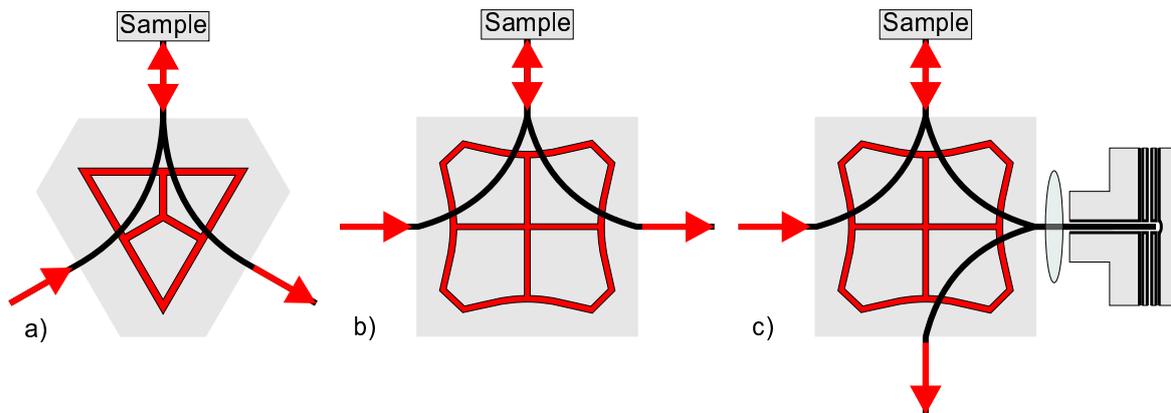


Abbildung 7.2: Sektorfelder für LEEM: a) 120° -Ablenkfeld [92, 96], b) Modernes Vierquadrantenfeld [93], c) Vierquadrantenfeld mit Korrekturspiegel [94]

Konstruktionen verwenden ein Vierquadrantenfeld (b), bei dem eine Ablenkung jeweils um 90° erfolgt. Mit diesem Sektorfeld wurde bereits eine Auflösung von 5nm erreicht [93]. Weitere Auflösungssteigerung bis zu 2nm soll durch Verwendung eines zusätzlichen Korrekturspiegels möglich sein, der Abbildungsfehler aktiv korrigiert [94].

Das Objektiv

Die abbildenden Eigenschaften des Objektivs sind, bedingt durch die hohe Feldstärke, direkt mit der Geometrie der Probe verbunden. Es wird daher der Begriff “Kathodenlinse” verwendet, wobei die Kathode der Linse durch die Probe gegeben ist. Die besten Abbildungseigenschaften könnten, so die theoretischen Vorhersagen, durch ein homogenes Bremsfeld vor der Probe ohne fokussierende Wirkung erreicht werden [97]. Dies ist in der Praxis zwar nicht zu realisieren, die verschiedenen Linsendesigns müssen sich jedoch an der berechneten Auflösungsgrenze von ca. 5nm messen lassen. Der in Abb. 7.1 eingezeichnete Fall einer magnetischen Triode (eine Immersionslinse) entspricht dieser Anforderung am besten. Auch in den neueren Geräten wird daher dieses Design verwendet.

Der Analysator

Zusätzlich zu dem gewöhnlichen LEEM Aufbau wurde in das Clausthaler Gerät in Triest ein 180° Energieanalysator eingebaut. Die Energiefilterung von LEEM und PEEM Daten erweist sich jedoch als schwierig, denn im Gegensatz zu vielen anderen spektromikroskopischen Methoden, wie z.B. μ ESCA [98] oder EDX, stellt LEEM keine rasternde Methode dar, weshalb jedes mögliche Energiefilter die eigentliche Abbildung



erhalten muß. Verschiedene Versuche wurden bereits unternommen, Filter dieser Art zu konstruieren [99], bis heute ist jedoch das SPE-LEEM weltweit das einzige Gerät mit dem es gleichzeitig möglich ist, strukturelle und elektronische Information hoher Qualität gleichzeitig aufzunehmen [92].

In dem Energieanalysator werden die Elektronen auf eine Passenergie von 1800eV abgebremst. Dieser Wert stellt einen Kompromiß zwischen hoher Orts- (verlangt hohe Passenergie) und Energieauflösung (verlangt geringe Passenergie) dar. Die Grenzen der Auflösung in der XPEEM Betriebsart liegen bei ca. 8nm Ortsauflösung und 0.3eV Energieauflösung. Für die weitere Abbildung werden die Elektronen hinter dem Analysator wieder auf eine Energie von 18keV beschleunigt.

Der Leuchtschirm

Die Detektion der Elektronen geschieht hinter dem Projektor mit zwei Channelplates und einem Phosphorschirm. Von diesem wird das Bild mittels eines Prismas umgelenkt und mit einer Videokamera auf Band aufgezeichnet. Für längere Belichtungszeiten ist es möglich das Prisma aus dem Strahlengang zu entfernen und das Bild des Phosphorschirms auf eine slow scan CCD Kamera umzulenken. Insbesondere für XPEEM Untersuchungen, die häufig längere Belichtungszeiten erfordern, ist eine Möglichkeit der Umschaltung zwischen Video- und CCD Kamera sehr hilfreich.

7.2 Abbildung eines LEEM

Der Prozeß der Bilderzeugung teilt sich in zwei Bereiche: Die Beleuchtung der Probe mit Licht oder Elektronen zum Einen und die Abbildung von Elektronen die unter einem gegebenen Winkel die Probe verlassen zum anderen.

7.2.1 Beleuchtung der Probe

Im LEEM Modus geschieht die Ausleuchtung der Probe mittels der Elektronenkanone. Deren Aufgabe besteht darin, einen möglichst scharfen Crossover zu erzeugen, der durch Linsen und Sektorfeld in die hintere Brennebene des Objektivs abgebildet werden kann.

Auf dem Weg durch das Sektorfeld kann mit Hilfe der Beleuchtungsblende der Elektronenstrahl eingegrenzt werden, so daß auf der Probe nur eine kleine Stelle beleuchtet wird. Die Blende verbessert dabei durch Abschneiden achsferner Strahlen nicht nur

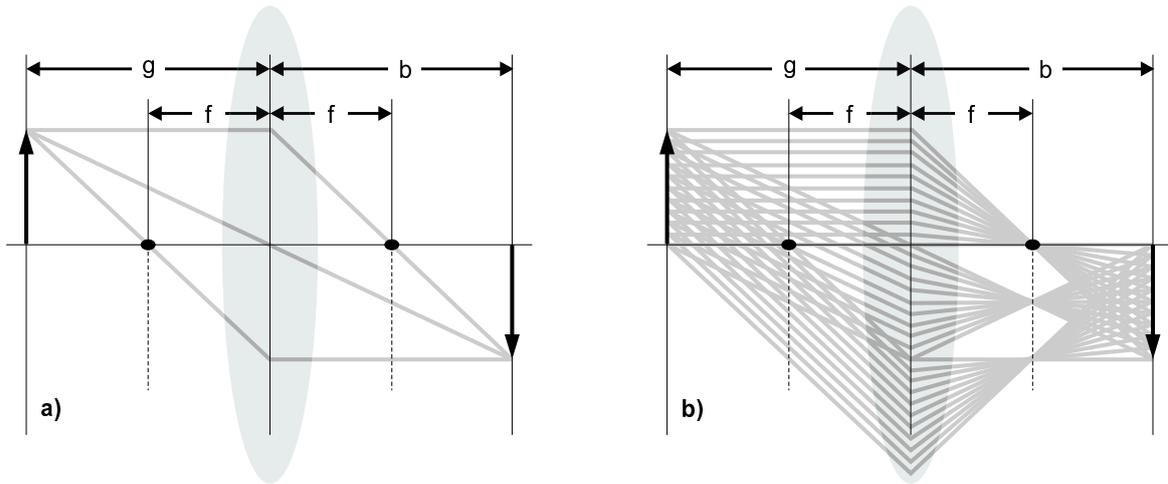


Abbildung 7.3: Prinzipielle Funktionsweise einer Linse. (a) gewöhnliche Bildkonstruktion mit 3 ausgezeichneten Strahlen, (b) Strahlen, die das Objekt unter gleichem Winkel aber an verschiedenen Orten verlassen, schneiden sich in der Brennebene.

die Abbildungseigenschaften erheblich, sondern mit ihrer Hilfe ist es auch möglich, Microspot-LEED zu betreiben. Hierzu wird der beleuchtete Fleck auf eine Kreisscheibe mit einem Durchmesser von bis zu $1\mu\text{m}$ reduziert und nur von dieser kleinen Stelle das LEED Bild erzeugt. Hierdurch wird es z.B. möglich, LEED Reflexe verschiedener, hinreichend großer Überstrukturdomänen voneinander zu trennen. Ein Beispiel für die Anwendung von Microspot LEED findet sich in Kapitel 8.2.2.

Die Objektivlinse bildet die Hauptebene des Sektorfeldes auf die Probenoberfläche ab, wobei Brennpunktstrahlen in parallele Strahlen umgesetzt werden. Die Elektronen gelangen daher exakt senkrecht auf die Probe.

7.2.2 Die Objektivlinse

Werden die Elektronen an der Probenoberfläche reflektiert, so entsteht im Fall kristalliner Proben ein Beugungsbild (LEED Bild) in der hinteren Brennebene der Objektivlinse (BFP, “back focal plane”). Diese Position überrascht zunächst, sie liegt jedoch in der prinzipiellen Eigenschaft jeder Linse begründet, Realraum und reziproken Raum gleichzeitig abzubilden. Zur Verdeutlichung soll Abb. 7.3 kurz an die geometrische Konstruktion des Bildes einer Linse erinnern.

Ein Objekt in der Gegenstandsebene im Abstand g wird von der Linse in die Bildebene, im Abstand b abgebildet. Im Fall eines reellen Bildes sind sowohl g als auch b beide größer als die Brennweite f der Linse. Wird von der üblichen Bildkonstruktion (a) mit drei hervorgehobenen Strahlen zur Bestimmung der Bildebene abgesehen, sondern

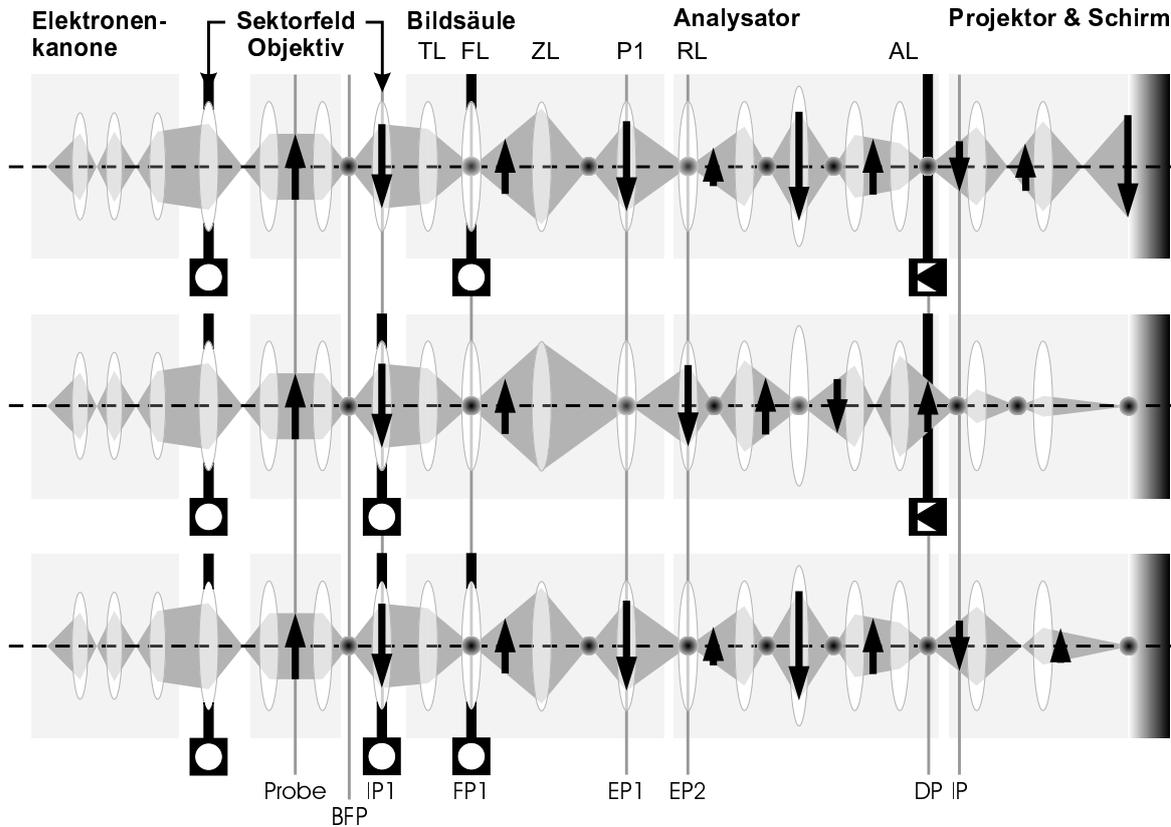


Abbildung 7.4: Prinzip der SPE-LEEM Optik. (a) Abbildung des Realraumes (LEEM, XPEEM, etc.) (b) Abbildung der Brennebene (LEED, PEEAD, etc.), (c) Abbildung der energiedispersiven Ebene. Zur besseren Übersichtlichkeit wurde die Anordnung aufgeklappt. Abbildung nach [92].

werden Strahlen betrachtet, die das Objekt an verschiedenen Stellen, jedoch unter identischem Winkel verlassen (b), so treffen sich die Strahlen jeden Winkels in der Brennebene der Linse. Auf LEEM übertragen bedeutet dies, daß die Objektivlinse die reflektierten Elektronen in der hinteren Brennebene nach Winkeln sortiert.

7.2.3 Der Abbildungsweig

Während die Brennweite der Objektivlinse nach der Justage konstant gehalten wird, hängt die Funktion anderer Linsen des Gerätes von der gewünschten Betriebsweise ab. Zur Unterscheidung der 3 prinzipiellen Betriebsmodi sind die Lagen der Bilder und Brennebenen in Abb. 7.4 aufgetragen. Alle optischen Elemente, insbesondere das Sektorfeld und der 180° Analysator, wurden auf einer gemeinsamen optischen Achse gezeichnet. Die Elektronenkanone ist auf die linke Seite gespiegelt, so daß sie gedanklich die Probe durchleuchtet. Hieraus folgt, daß Objektiv und Sektorfeld doppelt in

den Strahlengang eingezeichnet werden müssen. Zwischen Sektorfeld und Analysator befindet sich die Abbildungssäule des Gerätes mit Transferlinse (TL), Feldlinse (FL), Zwischenlinse (ZL) und der ersten Projektorlinse (P1). Das Abbremsen der Elektronen auf die Passenergie des Analysators geschieht mittels RL (“retarding lens”), bei AL (“accelerating lens”) werden die Elektronen wieder auf die Energie von 18keV beschleunigt. Hinter AL ist in der dispersiven Ebene DP (“dispersive plane”) der Austrittsspalt des Analysators eingezeichnet.

Wie bereits erläutert befindet sich in jedem Fall eine Winkelverteilung der emittierten Elektronen in der hinteren Brennebene der Objektivlinse und das dazugehörige reelle Bild liegt in der ersten Bildebene (IP1, “image plane 1”) im Abbildungsweig des Sektorfeldes. Die Transferlinse (TL) überträgt die Winkelverteilung aus der hinteren Brennebene der Objektivlinse in die Feldlinse (FL). In der Feldlinse befindet sich daher wiederum das Beugungsbild oder, für den Fall der Photoemission, die Winkelverteilung der emittierten Photoelektronen (PEEAD).

Bis zu der Feldlinse unterscheiden sich die verschiedenen Betriebsmodi des Gerätes nicht, im Folgenden muß jedoch zwischen Realraum, reziprokem Raum und Abbildung der dispersiven Ebene unterschieden werden.

Realraumabbildung

In die Feldlinse integriert ist die sogenannte “Kontrastblende”, eine Apertur, mit der aus dem LEED Bild der Probenoberfläche ein Reflex zur Abbildung ausgewählt werden kann. Während diese Apertur für MEM vollständig aus dem Strahlengang entfernt werden muß, unterscheidet sie im LEEM Modus zwischen Hellfeld- und Dunkelfeldabbildung. Für eine Hellfeldabbildung wird die Kontrastblende so eingestellt, daß nur der Spekularreflex des LEED Bildes hindurchgelangt, für Dunkelfeld wird ein beliebiger anderer Reflex ausgewählt.

Das reelle Zwischenbild der Probenoberfläche liegt kurz hinter der Kontrastblende, die Vergrößerung kann mit einer geeigneten Kombination von FL und ZL eingestellt werden. Reelles Bild und LEED Bild werden mit dem Projektor P1 auf die Eingangsebenen EP1 und EP2 des Analysators projiziert, der gleichzeitig EP1 auf die Bildebene IP und EP2 auf die dispersive Ebene DP abbildet. Entsprechend der Funktionsweise eines Analysators werden Elektronen unterschiedlicher Energie verschieden stark abgelenkt. Damit dies erfolgreich funktioniert, muß der Elektronenstrahl in der Eingangsebene (EP2) hinreichend schmal sein, da diese Ebene in die dispersive Ebene DP abgebildet wird. Deshalb besitzt der verwendete Analysator einen Eintrittsspalt. In dem vorliegenden Fall wird diese Aufgabe von der Kontrastblende übernommen.



In der dispersiven Ebene DP liegen dann Abbilder der Kontrastblende, allerdings entsprechend der Elektronenenergie, an unterschiedlichen Orten. Mit dem Austrittsspalt wird aus dieser Intensitätsverteilung ein kleiner Bereich herausgeschnitten. Auf diese Weise wird das Realraumbild in der Bildebene IP energiegefiltert.

Der Projektor vergrößert das Bild in IP und überträgt es auf die Leuchtschirmeinheit.

Abbildung des reziproken Raumes

Die Abbildung des reziproken Raumes unterscheidet sich nur wenig von der Realraumabbildung, so muß im Wesentlichen nur die Brennweite einer einzigen Linse (ZL) verändert werden, um am Ort von EP1 und EP2 das reelle Bild mit der Brennebene zu vertauschen. Für die übrige, unveränderte Optik wurde bereits im vorigen Abschnitt beschrieben, wie die Eintrittsebene des Analysators EP1 auf dem Schirm abgebildet werden kann. Da nun in EP1 nicht mehr das Realraumbild sondern das LEED Bild liegt, wird auf dem Leuchtschirm der reziproke Raum dargestellt.

Zusätzlich zur Veränderung von ZL muß für eine Abbildung des LEED Bildes die Kontrastblende aus dem Strahlengang entfernt werden. Um dennoch Abbildungsfehler durch achsferne Strahlen reduzieren zu können, wird in das Sektorfeld, am Ort des ersten reellen Bildes, eine Selektionsblende (SEL, "selected area aperture") eingeschoben. Diese Blende wirkt zusätzlich als virtueller Eingangsspalt für den Analysator.

Die Verwendung des Energieanalysators erweist sich auch bei der Aufnahme von LEED Bildern als Vorteil des Clausthaler Gerätes im Vergleich zu anderen LEEM Systemen: Durch Sekundärprozesse an der Oberfläche entstehende Elektronen werden durch die Objektivlinse mitbeschleunigt und erscheinen auf dem Leuchtschirm als heller und breiter Fleck, der die Winkelverteilung der Sekundäremission beschreibt. Die Sekundärelektronen besitzen jedoch eine geringere Energie als die elastisch reflektierten Elektronen, weshalb der störende Untergrund durch den Energieanalysator entfernt werden kann.

Abbildung der dispersiven Ebene

Die Abbildung der dispersiven Ebene DP bedeutet, direkt die Energieverteilung der Elektronen auf dem Schirm darzustellen. In dieser Konfiguration wird daher mit jedem Bild der CCD Kamera ein ca. 20 eV großer Ausschnitt des Energiespektrum der emittierten Elektronen aufgenommen. Prinzipiell ist dieser Modus sehr ähnlich der Realraumabbildung. Wie dort beschrieben, liegt auch hier die Brennebene in DP und das Realraumbild in IP. Die Brennweite des Projektors wird hingegen so gewählt, daß

nicht IP auf den Schirm abgebildet wird, sondern die dispersive Ebene DP. Solange der Austrittsspalt des Analysators noch, wie bei der Realraumabbildung, geschlossen ist, so erscheint nur in der Mitte des Leuchtschirms ein kleiner Fleck. Wird der Austrittsspalt des Analysators jedoch geöffnet wird eine Linie sichtbar, die das gesamte Spektrum der Oberfläche als Intensitätsverteilung enthält. Ein Beispiel für Abbildung der dispersiven Ebene ist in Abb. 7.5 gezeigt. Das direkte Abbild der dispersiven Ebene selbst erscheint aufgrund der hohen Dynamik zunächst nicht überzeugend (a), wird das Bild jedoch dreidimensional gerendert (b), so ist die spektrale Information des dargestellten Photoemissionsspektrums deutlich zu erkennen. Mit der “selected area aperture” ist es zusätzlich möglich, Probenbereiche von ca. $1\mu\text{m}$ auszuwählen, dann stellt die Abbildung der dispersiven Ebene eine “Mikrospektroskopie im Vielkanal Modus” dar. Hierbei wurden bereits Energieauflösungen besser als 0.5eV erreicht.

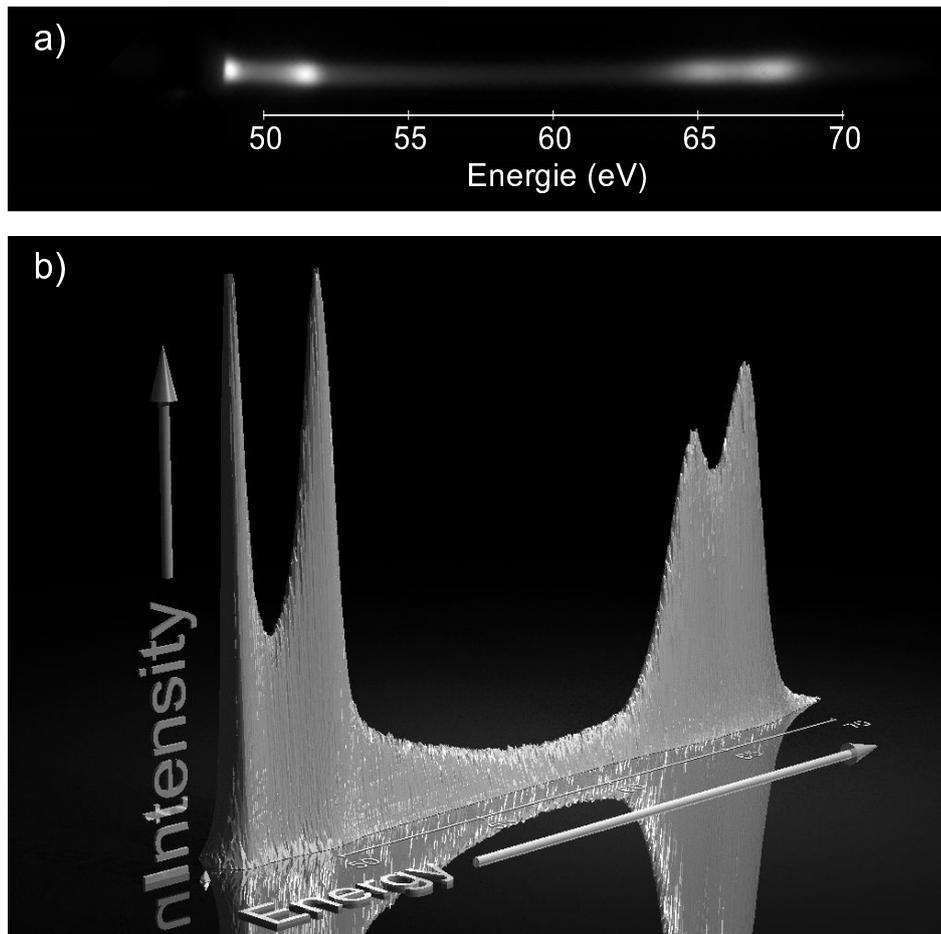
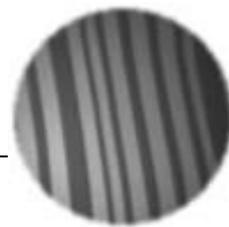


Abbildung 7.5: Abbildung der dispersiven Ebene. (a) Ein Spektrum wie das gezeigte kann direkt, in Graustufen codiert, mit einer CCD Kamera vom Leuchtschirm abfotografiert werden. (b) Rendern betont die Peaks und die Feinstruktur des Spektrums.



Kapitel 8

Ergebnisse der LEEM Messungen

Die Methode LEEM ermöglicht, wie bereits in Kapitel 7 erwähnt wurde, eine orts- und zeitaufgelöste Charakterisierung der Oberflächenmorphologie auf der Nanometerskala. Besitzt die zu untersuchende Oberfläche Strukturen dieser Größenordnung, so erweist sich LEEM als nahezu ideale Methode – nicht nur durch die einzigartige Kombination von Orts- und k -Raum Auflösung, sondern auch durch die Geschwindigkeit, mit der komplexe Prozesse charakterisiert werden können.

Im vorliegenden Fall der goldinduzierten Facettierung fehlgeneigter Si(001) Flächen war die Anforderung an die mesoskopische Strukturgröße erfüllt (vergleiche Kapitel 5), weshalb LEEM Untersuchungen vielversprechend erschienen. Leider ist es in einer gedruckten Arbeit kaum möglich die Faszination des LEEM durch Videos zu vermitteln. Ein Versuch, dies dennoch zu ermöglichen, wurde in der rechten oberen Ecke dieser Arbeit unternommen. Dort ist ein ca. zehnminütiges LEEM Movie während der Goldadsorption als “Daumenkino” umgesetzt.

8.1 Der Prozeß der Facettierung im Realraum

8.1.1 Die Kondensation des Gittergases

Zu Beginn der Deposition erscheint die 4° geneigte Si(001) Ausgangsfläche gleichmäßig grau, ohne innere Struktur. Die laterale Auflösung des LEEM von wenigen Nanometern reicht nicht aus, um die 3000 Doppelstufen des Substrates im Gesichtsfeld des LEEM voneinander zu separieren. In Abb. 8.1 (a) ist die Richtung der Stufenkanten markiert. Nach Beginn der Deposition bleibt diese Situation zunächst unverändert, da das Gold als Gittergas auf der Oberfläche adsorbiert (vergleiche Abschnitt 4.7) und

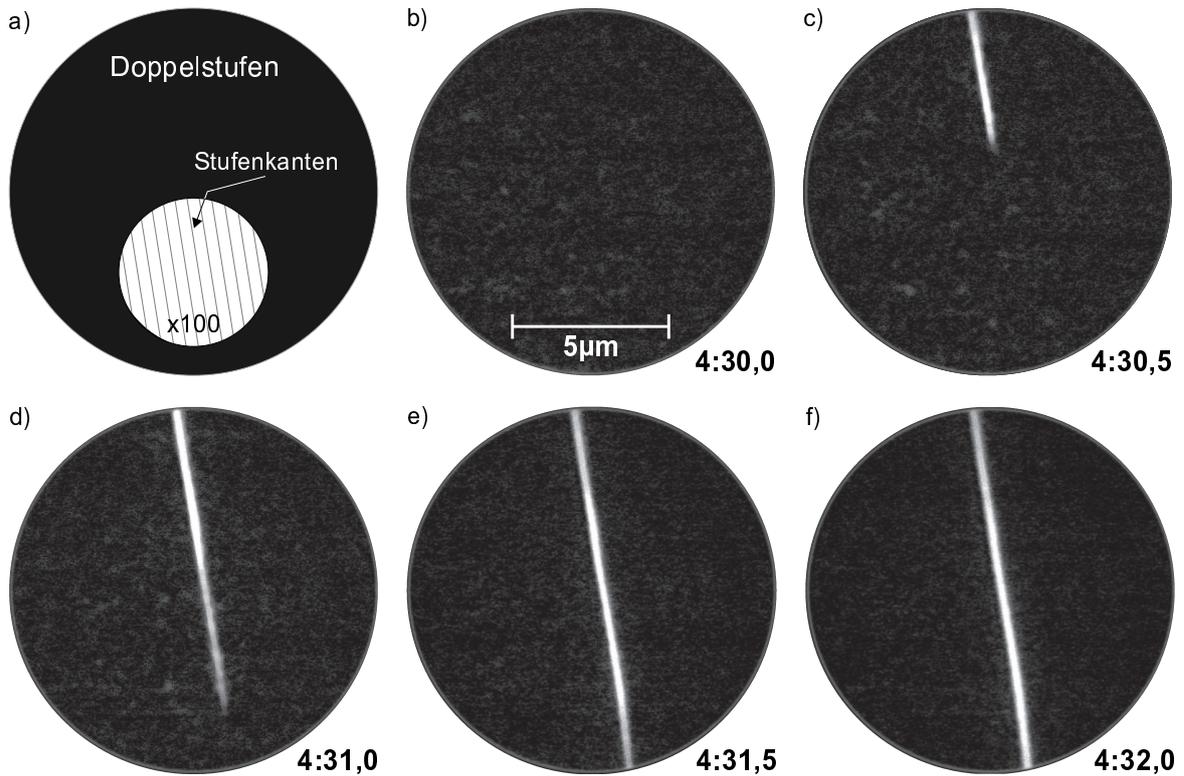


Abbildung 8.1: Kondensation der (5×3.2) Rekonstruktion und Bildung einer (001) Terrasse. a) Die Doppelstufen der Ausgangsfläche können nicht aufgelöst werden. b) Vor der Kondensation zeigt die Ausgangsfläche keinen Kontrast. c)–f) Die Terrasse kondensiert und propagiert anschließend anisotrop entlang der Stufenkanten des Substrates. Die Depositionszeiten sind notiert.

die Stufenmorphologie zunächst unverändert bleibt. Erst nach Erreichen der kritischen Bedeckung Θ_{krit} und Kondensation der (5×3.2) Rekonstruktion aus dem Gittergas unter gleichzeitiger Bildung einer (001) Terrasse ist ein Kontrastmechanismus vorhanden. In Abb. 8.1 erscheinen Terrassen hell, da mit der Kontrastblende des Mikroskopes eine Hellfeldbedingung für (001) Flächen ausgewählt wurde.

Nach erfolgter Keimbildung propagiert die Terrasse innerhalb weniger Sekunden anisotrop entlang der Stufenkanten des Substrates durch das Gesichtsfeld (c)–(f). Um die Propagation zeitaufgelöst analysieren zu können, wurden in Abb. 8.2 Schnitte in enger zeitlicher Abfolge durch die Terrasse aus Abb. 8.1 gelegt. Die Terrasse kondensiert zu einem unbekanntem Zeitpunkt außerhalb des Gesichtsfeldes und läuft sehr schnell von oben in das Gesichtsfeld hinein (t_0), dort verlangsamt sich ihre Evolution. Bei t_1 wird die Terrasse nahezu schlagartig länger, und läuft schließlich bis t_2 langsam durch das gesamte Bild hindurch. Eine Begründung für die starke lokale Variation der Propagationsgeschwindigkeit ist den LEEM Aufnahmen nicht direkt zu entnehmen. Da jedoch

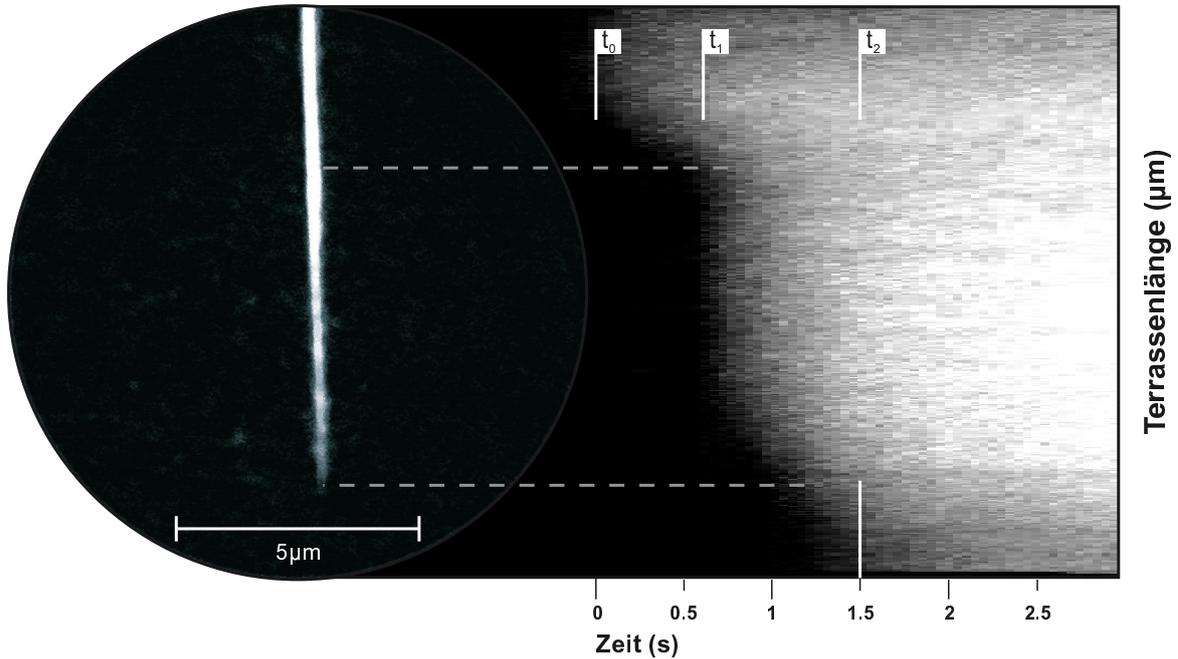


Abbildung 8.2: Zur Propagationsgeschwindigkeit einer Terrasse. Zeitaufgelöste Schnitte durch eine Serie von LEEM Bildern wurden zu einer Graustufenabbildung zusammengesetzt. Die Terrasse läuft zum Zeitpunkt t_0 von oben in das Gesichtsfeld, propagiert bis t_1 , springt schlagartig bis t_2 und dehnt sich langsam weiter aus (t_3).

die Evolution der Terrasse mit enormen Massentransport und einer Verschiebung der Stufenkanten verbunden ist, muß die Begründung für die unregelmäßige Ausbreitung in der lokalen Feinstruktur der Doppelstufenfolge gesucht werden. Hier können beispielsweise Defekte auf atomarer Skala genannt werden, die Stufenkanten “pinnen” und die Diffusion erschweren. Makroskopische Auswirkungen solcher mikroskopischer Defektstellen sind bereits von anderen Systemen bekannt[45, 48, 100].

Wird für mehrere Terrassen äquivalent zu Abb. 8.2 aus den Knickstellen die Geschwindigkeit bestimmt und über der Zeit aufgetragen, so ergibt sich Abb. 8.3. Die Auswertung wurde dort für die ersten 5 auf der Oberfläche kondensierten Terrassen durchgeführt. Eine Beschränkung auf diese geringe Terrassenanzahl erfolgte, da die benötigte Rechenzeit und die anfallenden Datenmengen extrem sind: Für die gezeigten Terrassen wurden zunächst aus VHS Videobändern insgesamt knapp 2 GByte Bilddaten extrahiert, mit einer Bildbearbeitungssoftware wurden die Bilder gedreht und die Schnitte berechnet. Über weitere Umwege wurde aus den einzelnen Bildteilen ein Äquivalent zu Abb. 8.2 erstellt, die Knickstellen markiert und die Positionen in Abb. 8.3 eingetragen. Obwohl die Geschwindigkeit jeder einzelnen Terrasse in Abb. 8.3 lokal stark variiert, ergibt sich bei Mittelung ein einheitlicheres Bild. Es werden für die analysierten Ter-

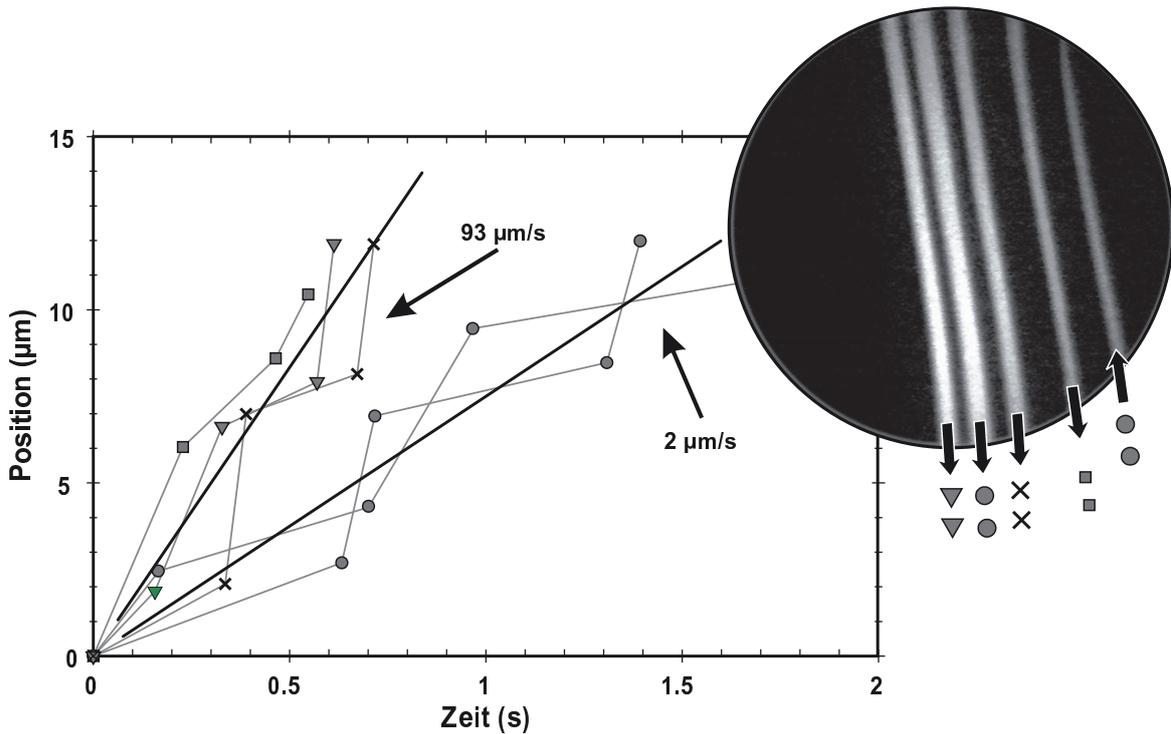


Abbildung 8.3: Zur Auswertung der Geschwindigkeit. Aus zu Abb. 8.2 äquivalenten Bildern wurde für mehrere Terrassen die Länge der Terrasse im LEEM Gesichtsfeld über der Zeit aufgetragen. Es wurden Spitzengeschwindigkeiten von $93\mu\text{m/s}$ beobachtet. Die mittleren Geschwindigkeiten variieren zwischen $7\mu\text{m/s}$ und $20\mu\text{m/s}$.

rassen mittlere Geschwindigkeiten zwischen $7\mu\text{m/s}$ und $20\mu\text{m/s}$ und Spitzengeschwindigkeiten bis $93\mu\text{m/s}$ bestimmt. Der niedrigste beobachtete Wert beträgt $2\mu\text{m/s}$. Im Rahmen der Schwankungsbreite stimmen die genannten Werte gut mit demjenigen in Kapitel 5.3.5 aus der in-situ Lichtbeugung bestimmten Wert von $63\mu\text{m/s}$ überein.

In der vorgestellten Serie erfolgte die Deposition bei 870°C , es wurden wenige Keime gebildet, und die Keimbildung erfolgte außerhalb des Gesichtsfeldes. Aus den Lichtbeugungsdaten wurde demgegenüber bereits geschlossen, daß die Keimdichte bei tieferen Temperaturen größer ist. Dieses Ergebnis läßt sich auch mit LEEM bestätigen.

8.1.2 Ausbildung des Stufenbandes

Nachdem die Terrassen zunächst anisotrop entlang der ursprünglichen Stufenkanten propagieren, dehnen sie sich auch in der Richtung senkrecht zu den Stufenkanten aus und beginnen die Stufen zu verdrängen. Dies ist in Abb. 8.4 an drei LEEM Bildern exemplarisch dargestellt. Das deponierte Gold führt zu einer Vergrößerung der Berei-

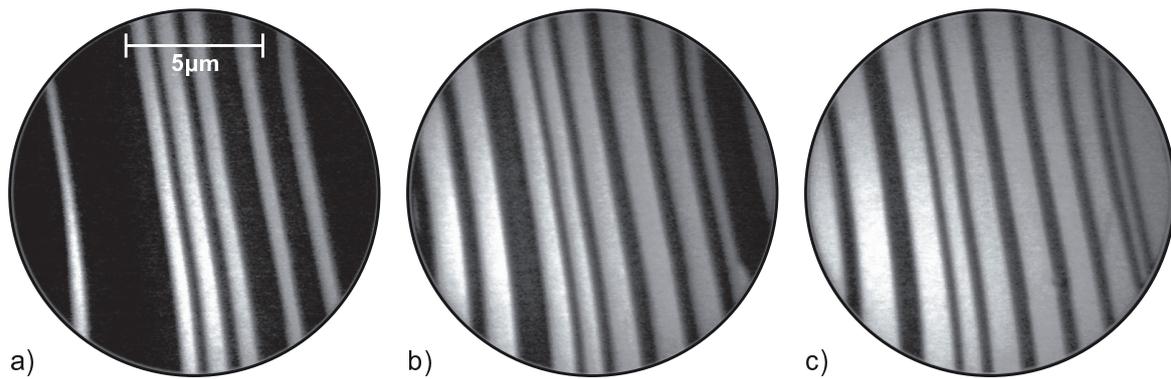


Abbildung 8.4: Zur Ausbildung des Stufenbandes. Die Goldbedeckung steigt von (a) bis (c) an. Die Terrassen dehnen sich in horizontaler Richtung langsam aus, und schieben die dazwischenliegenden Stufen zu sogenannten Stufenbändern zusammen.

che mit (5×3.2) Rekonstruktion und damit einhergehend zu einer Vergrößerung der Terrassen. Die gestuften Bereiche zwischen den Terrassen, im LEEM dunkel abgebildet, werden schmaler. Während zu Beginn der Facettierung 4° fehlgeneigte Bereiche mit (001) Terrassen und Stufenbündeln nahe der Terrassen koexistierten, führt die stetige Verbreiterung der Terrassen zu einer Verdrängung der 4° Bereiche. Die Anzahl der Stufen zwischen den Terrassen, die bereits in der Kondensationsphase festgelegt wird, bleibt hierbei konstant und die gestuften Bereiche werden zunehmend steiler. In Abb. 4.8 wurde dieser Prozeß bereits aus der Analyse der SPA-LEED Daten geschlossen. Dort wurde die maximale Steigung des Stufenbandes zu ca. 16° bestimmt. Aus dem Längenverhältnis von Terrasse und Facette kann dieser Wert auch aus den LEEM Daten abgeschätzt werden. Für Abb. 8.4 (c) ergibt sich eine Steigung der Stufenbündel von 15° .

8.1.3 Die Umordnung des Stufenbandes in Facetten

Nachdem das Stufenband seinen maximalen Neigungswinkel erreicht hat kann das Gold nicht mehr dazu verwendet werden, die Terrassen zu vergrößern. Eine lokale Analyse der Goldbedeckung aus Photoemissionsmessungen (siehe Kapitel 9.3.2) zeigt, daß bei weiterer Deposition die Goldbedeckung auf den Stufenbändern stark ansteigt. Dies führt zu einer Umordnung des Stufenbandes in Facetten, deren temperaturabhängige Orientierung bereits anhand von Abb. 4.13 diskutiert wurde. In diesem Kapitel soll ausschließlich auf die Goldadsorption bei Substrattemperaturen oberhalb von 850° eingegangen werden, wenn ausschließlich (119) Facetten gebildet werden. In Abb. 8.5 sind LEEM Aufnahmen dieses letzten Stadiums der Facettierung gezeigt.

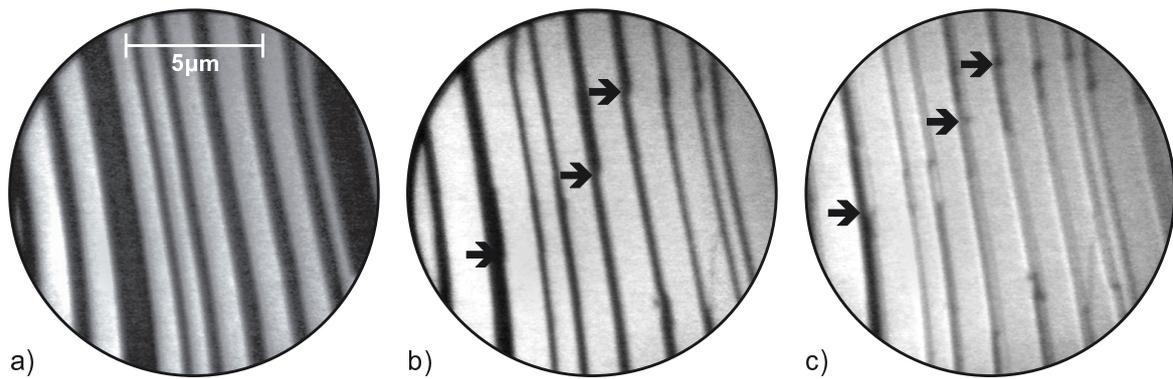


Abbildung 8.5: Umordnung des Stufenbandes in (119) Facetten. Die Goldbedeckung steigt von (a) bis (c). Die Pfeile markieren “Superkinken”, die eine azimuthale Vicinalität des Substrates kompensieren.

Auffällig ist zunächst, daß die Facettenbereiche in (c) heller erscheinen als das Stufenband (a). Dies ist experimentell zu begründen: In der Brennebene des LEEM Instrumentes (LEED– Bild) liegen die Facettenreflexe der (119) Facetten näher an dem (00) Reflex der Terrassen als vorher die Stufenbandreflexe (vergleiche hierzu auch Abb. 4.8). Bei der verwendeten Elektronenenergie von 6eV, nahe der ersten Gegenphasebedingung, schneiden die Facettenstangen die (001) Terrassenstangen, wie in Abb. 4.6 dargestellt, und es ist nicht mehr möglich mit der Kontrastblende des LEEM Instrumentes Terrassen– und Facettenreflex vollständig voneinander zu separieren. Diese Bedingung führt zu einem Kontrastmechanismus, der es überhaupt erst ermöglicht, Stufenband und Facetten voneinander zu unterscheiden: Das Stufenband wird dunkel, die Facetten dunkelgrau und die Terrassen werden hellgrau abgebildet.

Es muß betont werden, daß die Umordnung des Stufenbandes in Facetten auf Kosten des Flächenanteils der (001) Terrassen geschieht. Eine Facette mit einer Neigung von 15° benötigt weniger Platz auf der Oberfläche als eine (119) Facette identischer Stufenanzahl. Teile bereits vorhandener (001) Terrassen werden daher in diesem Stadium in (119) Facetten umgewandelt. Vermutlich ist die höhere Goldbedeckung der Terrassen der Grund, weshalb die Facettenbildung immer an Terrassenkanten beginnt, und der Umordnungsprozeß entlang der Terrassenkanten abläuft. Auch hier findet wieder Stepbunching statt, denn die (119) Facetten schieben Stufen, die in einer azimuthalen Fehlneigung des Substrates begründet sind, entlang der (001) Terrassenkanten vor sich her und bilden “Superkinken”. In Abb. 8.5 (b) und (c) kann die zeitliche Entwicklung einiger dieser Kinken anhand der Pfeile verfolgt werden. Besonders deutlich wird die Facetten– und Kinkenbildung anhand von Abb. 8.6. Dort ist der Endzustand der Oberfläche unter verschiedenen Abbildungsbedingungen abgebildet. Um die Kinken

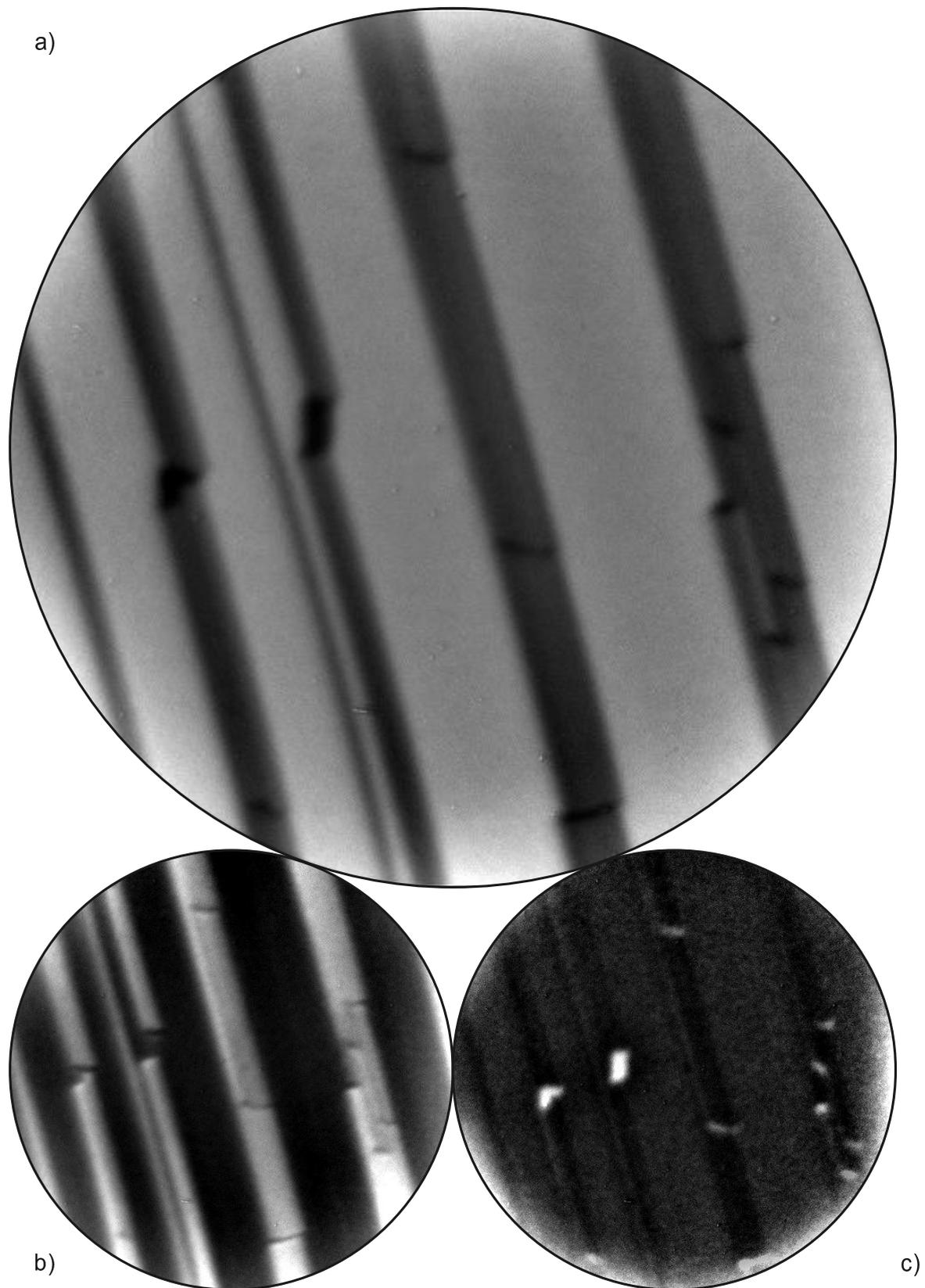


Abbildung 8.6: Zum Endzustand. a) Hellfeldabbildung, b) Dunkelfeldabbildung der Facetten, c) Dunkelfeldabbildung der Kinken. Das Gesichtsfeld beträgt $4.5\mu\text{m}$.

deutlicher abzubilden wurde eine etwas höhere Vergrößerung gewählt, das Gesichtsfeld entspricht in diesen Bildern $4.5 \mu\text{m}$. In (a) ist zunächst eine Hellfeldabbildung der Oberfläche gezeigt. Deutlich sind die glatten (001) Terrassen zu erkennen, die durch Facetten getrennt werden. Wird in der Brennebene des LEEM Instrumentes das LEED Bild mit Deflektoren leicht verschoben, so ist es jedoch auch möglich eine Bedingung zu finden, in der die Facetten hell und die Terrassen dunkel abgebildet werden (Dunkelfeldabbildung mit einem Facettenspot), wie in Teilbild (b). Bei weiterer Verschiebung des LEED Bildes ist es überraschenderweise ebenfalls möglich, eine Dunkelfeldbedingung für die Kinken zu finden (c).

Die gezeigten Superkinken lassen sich in zwei Gruppen klassifizieren, je nachdem ob sie ungestört die gesamte Facette durchlaufen (linke Seite von Abb. 8.6 (a)), oder ob sie unterbrochen sind (rechte Seite von Abb. 8.6). Da auch für die Kinken die Bedingung der Stufenerhaltung gilt, muß stets zwischen zwei Kinken eine (001) Terrasse liegen. Während der Umwandlung des Stufenbandes in Facetten müssen daher immer noch neue Terrassen kondensieren, die allerdings, da die übrige Fläche bereits facettiert ist, in ihren Ausdehnungsmöglichkeiten stark beschränkt sind.

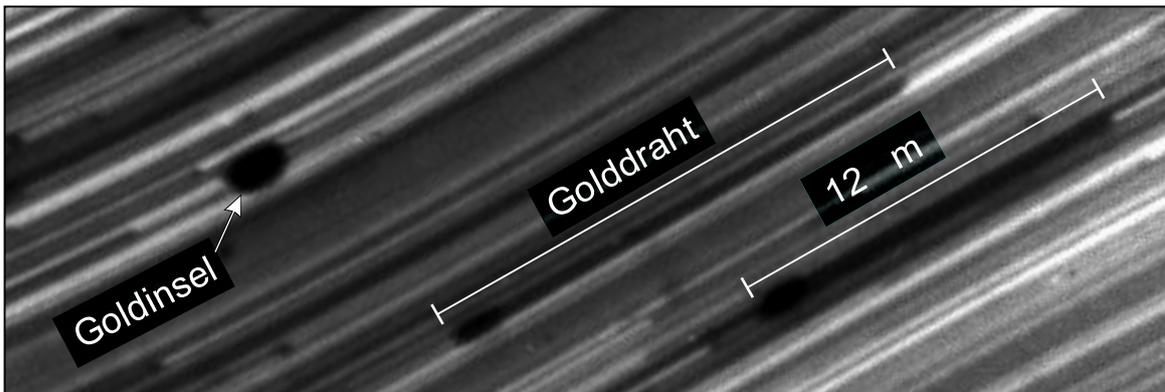


Abbildung 8.7: Endzustand der facettierten Fläche mit dreidimensionalen Clustern, die dunkel abgebildet werden. Durch Au-deposition nach erfolgter Facettierung können mehrere μm lange Golddrähte gewachsen werden.

Wird nach der Umordnung weiter Gold deponiert, so kann auch mit dem LEEM die Bildung von Clustern beobachtet werden, die in Abb. 8.7 als dunkle Flecken erscheinen. Die dreidimensionalen Inseln stören aufgrund ihrer Höhe die Abbildung des LEEM, weshalb sie größer erscheinen als sie in Wirklichkeit sind. Die Cluster bilden sich bevorzugt auf den (001) Terrassen an Kinken in der Facettenstruktur und ihre längliche Form entspricht der Richtung der Stufenkanten. Durch Langzeitdeposition war es möglich, "Drahtstrukturen" mit einer Länge bis zu mehreren Mikrometern und der Breite einer (001) Terrasse zu wachsen.



8.2 Analyse des LEED Bildes mit LEEM

Mit Hilfe der Dunkelfeldtechnik soll im Folgenden versucht werden, einzelne Ergebnisse aus Kapitel 4 zu präzisieren und weitere Erkenntnisse über die atomare Struktur der (5×3.2) Rekonstruktion zu erhalten.

8.2.1 ungeradzahlige Terrassen

Es wurde bereits beschrieben, daß in einem Zwischenstadium während der Deposition von Gold auf der vicinalen Si(001) Fläche ungeradzahlige Terrassen auftreten (die gewählte Nomenklatur folgt Kapitel 4.1.1), deren LEED Bild um 90° gegenüber den geradzahligen Terrassen gedreht ist. Mit Hilfe einer LEEM Dunkelfeldabbildung bietet sich eine Möglichkeit die beiden Terrassentypen zu unterscheiden und sogar die zeitliche Entwicklung der ungeradzahligen Terrassen zu verfolgen, die nach der Facettierung der Oberfläche nicht mehr vorhanden sind. In Abb. 8.8 ist ein SPA-LEED

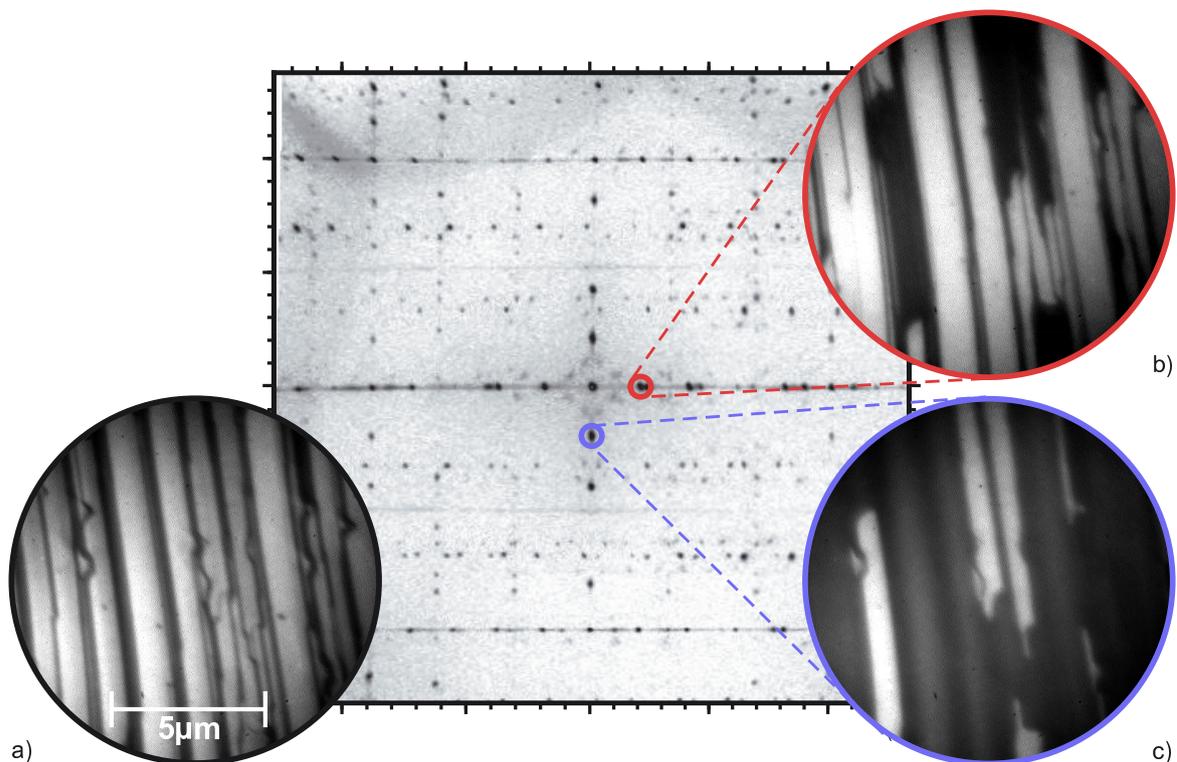


Abbildung 8.8: LEEM Dunkelfeldabbildungen nach Abbruch der Deposition im Stufenbandbereich. (a) Hellfeldbild, (b) Dunkelfeldbild für geradzahlige Terrassen, (c) Dunkelfeldbild für ungeradzahlige Terrassen. Die zur Abbildung verwendeten Reflexe sind in dem SPA-LEED Bild markiert.

Bild aus dem Stadium des Stufenbandes zusammen mit einigen LEEM Aufnahmen gezeigt. Das Hellfeldbild der Oberfläche entspricht Teilbild (a), während (b) und (c) Dunkelfeldbilder der gekennzeichneten Reflexe darstellen. Die Probenorientierung ist so gewählt, daß (b) geradzahlige Terrassen hell abbildet, (c) ungeradzahlige. Beide Teilbilder sind leicht gegeneinander verschoben, anhand der Morphologie kann jedoch geschlossen werden, daß Terrassen, die in (b) hell abgebildet werden, in (c) dunkel erscheinen und umgekehrt. Die Stufenbänder besitzen in beiden Bildern keine Intensität.

In den Teilbildern (b) und (c) ist zunächst keine Systematik in dem Wechsel zwischen geradzahligen- und ungeradzahligen Terrassen zu erkennen. Die Trennungslinien verlaufen in der Regel senkrecht zu den Stufenkanten der Superterrassen. Bei Vergleich mit der Hellfeldabbildung (a) ist zu erkennen, daß die Bildung der ungeradzahligen Terrassen bevorzugt an Defekten auf der Oberfläche auftritt. An diesen Defekten werden die Stufen der Ausgangsfläche beim Reinigen der Probe durch Glühen (“Flashen”) gepinnt, so daß Störungen in der Doppelstufenfolge häufiger sind, als auf einer defektfreien Fläche. Videoaufzeichnungen während der Deposition unter Dunkelfeldbedingungen für ungeradzahlige Terrassen zeigen, daß sich diese nach der Kondensation aus dem Gittergas ebenfalls anisotrop ausdehnen, wobei die präferentielle Richtung gegenüber den geradzahligen Terrassen jedoch um 90° gedreht ist. Eine Vergrößerung der ungeradzahligen Terrassen führt daher zu einem massiven Stepbunching. Dieser Prozeß endet rasch, denn die Substratstufen können nicht beliebig dicht zusammengeschieben werden. Gleichzeitig kondensiert das Gold auf der Oberfläche in geradzahligen Terrassen, die nun beginnen, die ungeradzahligen Terrassen zusammenzuschieben. Ist die Fläche gut präpariert, wenig mit Defekten durchsetzt und nicht zu geringer Fehlneigung, so können die ungeradzahligen Terrassen nahezu vollständig von der Oberfläche verdrängt werden.

8.2.2 Rekonstruktionsdomänen

Das Strukturmodell für die (5×3.2) Rekonstruktion aus SPA-LEED Daten erforderte zur Erklärung aller Reflexe das Vorhandensein zweier Spiegeldomänen. Mit LEEM ist es möglich, diese Spiegeldomänen voneinander zu trennen. Hierzu wird eine Kombination von Dunkelfeldtechnik mit “micro-spot LEED” verwendet, die Ergebnisse sind in Abb. 8.9 zusammengefaßt. In Teilbild (a) ist zunächst wieder das Hellfeldbild der Oberfläche gezeigt. Für die micro-spot LEED Untersuchungen wird anschließend eine Blende in den Beleuchtungsarm des LEEM eingefügt (Beleuchtungsblende), so daß auf der Probe nur eine Stelle von $1.3\mu\text{m}$ ausgeleuchtet wird. Das LEED Bild in der hinteren Brennebene wird auf den Leuchtschirm abgebildet und anschließend die Be-

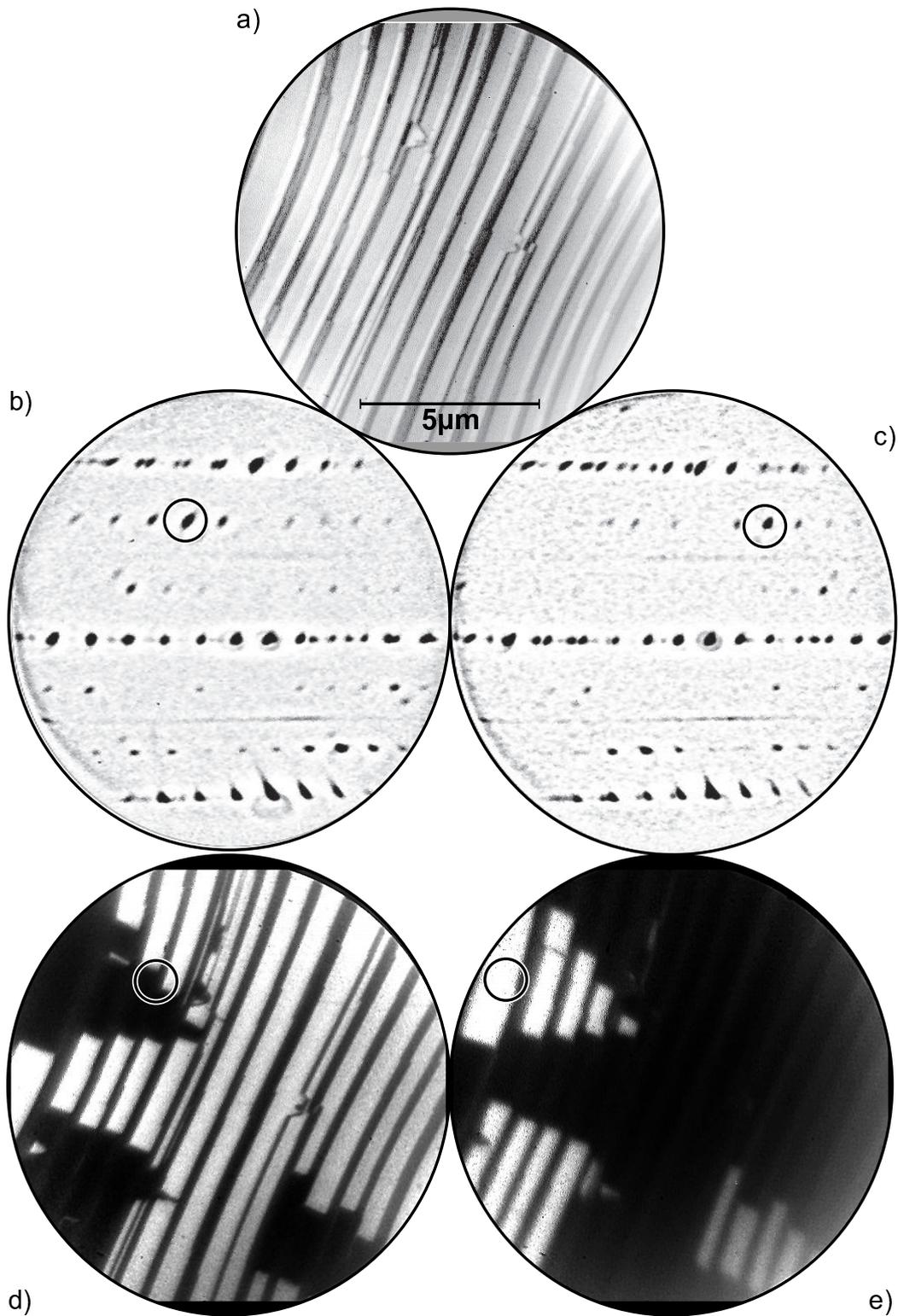


Abbildung 8.9: Kombination von Micro-Spot LEED und Dunkelfeldabbildung. a) Hellfeld b) LEED Bild des markierten Bereiches in (d), c) LEED Bild des markierten Bereiches in (e), d) LEEM Dunkelfeldbild des in (b) markierten Reflexes, e) LEEM Dunkelfeldbild des in (c) markierten Reflexes.

leuchtungsblende mechanisch leicht verschoben. Abhängig von der Position der Blende können dann die LEED Bilder (b) und (c), oder auch eine Überlagerung von beiden, beobachtet werden. Es muß betont werden, daß diese Teilbilder (b) und (c) jeweils LEED Bildern einer $1.3\mu\text{m}$ großen Stelle auf der Probe entsprechen (“micro-spot”).

Um die Entstehung des LEED Bildes im Ortsraum zu studieren, kann zusätzlich zur Beleuchtungsblende die Kontrastblende in den Strahlengang eingeführt werden, und so z.B. der in Teilbild (b) markierte Reflex für eine Dunkelfeldabbildung ausgewählt werden. Wird anschließend der Realraum auf dem Leuchtschirm abgebildet, so ist nur ein heller Fleck zu erkennen, der die Größe der beleuchteten Stelle auf der Probe widerspiegelt. Nach Entfernen der Beleuchtungsblende entsteht Teilbild (d), nun eine Dunkelfeldabbildung der LEED Struktur in (b). Die markierte Position in (d) gibt die vorherige Position der Beleuchtungsblende an, so daß (b) ein LEED Bild der markierten Position in (d) darstellt und (d) eine Dunkelfeldabbildung des markierten Reflexes in (b). Eine äquivalente Argumentationskette gilt für die Teilbilder (c) und (e). Eine Überlagerung beider Realraumbilder, (d) und (e), ergibt das Hellfeldbild in (a). Außer den beiden gezeigten Rekonstruktionsdomänen sind daher keine weiteren Strukturelemente auf den Terrassen vorhanden. Das in Kapitel 4 vorgeschlagene Modell zweier gespiegelter Rekonstruktionsdomänen wird daher durch die LEEM Untersuchungen bestätigt.

Die Rekonstruktionsdomänen selbst können sehr groß werden, wie in Abb. 8.10 anhand zweier Dunkelfeldbilder mit einem Gesichtsfeld von $40\mu\text{m}$ gezeigt ist. Das Umklappen einer Spiegeldomäne in die andere kann direkt auf einer (001) Terrasse erfolgen. Dagegen scheint eine Korrelation der Spiegeldomänenstruktur von einer Terrasse zu der benachbarten über die Facetten hinweg zu bestehen. Ein zufälliger Wechsel der Orientierung von einer Terrasse zur anderen widerspricht der Beobachtung großer zusammenhängender Bereiche, wie sie in Abb. 8.10 auftreten. Der Mechanismus der Korrelation wurde nicht weiter untersucht, denkbar ist jedoch eine Kommunikation über Kinken oder die Rekonstruktion auf den Facetten.

8.2.3 Fluktuation der Domänengrenzen

Bei Betrachtung von Abb. 8.10 fällt auf, daß die Orientierung der Spiegeldomänen direkt auf einer Terrasse wechseln kann, die Domänengrenze liegt dann senkrecht zu den Stufenkanten des Substrates. Nach der Adsorption kann bereits ab Substrattemperaturen von ca. 700°C , eine zeitliche Veränderung der Domänengrenzen beobachtet werden. Um diese Fluktuationen abzubilden, muß eine Dunkelfeldbedingung für eine Art von Spiegeldomäne gewählt werden, wie im vorigen Abschnitt bereits beschrieben.

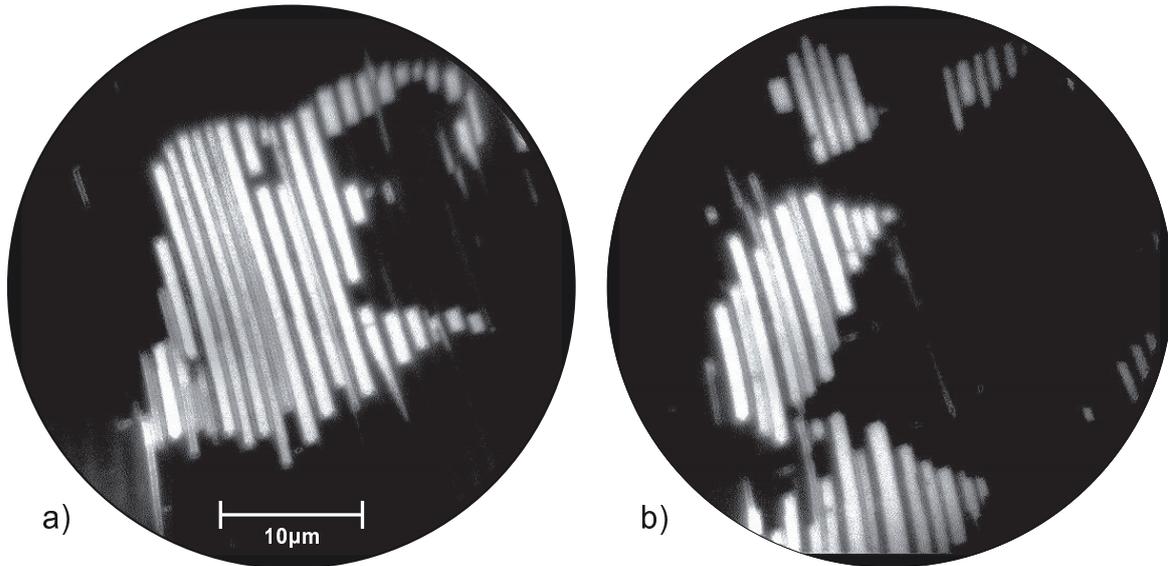


Abbildung 8.10: Dunkelfeldabbildungen der Spiegeldomänen. Das Gesichtsfeld beträgt $40\mu\text{m}$. Die Orientierung der Spiegeldomänen wechselt auf den Terrassen, während über die Facetten hinweg eine Korrelation zu bestehen scheint.

Die LEEM Aufnahme Abb. 8.11 (a) zeigt ein solches Dunkelfeldbild, entsprechend einem Ausschnitt von $5\mu\text{m}$ auf der Probe. Mit dem Computer wurden nun Schnitte in die Videosequenz gelegt, und diese als Graustufendarstellung des zeitlichen Verhaltens der Domänengrenze aneinandergehängt. Anhand von Teilbild (b) kann für eine Substrattemperatur von 800°C die Amplitude der Fluktuationen zu ca. 150nm bestimmt werden. Für das Verständnis des Phänomens ist es entscheidend, daß die Fluktuationen unter Hellfeldbedingungen nicht zu beobachten sind, da eine Unterscheidung der beiden Spiegeldomänen dort nicht möglich ist. Die Fluktuationen entstehen daher durch ein stetiges Umklappen einer Spiegeldomäne in die andere und wieder zurück. Daß dieser Prozeß ordnend in die mesoskopische Anordnung der Domänen eingreift, wird anhand Teilbild (c) deutlich. Dort beginnt eine Domänengrenze so stark zu fluktuieren, daß sie mit einer benachbarten Domäne verschmilzt. Diese Verbindung ist dauerhaft und kann auch durch Erhöhung der Substrattemperatur nicht wieder getrennt werden. Die in (c) mit einem Pfeil markierte Linie entspricht einem Defekt im Channelplate des Leuchtschirms und bedarf daher keiner physikalischen Interpretation.

Die beschriebene Fluktuation der Domänengrenzen, zusammen mit der der Verschmelzung, stellen einen ordnenden Prozeß auf der Oberfläche dar. Entstehen zwei kleine Domänen nahe beieinander, so können sie verschmelzen und eine gemeinsame größere Domäne bilden. Erst wenn der Abstand zwischen den Domänen viel größer ist als die Amplitude ihrer Fluktuation, ist das Verschmelzen nicht mehr möglich.

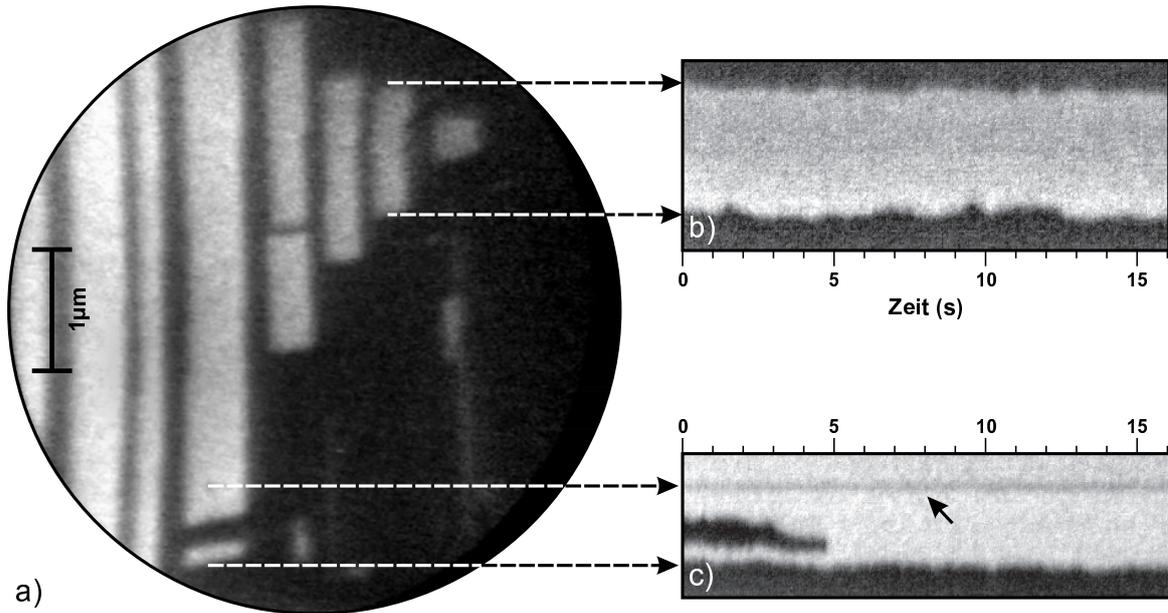


Abbildung 8.11: Fluktuation der Domänengrenzen. (a) Dunkelfeldabbildung einer Spiegeldomäne bei $T=800^{\circ}\text{C}$. (b) Schnitte durch die LEEM Aufnahme mit zeitlicher Auflösung, (c) Verschmelzen zweier Domänenbereiche.

Es wäre wünschenswert, eine temperaturabhängige Analyse der Fluktuationsamplitude durchführen zu können. Dies scheitert allerdings an zwei Problemen: Einerseits ist bei niedrigen Temperaturen die Fluktuationsamplitude unterhalb der lateralen Auflösungsgrenze des Mikroskopes, andererseits verschwindet bei höheren Temperaturen der Kontrastmechanismus, wie im folgenden Abschnitt beschrieben wird.

8.2.4 Der “Memory Effekt”

Um das temperaturabhängige Verhalten der Domänenstruktur zu beschreiben, ist in Abb. 8.13 eine Folge von LEEM Dunkelfeldbildern während eines Temperzyklus gezeigt. Die Teilbilder (a), (b) und (c) wurden während des Aufheizens der Probe aufgenommen, die Teilbilder (e), (f) und (g) während des Abkühlens. Bild (d) entspricht dem Punkt maximaler Temperatur. Eine genaue Angabe der jeweiligen Proben­temperatur ist nicht möglich, denn um Desorption während des Temprens zu vermeiden, wurde die Temperaturvariation sehr zügig durchgeführt. Es ist daher anzunehmen, daß die von einem Thermo­element nahe der Probe abgelesenen Werte nicht mit der wahren Proben­temperatur übereinstimmen.

Auf den Bildern während des Aufheizens ist zu erkennen, wie der Domänen­kontrast mit steigender Temperatur langsam verschwindet. Die Morphologie der facettierten



Oberfläche bleibt jedoch bestehen (d). Bei dem nachfolgenden Abkühlen entsteht der Domänenkontrast wieder — allerdings ordnen sich die Spiegeldomänen unerwarteterweise an den selben Stellen an, wie zuvor. Die Domänenwandstruktur der (5×3.2) Rekonstruktion durchläuft während der Temperkurve zwar einen Ordnungs–Unordnungs Phasenübergang, “merkt” sich dabei jedoch die vorherige Anordnung der Spiegeldomänen.

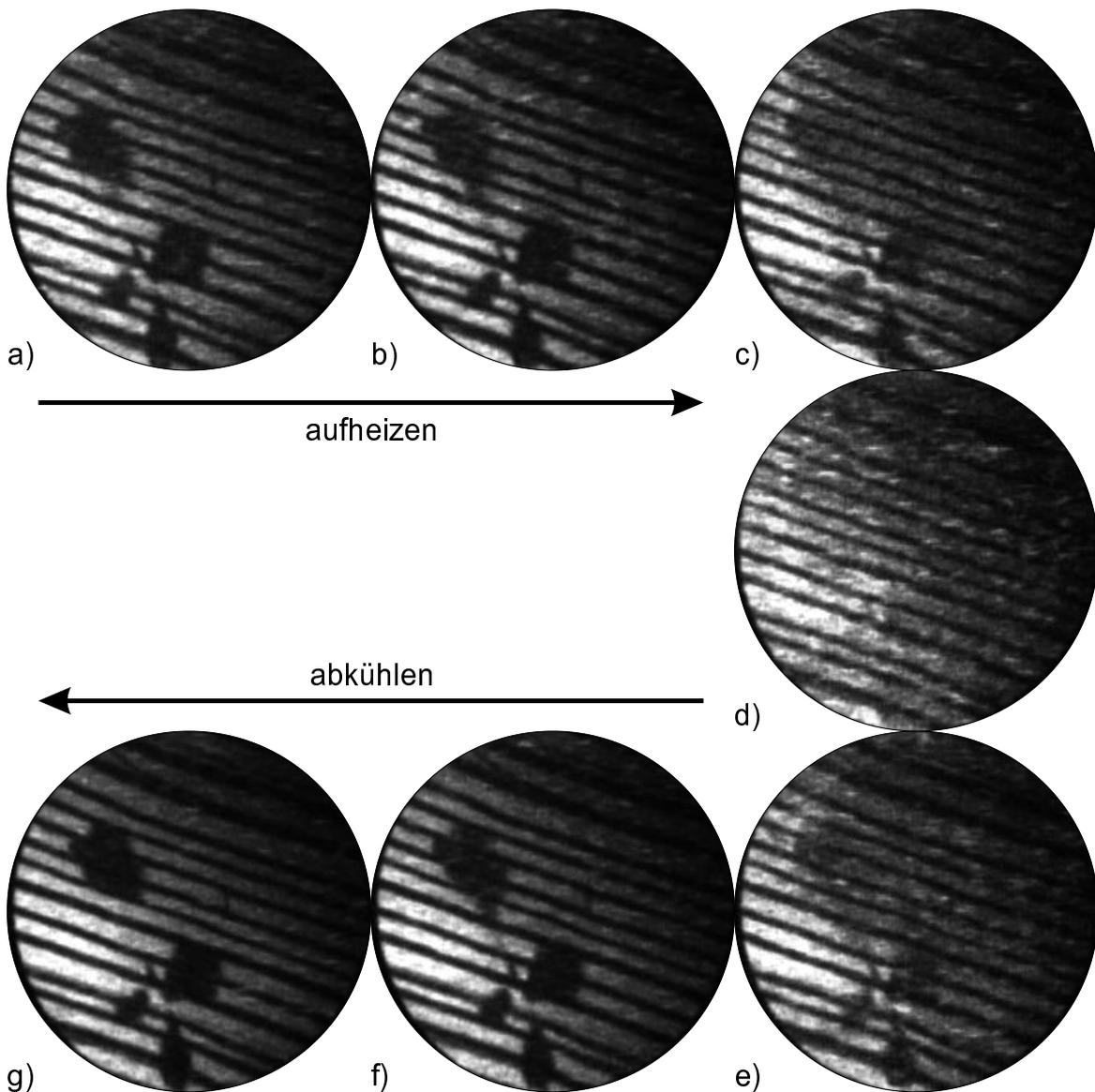


Abbildung 8.12: Serie von Dunkelfeldbildern während einer Temperkurve zur Erläuterung des “memory Effekt”. a)–c) Aufheizen der Probe, d) Punkt höchster Temperatur, e)–g) Abkühlen der Probe. Obwohl in d) der Domänenkontrast verschwunden ist, “merkt” sich die Probe die vorherige Domänenstruktur.

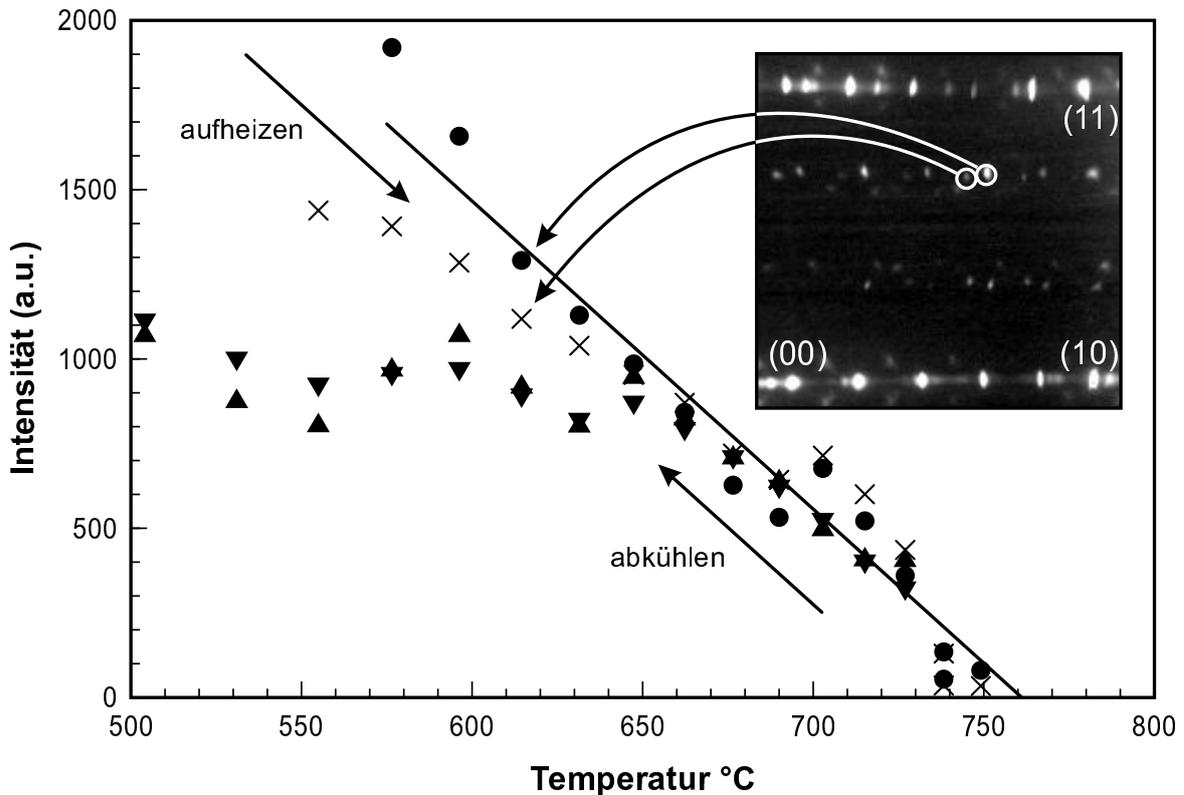


Abbildung 8.13: Mit SPA-LEED bestimmte Temperaturabhängigkeit zweier Domänenstrukturreflexe. ●, ×: Aufheizen, ▼, ▲: Abkühlen. Bei 760°C sind die Reflexe vollkommen im Untergrund verschwunden. Aufgrund von Au-Desorption während des Heizens wird beim Abkühlen die Anfangsintensität der Reflexe nicht wieder voll erreicht.

Um diesen Effekt zu verstehen, wurde das Temperexperiment mit SPA-LEED wiederholt und die gefittete integrale Intensität der Spiegeldomänenreflexe in Abb. 8.13 über der Temperatur aufgetragen. Die stark unterschiedliche Intensität der beiden analysierten, in dem SPA-LEED Inset markierten Reflexe wurde durch Multiplikation der Intensität des schwächeren mit einem konstanten Faktor angepaßt. Die oberen beiden Kurven entsprechen den Reflexintensitäten beim Aufheizen, die unteren beiden den Intensitäten beim nachfolgenden Abkühlen. Der Unterschied in der Anfangs- und Endintensität wird auf Desorption von Gold zurückgeführt, die bei diesen Temperaturen nicht mehr vernachlässigt werden darf. Bei Temperaturen unterhalb von 550°C bleibt die Intensität der Reflexe nahezu konstant, bei Temperaturerhöhung fällt die Intensität jedoch ab. Oberhalb von 760°C sind die Reflexe der beiden Spiegeldomänen verschwunden. Während der Facettierung der Oberfläche bei Temperaturen oberhalb von 850°C ist die Domänenstruktur nicht vorhanden, im Gegensatz zu der fünffachen Periodizität entlang der (110) Richtung (vergl. Abb. 4.7 und Abb. 4.8).



In Kapitel 6.1 wurde die (5×3.2) Rekonstruktion der Oberfläche mit einer Domänenwandstruktur in Verbindung gebracht, zusammengesetzt aus einer Anordnung von (5×3) Einheitszellen, die durch Domänenwände einer $(\sqrt{29} \times 3)$ Struktur unterbrochen wird. Während die fünffache Periodizität in (110) Richtung von der Anordnung der (5×3) Einheitszellen herrührt, stammen die beobachteten LEED Reflexe der Spiegeldomänen von der atomaren Anordnung der $(\sqrt{29} \times 3)$ Einheitszellen auf der Oberfläche. Der Intensitätsabfall der Reflexe in Abb. 8.13 bedeutet, daß die $(\sqrt{29} \times 3)$ Einheitszellen schmelzen. Die verbleibenden (5×3) Zellen erzeugen keinen Kontrast im LEEM, da zwei Spiegeldomänen einer (5×3) Rekonstruktion mit Elektronenbeugung nicht unterscheidbar sind. In Abb. 8.14 (a) ist die atomare Konfiguration der (5×3) Einheitszellen in Anlehnung an das Strukturmodell von Lin gezeichnet [101]. Werden in der Einheitszelle wenige Atome vertauscht, so ergibt sich eine gespiegelte (5×3) Struktur (b). STM Aufnahmen zeigen [31], daß die Orientierung der (5×3.2) Spiegeldomänen in fester Beziehung zur Anordnung der Atome in der (5×3) Einheitszelle steht. Dies ist eine mögliche Erklärung für den “memory effect”: Oberhalb von 760°C sind die $(\sqrt{29} \times 3)$ Domänenwände vollständig geschmolzen, die Strukturinformation ist aber in der atomaren Anordnung der (5×3) Einheitszellen gespeichert. Bei Abkühlung gibt die atomare Struktur der (5×3) Einheitszellen dann die Orientierung der Domänenwände neu vor.

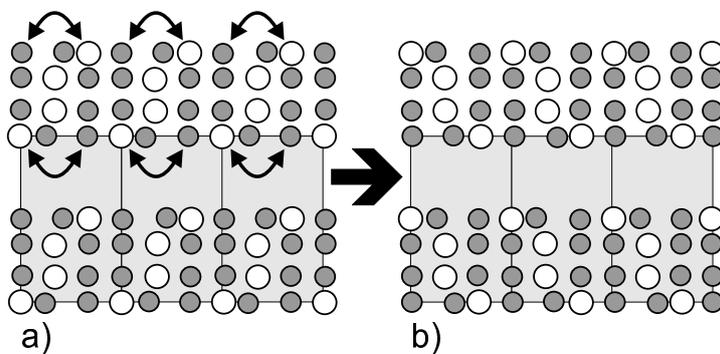


Abbildung 8.14: Strukturvorschlag für die beiden (5×3) Einheitszellen angelehnt an das Modell von Lin et. al. [101]. Durch Vertauschen weniger Atome in der Einheitszelle entsteht eine gespiegelte (5×3) Rekonstruktion.

8.3 Desorption des Goldes

Die SPA-LEED Untersuchungen zeigen (Abb. 4.18), daß die Berg- und Tal Struktur der facettierten Oberfläche mit Desorption des Goldes reversibel in den Ausgangszustand zurücktransformiert werden kann. Für die Durchführung des Experimentes genügt es, die Probe nach der Facettierung auf Adsorptionstemperatur zu belassen und den Verdampfershutter zu schließen, da die Desorptionsrate bereits bei der Adsorptionstemperatur von 850°C nicht mehr vernachlässigbar ist. Abb. 8.15 stellt gewis-

sermaßen die Wiederholung des Experimentes aus Abb. 4.18 im Ortsraum dar. Gezeigt ist eine Serie von LEEM Aufnahmen in einem festen zeitlichen Abstand von 30 Sekunden, die Goldbedeckung nimmt von (a) bis (t) ab. Beginnend im Stufenband (a) ist die Änderung der Oberfläche vollkommen reversibel zur Adsorption. Es entstehen längliche, anisotrope Terrassenstrukturen (j),(k), die mit sinkender Bedeckung immer kürzer werden (m)–(p) und schließlich vollkommen von der Oberfläche verschwinden (q)–(t).

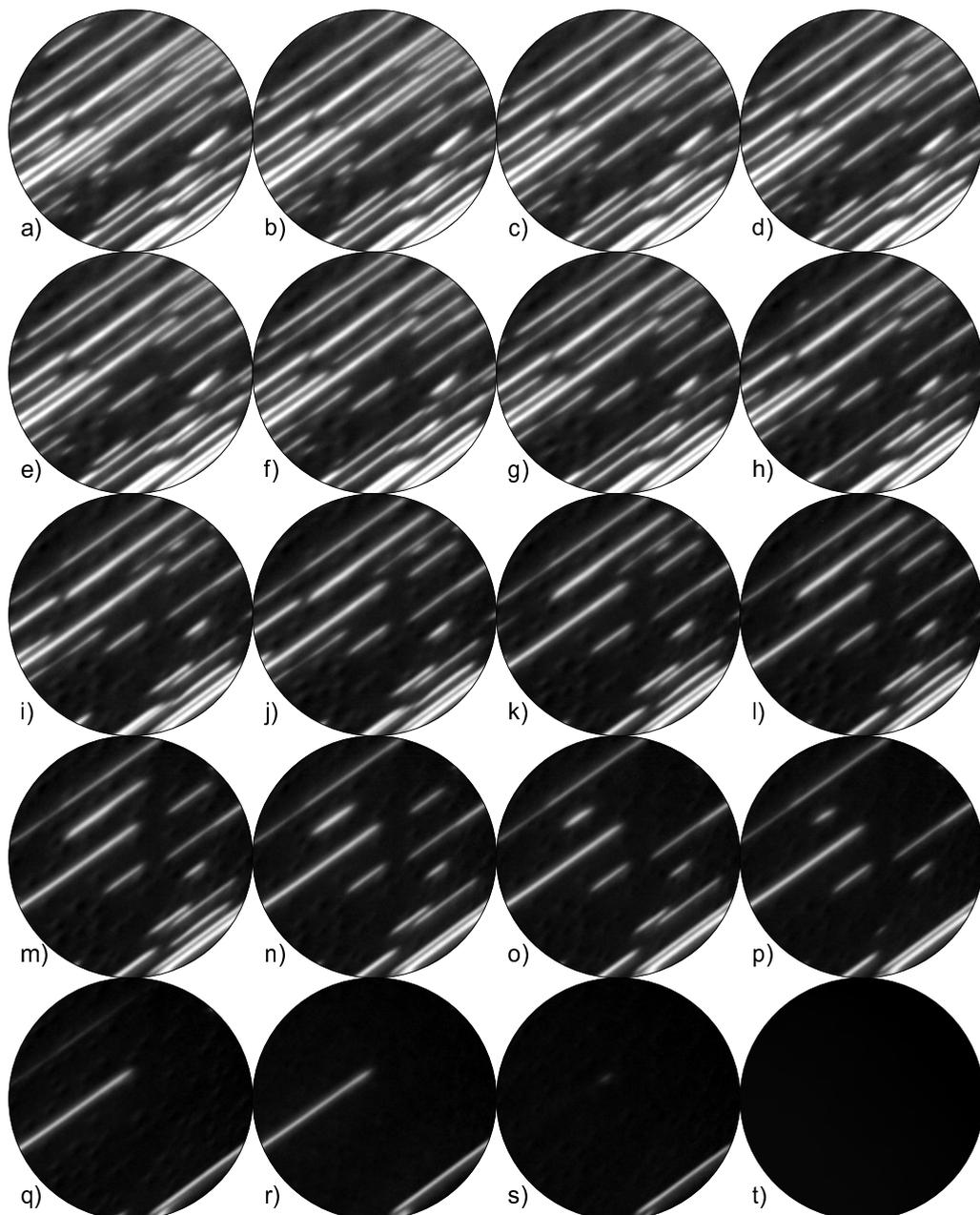
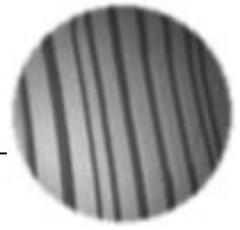


Abbildung 8.15: Die Au Desorption verläuft auch im Ortsraum vollkommen reversibel.



Kapitel 9

XPEEM

Um die lokale Goldbedeckung während der Facettierung bestimmen zu können, wurden mikroskopische Photoemissionsuntersuchungen mit weichen Röntgenstrahlen am Synchrotron ELETTRA in Trieste, Italien durchgeführt.

Die prinzipielle Funktionsweise des verwendeten SPE-LEEM Gerätes wurde bereits in Kapitel 7 beschrieben. In diesem Kapitel sollen die Photoemissionsergebnisse vorgestellt und diskutiert werden.

9.1 Analyse der Ausgangsfläche

Der Ablauf einer XPEEM Messung geschieht in mehreren Schritten. Zunächst wird an der Beamline eine Photonenenergie mit einem günstigen Streuquerschnitt für das zu beobachtende Element gewählt [102]. Für Gold und Silizium waren dies bevorzugt $E=77\text{eV}$ und $E=128\text{eV}$. Anschließend wird mit dem Analysator eine Folge von XPEEM Photos bei unterschiedlichen Energien aufgenommen.

Im Anschluß an die Meßzeit wurde im Rahmen dieser Arbeit eine Software entwickelt, mit deren Hilfe aus der Vielzahl von Bildern unterschiedlicher kinetischer Energien Spektren berechnet werden können. Als Beispiel hierfür ist in Abb. 9.1 das integrale Spektrum einer superfacettierten Silizium Oberfläche nach Desorption des Goldes und Reinigung durch Glühen gezeigt. Zu erkennen sind der Silizium 2p Peak bei 99.6eV Bindungsenergie [103] (a), ein Silizium Auger Peak bei 92eV [104] und das Silizium Valenzband (c). Anhand dieses Spektrums müssen einige experimentelle Details genannt werden, die zur Interpretation der im Folgenden vorzustellenden Messungen von großer Wichtigkeit sind.

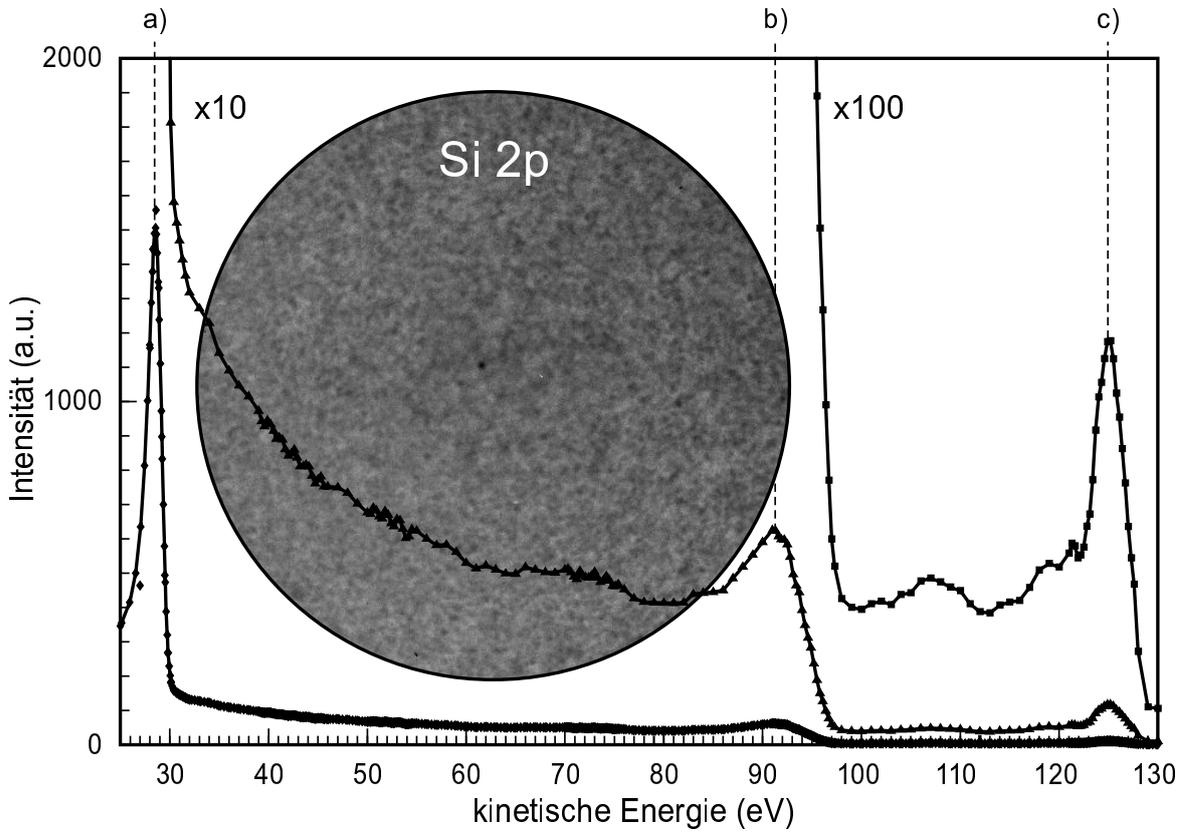


Abbildung 9.1: Spektrum einer reinen Silizium Oberfläche bei einer Photonenenergie von 128.5 eV. a) Si 2p Peak, b) Si Auger Peak (92eV) c) Silizium Valenzband, der Inset zeigt eine XPEEM Aufnahme bei 28eV kinetischer Energie.

Zunächst besitzt das SPE–LEEM im Photoemissionsbetrieb keine echte K–Raum Auflösung. Es ist zwar möglich, mit der Kontrastblende im Abbildungsweig mechanisch einen Winkelbereich auszuwählen, dies jedoch nicht mit der erforderlichen Genauigkeit. Eine vollständige Vermessung der Bandstruktur einer Probenoberfläche ist daher nicht möglich. Bei den facettierten Proben tritt zusätzlich das Problem zweier um 9° gegeneinander geneigter Flächen auf, die Elektronen in unterschiedliche Richtungen emittieren. Um beide Flächen mit gleicher Empfindlichkeit für Gold abzubilden ist es erforderlich, die Kontrastblende möglichst groß zu wählen. Dies verringert die K–Auflösung am beobachteten Γ Punkt, verhindert jedoch eine Vermischung von topographischer mit spektroskopischer Information. Um Abschattungseffekte zu vermeiden, wurde die Probenorientierung im SPE–LEEM der Richtung des einfallenden Lichtes angepaßt. Beide Flächen, Terrassen sowie Facetten, sind dann gegenüber der vicinalen Ausgangsfläche um ca. 4° geneigt.

Die Bestimmung der Fermi–Energie gestaltet sich im Fall des SPE–LEEM schwierig. Üblicherweise wird bei Photoemissionsmessungen die Fermikante durch einfaches

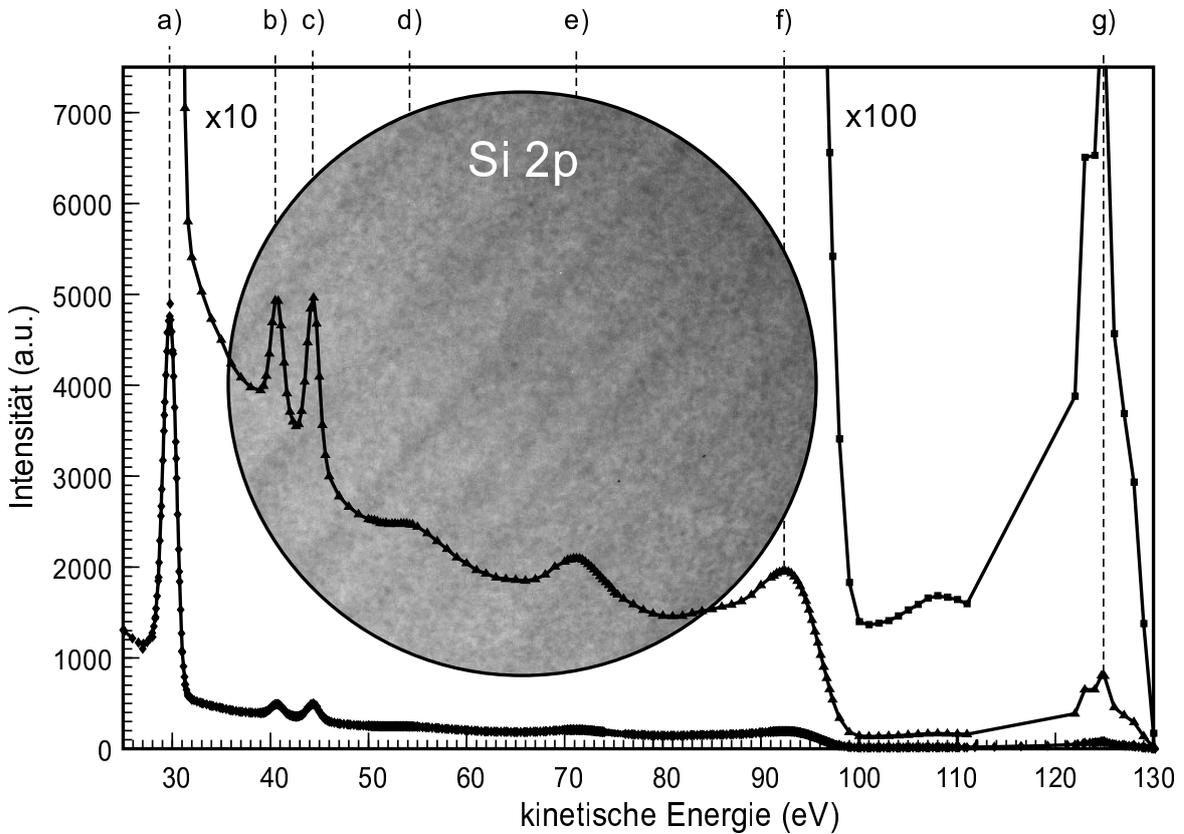


Abbildung 9.2: XPEEM Spektrum der goldbedeckten Fläche, Photonenenergie $E=128.5\text{eV}$. a) Si 2p, b) Au $4f^{5/2}$, c) Au $4f^{7/2}$, d) Au Auger (56 eV), e) Au Auger (69 eV), f) Si Auger (92 eV), g) Valenzband. Der Inset entspricht der Energie des Si 2p Peaks.

Verschieben der Probenposition und Abscannen des metallischen Probenhalters bestimmt. Dies ist aufgrund der Geometrie des SPE-LEEM und der hohen elektrischen Felder nicht möglich und stellt den Grund dar, weshalb alle Spektren in diesem Kapitel zunächst über der kinetischen Energie aufgetragen worden sind.

9.2 Analyse des Endzustandes

Auch nach vollständiger, mit LEEM überwachter Facettierung der Probenoberfläche ist kein chemischer Kontrast auf der Oberfläche vorhanden. Dies wird auch anhand eines Vergleichs der Spektren von Ausgangsfläche (Abb. 9.1) und facettierter Fläche (Abb. 9.2) deutlich. In letzterem sind zusätzlich zu den Silizium Peaks der Ausgangsfläche die beiden Core-Level Peaks Au $4f^{5/2}$ (b) und Au $4f^{7/2}$ (c) des adsorbierten Goldes erkennbar, sowie einige Gold Auger Peaks (d,e). Ein möglicher chemischer Shift des Silizium 2p Peaks kann bei der gegebenen Energieauflösung des SPE-LEEM nicht

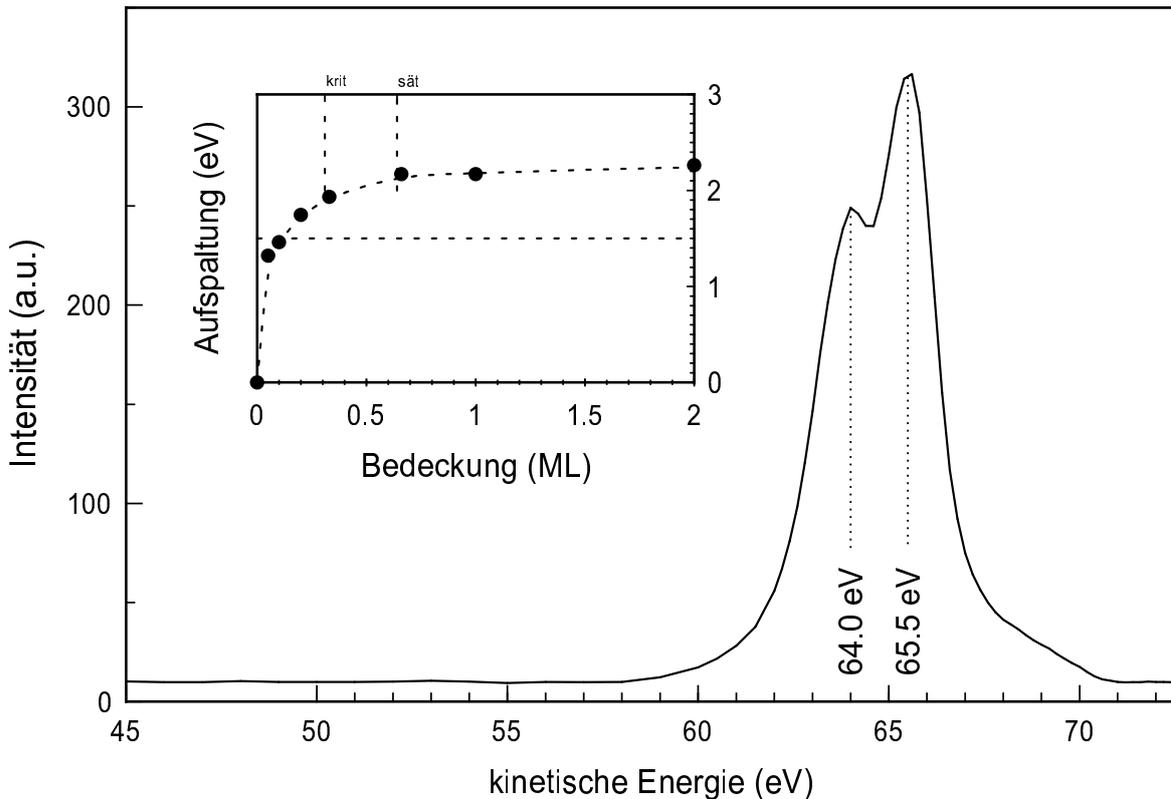


Abbildung 9.3: Valenzbandspektrum der goldbedeckten Fläche. Die Photonenenergie ist 70.8eV. Der Inset zeigt die bedeckungsabhängige Aufspaltung der Valenzbandpeaks nach [105]. Die waagerechte Linie entspricht der gemessenen Aufspaltung, die beiden horizontalen Linien markieren die erwarteten Werte für $\Theta_{\text{sät}}$ und Θ_{krit} an, entsprechend der mit MEIS bestimmten Bedeckung.

beobachtet werden. Dem Inset in Abb. 9.2, der keinerlei Kontrast zeigt, kann entnommen werden, daß die Topographie der facettierten Fläche keinen Einfluß auf die XPEEM Aufnahmen nimmt. Dies ist insbesondere später wichtig, wenn die Intensität des Au $4f^{7/2}$ Peaks mit der Bedeckung identifiziert werden soll.

Wie aus dem Wert der mit MEIS bestimmten Sättigungsbdeckung von $\Theta_{\text{sät}} = 0.64$ ML zu erwarten ist, reicht die Goldmenge auf der Oberfläche nicht aus, um das Silizium abzuschatten und den Silizium 2p Peak zu unterdrücken. Die Struktur des Valenzbandes ist hingegen stark von dem adsorbierten Gold beeinflusst. In den Arbeiten von Hricovini et. al. [105] wurde die bedeckungsabhängige Valenzbandstruktur von Goldfilmen analysiert, die bei Raumtemperatur auf Si(001) deponiert und anschließend getempert wurden. Die verwendeten Photonenenergien lagen hierbei im Bereich zwischen 40eV und 110eV und es wurde beobachtet, daß der Abstand der beiden Au 5d-Valenzbandpeaks nicht von der Photonenenergie, sondern ausschließlich von der Gold-

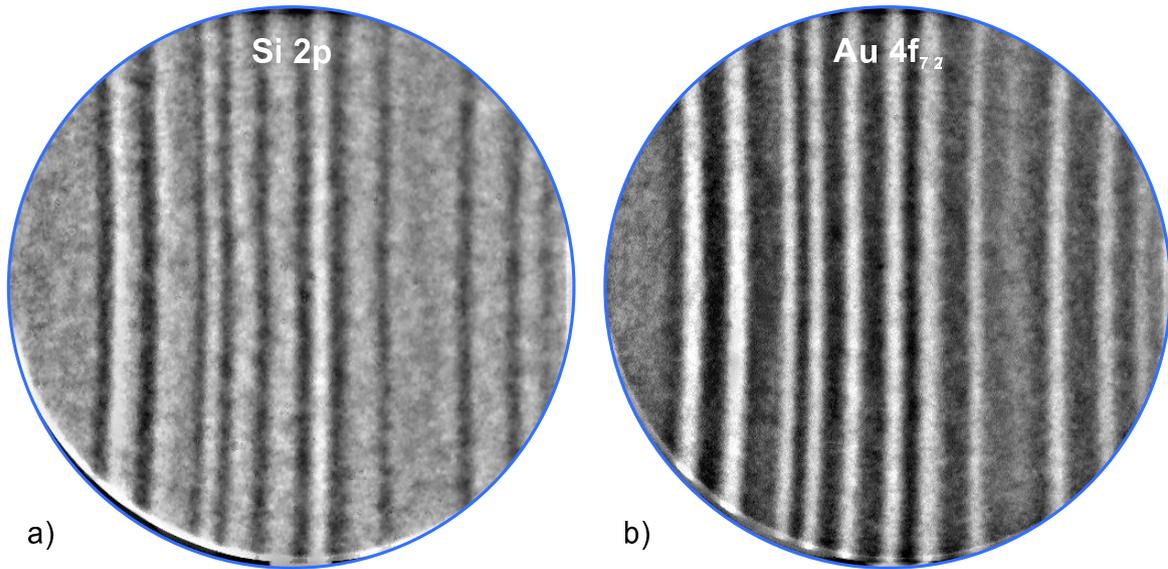


Abbildung 9.4: Chemischer Kontrast mit XPEEM während der Ausbildung des Stufenbandes. a) Abbildung mit dem Si 2p Peak, b) Abbildung mit dem Au $4f_{7/2}$ Peak.

bedeckung abhängt. Für die Sättigungsbedeckung $\Theta_{\text{sät}}$ ist nach diesen Ergebnissen eine Aufspaltung des Valenzbandes von ca. 2.2 eV zu erwarten.

In Abb. 9.3 ist ein mit XPEEM aufgenommenes Valenzbandspektrum gezeigt. Die Photonenenergie beträgt hier 70.8eV, im Gegensatz zu Abb. 9.2. Nach Untergrundabzug und Bestimmung der Peakpositionen ergibt sich die Valenzbandaufspaltung für das gezeigte Spektrum zu 1.5 eV. Vergleich dieses Wertes mit den Literaturdaten führte zu einer Sättigungsbedeckung von $\Theta_{\text{sät}}=0.1\text{ML}$.

Eine Erklärung dieses Widerspruchs zu den MEIS Daten aus Kapitel 4.8.2 wird in der winkelabhängigen Dispersion des goldbedeckten Siliziums vermutet. Während die Daten von Hricovini in Normalemission mit einem Akzeptanzwinkel von 2° gewonnen wurden, ist der Detektor in dem XPEEM Experiment senkrecht zur mittleren Probenebene angebracht und hat einen ungleich höheren Akzeptanzwinkel. Alle goldbedeckten Flächen sind daher um mindestens 4° gegenüber der Detektorposition geneigt, und es wird über einen sehr großen Winkelbereich gemittelt. Abhängig von der Dispersion des Goldfilms kann dies einen massiven Einfluß auf die Aufspaltung der Valenzbandpeaks nehmen und die Diskrepanz von ca. 1/2eV erklären. Ein quantitativer Vergleich des Wertes von Hricovini mit der in dieser Arbeit bestimmten Aufspaltung wäre nach dieser Vorstellung kaum möglich. Veröffentlichungen der (winkel aufgelösten) Valenzbandstruktur von Au Filmen auf Silizium im Submonolagenbereich konnten in der Literatur nicht gefunden werden. Spektren dicker Goldfilme zeigen jedoch eine winkelabhängige Variation der Valenzbandaufspaltung von 2.6eV um weniger als 1/10eV

im interessierenden Winkelbereich [106]. Bereits der Wert für die Aufspaltung weicht deutlich von demjenigen dünner Au Filme ab [105]. Es ist daher unklar, inwiefern die Dispersion eines dünnen Goldfilmes von der in Ref. [106] veröffentlichten abweicht.

Da Ionenstreuung ein extrem genaues Verfahren zur Bedeckungsbestimmung darstellt, sollen an dieser Stelle die Valenzbandaufspaltung und die damit verbundenen Schwierigkeiten nicht weiter diskutiert werden, sondern es sollen im Folgenden die Bedeckungswerte der MEIS Untersuchungen aus Kapitel 4 verwendet werden.

9.3 Adsorption von Gold

9.3.1 LEEM und XPEEM Movies

In den vorigen beiden Abschnitten wurde deutlich, daß ein chemischer Kontrast auf der Ausgangsfläche und der facettierten Fläche nicht zu finden ist. Anders stellt sich die Situation dar, wenn die Deposition während der Ausbildung des Stufenbandes abgebrochen wird. In diesem Stadium der Facettierung sind die Aufnahmen in Abb. 9.4 entstanden. Wird zur Abbildung der Oberfläche die Energie des Si 2p Peaks gewählt, so ergibt sich das linke Bild (a), wird dagegen der Au 4f^{7/2} Peak zur Abbildung verwendet, so entsteht das rechte Bild (b). Der Unterschied zwischen beiden Aufnahmen ist offensichtlich. Während in (a) Silizium hell und Gold dunkel abgebildet wird, ist dies in (b) genau umgekehrt. Hieraus kann sofort auf das Vorhandensein lokal unterschiedlicher Bedeckungen auf der Probe geschlossen werden. An den Stellen, die in Teilbild (b) hell abgebildet werden, ist die Goldbedeckung höher als an den dunklen Stellen und der Silizium 2p Peak wird an diesen Stellen leicht abgeschwächt. Aus diesem Grund, und nicht etwa aufgrund eines chemischen Shifts des Silizium 2p Peaks, sind die Bereiche hoher Bedeckung in Teilbild (a) dunkel.

Um die Stärke des Bedeckungsunterschiedes abzuschätzen, wurden in Abb. 9.5 Spektren des Au 4f Core Levels von unterschiedlichen Bereichen auf der Probe berechnet. Das Spektrum mit den intensiveren Peaks entspricht einem hellen Bereich in Abb. 9.4 (b), das andere Spektrum einem dunklen Bereich. Beide Spektren zeigen jedoch ein Doublet von Goldpeaks. Es kann geschlossen werden, daß zwar die gesamte Oberfläche mit Gold bedeckt ist, aus den Peakintensitäten folgt jedoch, daß die Bedeckung lokal variiert. Da kein chemischer Shift der Au 4f Peaks zu beobachten ist, kann die Intensität dieser Peaks als relatives Maß für die lokale Bedeckung angesehen werden. Entsprechend ist die Goldbedeckung auf den in Abb. 9.4 (b) dunklen Bereichen um ca. 40% geringer als auf den hellen Bereichen.

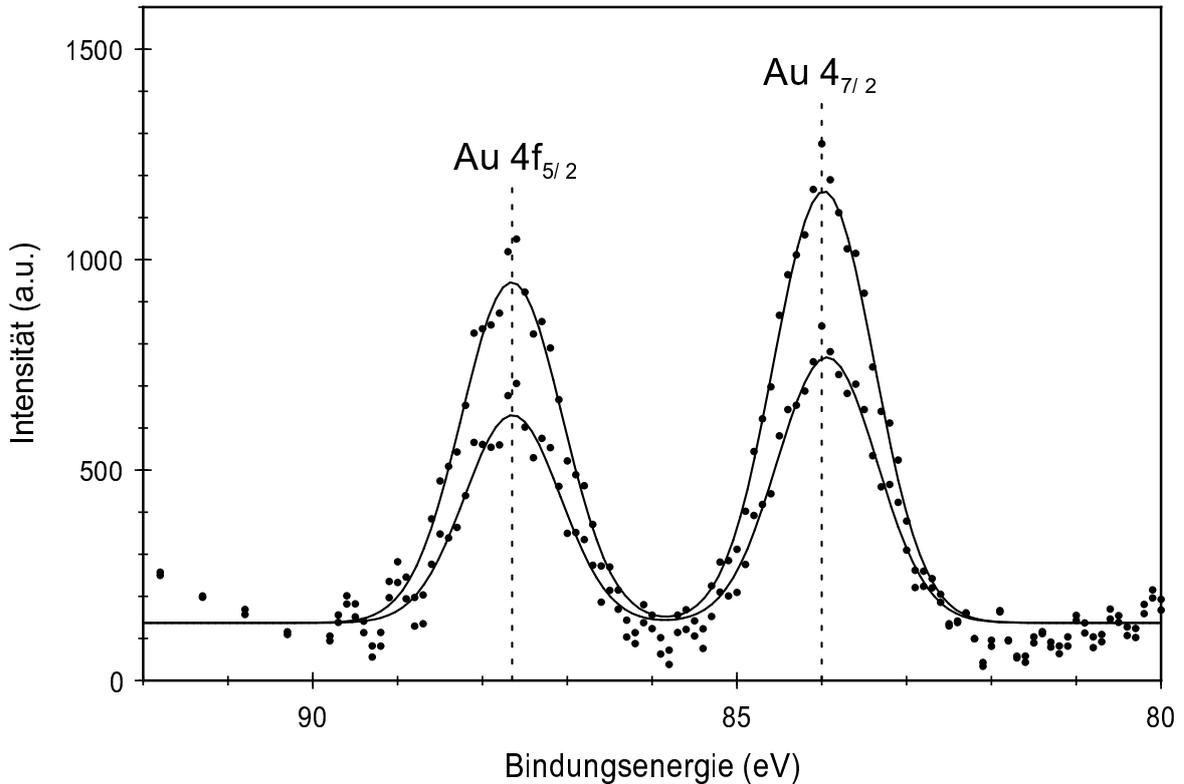
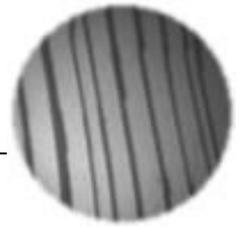


Abbildung 9.5: XPEEM Spektren des Au 4f Peaks an unterschiedlichen Stellen der Probe. Das obere Spektrum repräsentiert einen in Abb. 9.4 (b) hellen Bereich, das untere Spektrum entspricht einem dunklen Bereich. Der Bedeckungsunterschied beträgt in diesem Raumtemperaturspektrum etwa 40%

Dies eröffnet die Möglichkeit, den Au $4f^{7/2}$ Peak für die Abbildung während der Adsorption zu verwenden und die lokale Helligkeit des Bildes mit der relativen Goldbedeckung zu identifizieren. Zusätzlich zu den LEEM Movies ist es dann möglich, XPEEM Movies zu generieren. Da die Zählraten für photoemittierte Elektronen im Vergleich zu LEEM jedoch sehr gering sind ist eine Beobachtung mit Videofrequenz nicht möglich – vielmehr muß jedes Bild eine Minute lang mit der CCD Kamera belichtet werden. Dies erfordert sehr geringe Depositionsraten, um ein Verschmieren der unterschiedlichen physikalischen Phänomene zu vermeiden. In Abb. 9.6 sind ausgewählte Bilder zweier Movies gezeigt. Die obere Serie (a) ist aus LEEM Bildern zusammengesetzt, die untere (b) aus XPEEM Aufnahmen. Wie in Kapitel 8 beschrieben, ist zu Beginn der Deposition kein Topographiekontrast auf der Probe vorhanden (a1). Erst nach Kondensation der ersten Terrassen in (a2) zerfällt die Oberfläche in eine Berg- und Tal Landschaft. Im LEEM werden die Terrassen hell abgebildet, die entstehenden Stufenbündel dunkel. Mit weiterer Kondensation von Terrassen werden die Stufenbündel voll ausgebildet (a6), bevor die Bildung von (119) Facetten auftritt (a7).

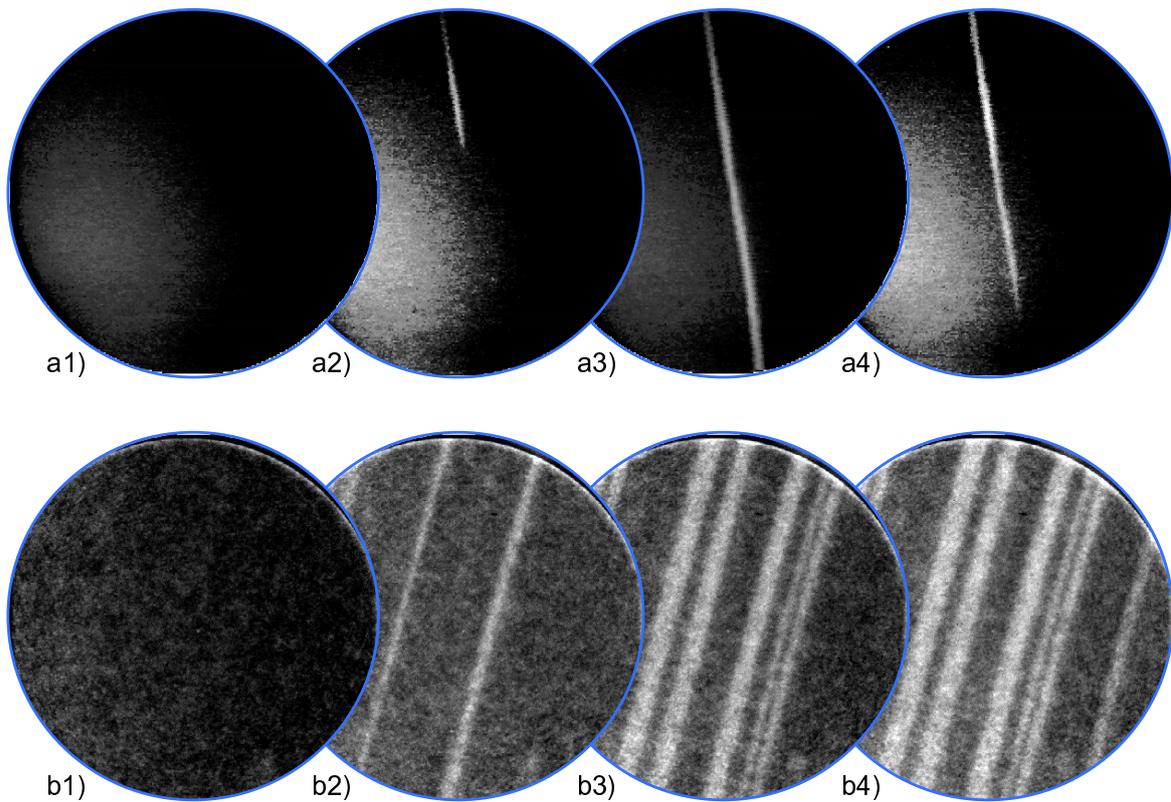


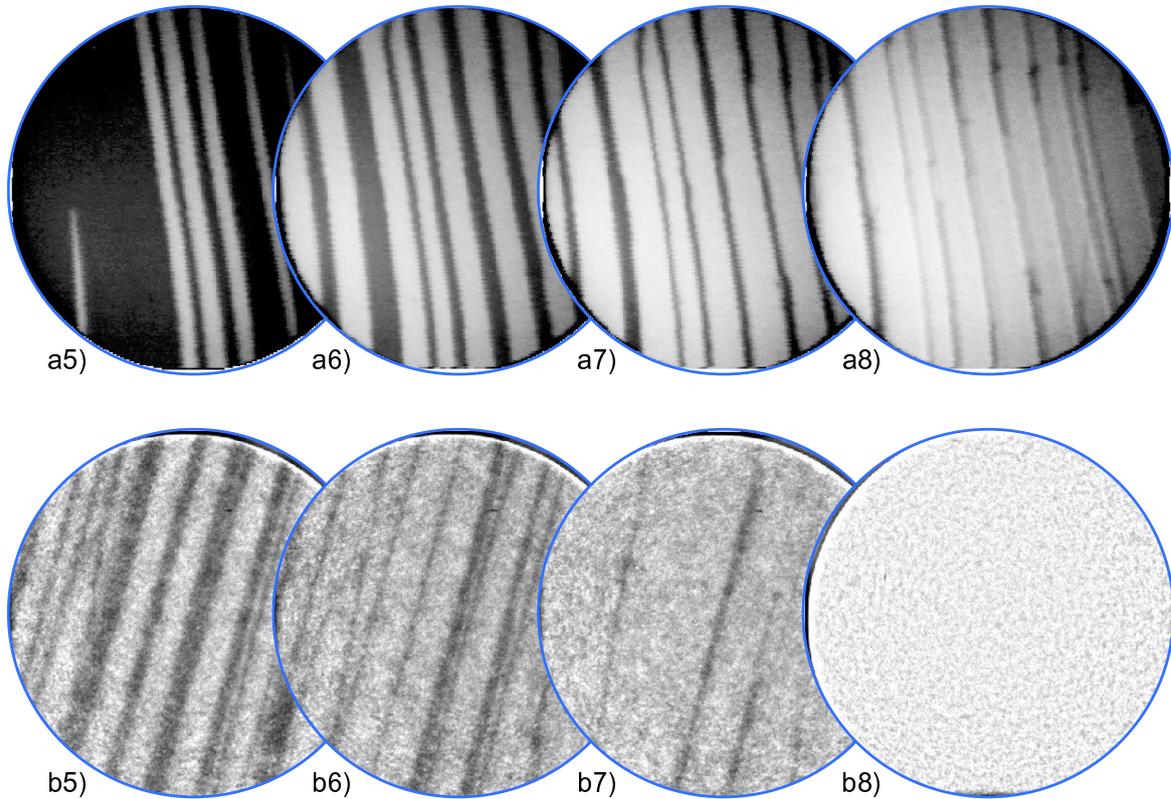
Abbildung 9.6: LEEM und XPEEM Movies. (a1,b1) Ausgangsfläche, (a2,b2)–(a6,b6) Stufenband, (a7,b7) Overshooting, (a8,b8) Endzustand. Nach abgeschlossener Facettierung kann mit XPEEM kein chemischer Kontrast zwischen Terrassen und Facetten gefunden werden.

Im Endstadium (a8) besteht die Fläche ausschließlich aus Terrassen und Facetten.

Auch mit XPEEM ist zu Beginn der Deposition kein Kontrast zu beobachten (b1). Wiederum werden die Terrassenbereiche hell abgebildet (b2). Dies ist jedoch nicht topographisch, sondern ausschließlich durch die Abbildung mit dem Au $4f^{7/2}$ Peak zu begründen — eine Abbildung mit dem Si $2p$ Peak würde die Terrassen, wie in Abb. 9.4 (a), dunkel erscheinen lassen. Bei weiterer Deposition wird das Stufenband ausgebildet (b3–b5), auf dem die Goldbedeckung immer geringer ist, als auf den Terrassenbereichen.

Erst während der Umordnung des Stufenbandes in (119) Facetten steigt die Bedeckung auf diesen Bereichen an (b6, b7). Nach Abschluß der Facettierung (b8) ist der chemische Kontrast zwischen Facetten und Terrassen vollständig verschwunden. Bereits hier ist zu erkennen, daß die beiden Stadien der Facettierung, die Ausbildung des Stufenbandes und Facettierung mit (119) Facetten, mit der lokalen Goldbedeckung in Verbindung zu bringen sind.

Es ist offensichtlich, daß die lokale Bedeckung bei Bildung einer Terrasse schlagartig



ansteigt. Ebenso deutlich ist, daß die Zunahme der Goldbedeckung auf den Stufenbandbereichen zu der Umordnung in (119) Facetten führt. Beide Prozesse sollen im folgenden Abschnitt genauer untersucht werden.

9.3.2 Lokale Analyse der Goldbedeckung

Aus dem vollständigen Bildsatz der Abb. 9.6 kann mit einer geeigneten Software die Goldbedeckung kleiner Bereiche auf der Oberfläche im Nachhinein bestimmt werden. Diese Auswertung soll anhand der Abbildungen 9.7 und 9.8 beschrieben werden.

In Abb. 9.7 ist, repräsentativ für die gesamte Bilderserie, eine XPEEM Aufnahme der Probenoberfläche während der Ausbildung des Stufenbandes gezeigt. Wird ein Schnitt in senkrechter Richtung durch die Mitte des Bildes gelegt, dies für alle Bilder der Serie wiederholt und werden alle berechneten Schnitte zu einem Graustufenbild zusammengesetzt, so ergibt sich der untere Teil von Abb. 9.8. Dieser (x,t) Plot ist von links nach rechts zu lesen und liefert Informationen über die zeitliche Entwicklung aller Terrassen und Facetten entlang des Schnittes in Abb. 9.7.

In Abb. 9.7 sind 3 Bereiche hervorgehoben: der große Kasten (O) mittelt die Intensitäten mehrerer Terrassen und Facettenbereiche und repräsentiert daher die Gesamt-

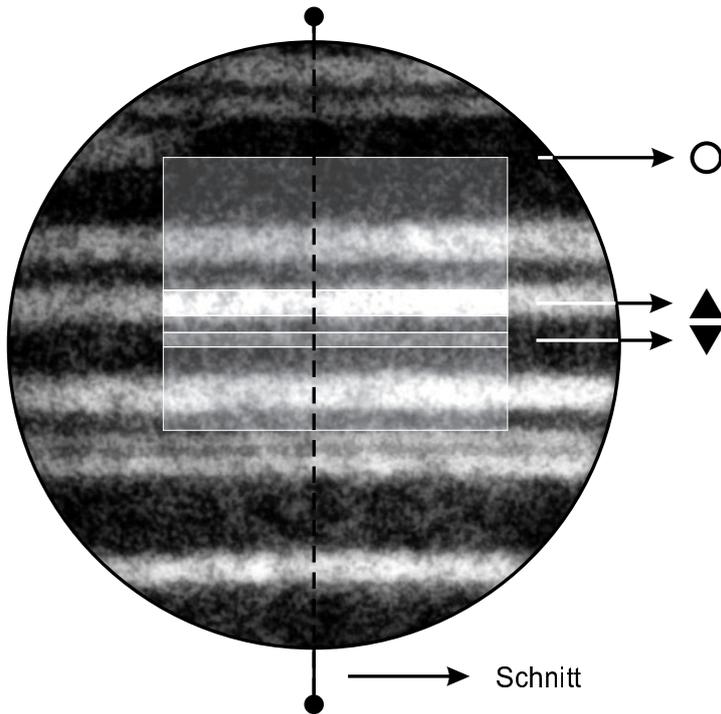


Abbildung 9.7: XPEEM Aufnahme während der Adsorption von Gold. Die markierten Bereiche definieren die Integrationsfenster für den oberen Teil in Abb. 9.8. ○): Gesamtbedeckung, ▲): Terrassenbereich, ▼): Facettenbereich. Zeitaufgelöste Schnitte entlang der gestrichelten Linie sind im unteren Teil von Abb. 9.8 zu einem Graustufenbild zusammengesetzt.

bedeckung auf der Oberfläche. Zusätzlich sind der Ausschnitt einer Terrasse (▲) und der Stufenbereich direkt neben dieser Terrasse (▼) markiert. Die gewählten Symbole für Terrassen und Facetten werden auch in Abb. 9.8 verwendet. So kann die zeitliche Entwicklung der ausgewählten Terrasse und ihrer benachbarten Stufen verfolgt werden.

Bei genauer Betrachtung des Graustufenbildes in Abb. 9.8 fällt auf, daß die Intensität der zusammengesetzten Schnitte periodisch schwankt. Dieser Effekt ist durch minimale Variationen in der Strahlage des Synchrotronstrahls bedingt. Da für XPEEM das Röntgenlicht auf der Probe fokussiert wird, wirken sich kleine Schwankungen in der Strahlage als deutlich sichtbarer Effekt aus. Da die Schwankungen jedoch experimentell begründet sind, können sie wie im folgenden beschrieben korrigiert werden.

In Kapitel 4.7 wurde die Desorptionsordnung des Goldes von der Fläche bestimmt und eine bedeckungsunabhängige Desorptionsrate R_{des} gefunden (Desorption 0. Ordnung). Die mittlere Goldbedeckung auf der Oberfläche muß daher, vorausgesetzt die Adsorptionsrate R_{ads} ist konstant, linear zunehmen. Es ist daher möglich, die Strahlschwankungen für die mittlere Bedeckung (○) so zu korrigieren, daß sie einem linearen Anstieg entsprechen. Die Abweichungen der gemessenen Werte von der Ausgleichsgeraden werden anschließend auf die anderen Meßdaten übertragen. Bei Erreichen der Sättigungbedeckung ändert sich die Desorptionsrate, wie Abb. 4.21 zeigt, die Gerade der mittleren Bedeckung müßte zu diesem Zeitpunkt abknicken. Diese Ungenauigkeit

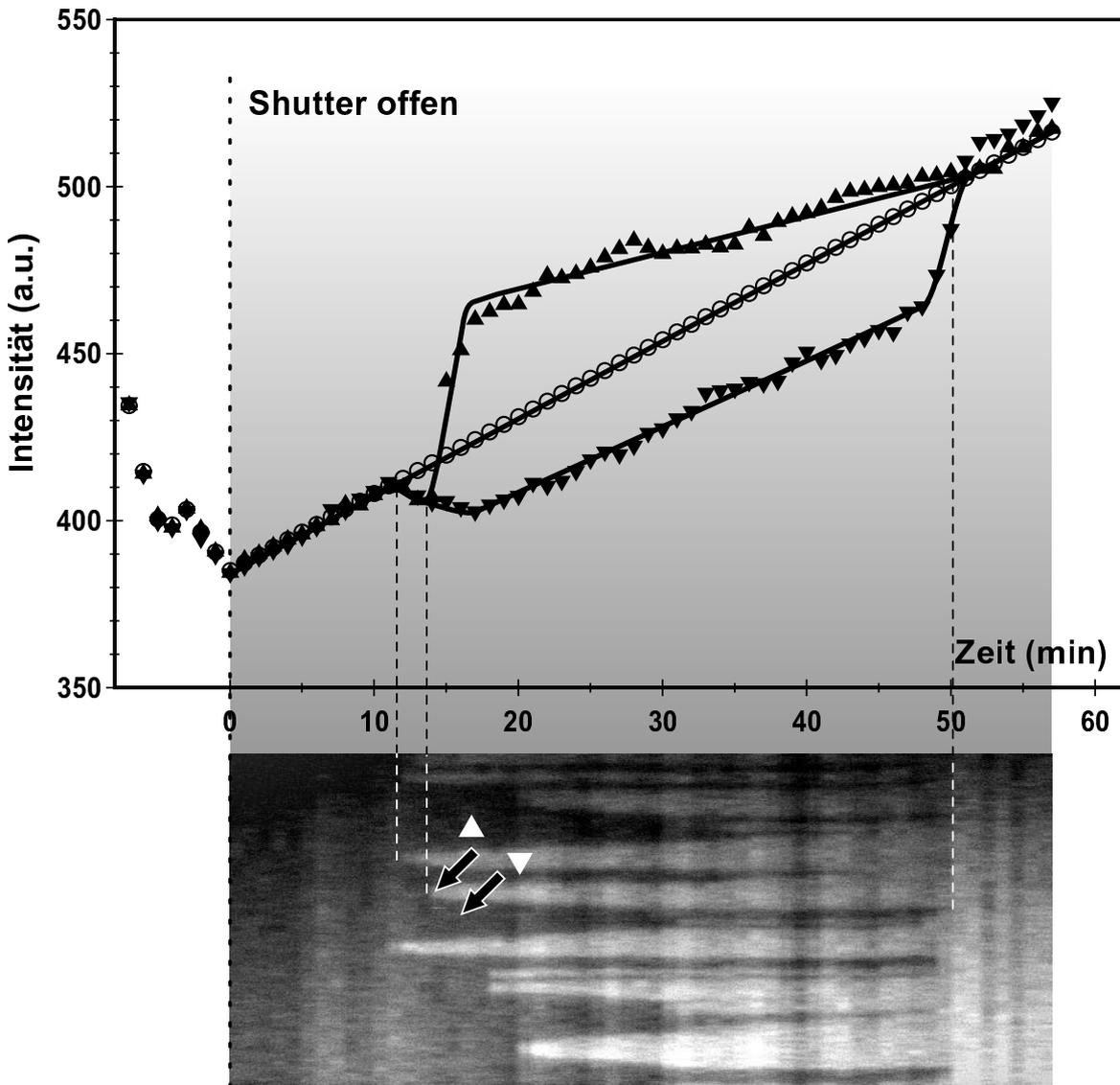
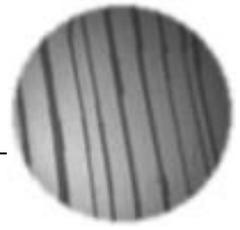


Abbildung 9.8: Intensität des Au $4f^{7/2}$ Peaks über der Zeit während der Deposition nach Korrektur der Strahlschwankungen. Die Goldbedeckung verschiedener Bereiche auf der Probe entwickelt sich während der Facettierung unterschiedlich. Die den Kurven zugeordneten Integrationsfenster sind in Abb. 9.7 definiert.

der Auftragung hat jedoch keinen Einfluß auf die folgende Interpretation.

Die korrigierten Werte der drei in Abb. 9.7 markierten Bereiche sind im oberen Teil von Abb. 9.8 über der Zeit aufgetragen. Die Intensität aller drei Bereiche steigt zunächst völlig identisch an. Erst zum Zeitpunkt der Kondensation der ersten Terrassen findet eine Phasenseparation statt: Die Intensität (und damit die Goldbedeckung) auf den Terrassenbereichen steigt schlagartig an, in der unmittelbaren Nachbarschaft sinkt die Bedeckung. Die Terrassen sammeln nach der Kondensation das Gold aus ihrer Umge-

bung ein. Die entstandene Bedeckungsdifferenz zwischen Terrassen und Stufenbündeln bleibt bei weiterer Deposition zunächst bestehen, auch wenn die Bedeckung auf beiden Bereichen langsam ansteigt. Erst während der Umordnung der Stufenbündel in (119) Facetten steigt die Bedeckung auf den Stufenbündeln schlagartig an. Nach vollendeter Facettierung ist die Bedeckung auf Terrassen und Facetten gleich.



Kapitel 10

Diskussion und Ausblick

Nach der Beschreibung und Diskussion von Teilaspekten der goldinduzierten Facettierung in den vorangegangenen Kapiteln soll in dem vorliegenden Abschnitt eine abschließende Diskussion der goldinduzierten Facettierung stattfinden. In einem zweiten Teil soll ein Modell vorgestellt werden, das die Bildung der geordneten eindimensionalen mesoskopischen Strukturen durch Prozesse auf atomarer Skala erklärt. Einer Abschätzung der freien Oberflächenenergien der goldbedeckten Flächen folgen ein Ausblick sowie erste Resultate bei der Herstellung von Nanodrähten durch selektive Epitaxie.

10.1 Die goldinduzierte Facettierung

Die wichtigsten Stadien des in den vorigen Kapiteln im Detail beschriebenen Facettierungsprozesses sollen anhand von Abb. 10.1 zusammengefaßt werden.

Eine 4° vicinale Si(001) Oberfläche zeigt nach der Probenpräparation eine regelmäßige Folge von Doppelstufen mit einem Abstand von 40\AA (a). XPEEM Messungen zeigen, daß zu Beginn der Adsorption von Gold auf der gesamten Fläche die Goldbedeckung ansteigt. Da mit SPA-LEED in diesem Stadium jedoch keinerlei morphologische Veränderungen gefunden werden, ist davon auszugehen, daß ein Gittergas auf der Oberfläche gebildet wird. Bis zum Erreichen einer kritischen Bedeckung Θ_{krit} steigt die Dichte des Gittergases bei weiterer Deposition. Aus einer Kombination von MEIS und SPA-LEED Daten kann die kritische Bedeckung bestimmt werden. Erwartungsgemäß hängt Θ_{krit} von der Substrattemperatur ab, so beträgt die kritische Bedeckung beispielsweise bei 760°C nur 0.2ML, bei 830°C jedoch bereits 0.3ML.

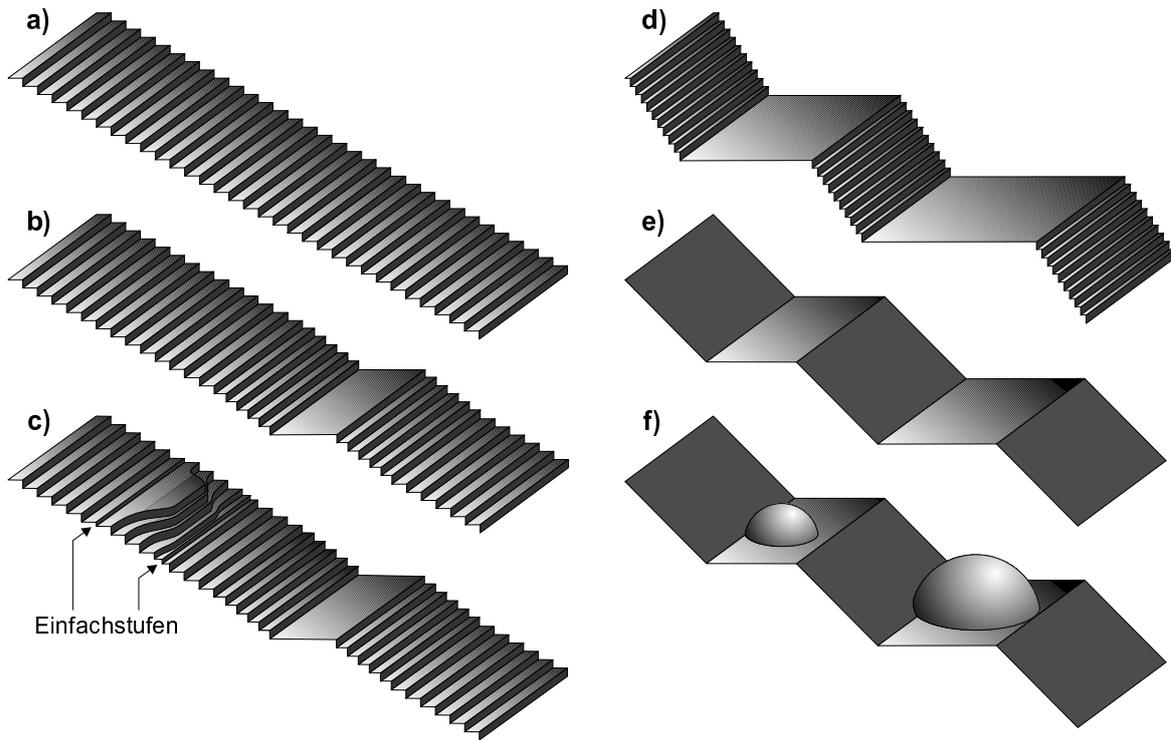


Abbildung 10.1: Verschiedene Stadien des Facettierungsprozesses. a) Ausgangsfläche b) Kondensation der ersten Terrassen, c) Einfachstufenbildung, d) maximaler Neigungswinkel des Stufenbandes, e) Bildung von (119) Facetten, f) Überschüssiges Gold wird in Clustern gesammelt.

Nach Erreichen von Θ_{krit} findet eine Kondensation des Gittergases auf der Oberfläche statt. Dies geschieht durch Bildung einer (5×3.2) rekonstruierten (001) Terrasse (b), die sich sofort anisotrop entlang der Stufenkanten des Substrates ausdehnt (siehe “Dau-menkino”). Da die makroskopische Fehlneigung des Substrates jedoch erhalten bleiben muß, führt die Bildung jeder (001) Terrasse zu einem Stepbunching in ihrer Nachbar-schaft und damit zur Ausbildung sogenannter Stufenbänder.

Die Goldbedeckung auf der Terrasse steigt während der Kondensation schlagartig an. Dies ist nur möglich, wenn aus der Umgebung statistisch auf die Terrasse diffundie-rendes Gold in die (5×3.2) Rekonstruktion eingebunden wird. Die Terrassen dienen als “Senke” für Goldatome, und es kommt zu einer Phasenseparation zwischen einer “goldreichen” (001) Terrasse und ihrer “goldarmen” Umgebung. Die Größe der Ver-armungszone hängt empfindlich von der Diffusionslänge der Goldatome ab. Es ist zu erwarten, daß in der unmittelbaren Umgebung einer gebildeten Terrasse die Au Kon-zentration stärker sinkt, als weiter von der Terrasse entfernt, da die Wahr-scheinlichkeit für Diffusion eines Goldatoms auf die Terrasse von seinem Abstand zur Terrasse abhängt. Mit XPEEM sollte es prinzipiell sogar möglich sein, die Diffusionskonstante

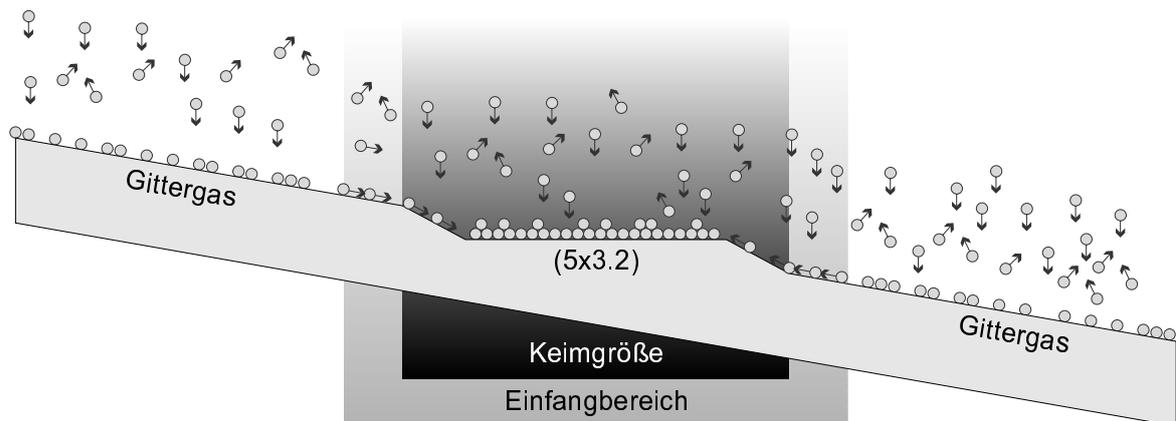
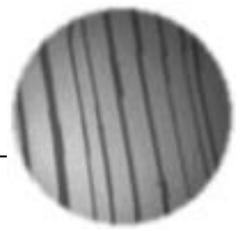


Abbildung 10.2: Zum Simulationsmodell. Ein aus dem Gittergas gebildeter Terrassenkeim der Größe K sammelt Gold aus seiner Umgebung auf und verhindert damit die Nukleation weiterer Terrassen in dem Einfangbereich E .

des Goldes aus der Größe der Verarmungszone zu bestimmen, leider ist hierfür jedoch die Zeitauflösung der vorliegenden Daten aufgrund der niedrigen Strahlintensität nicht ausreichend.

Während der Kondensationsphase findet keine Selektion zwischen ehemals (2×1) und (1×2) rekonstruierten Terrassen statt (c). Auf den in Abschnitt 4.1.1 als ungeradzahlig eingeführten Terrassen ist jedoch aufgrund der Gittersymmetrie die (5×3.2) Rekonstruktion um 90° gedreht. Die bevorzugte Ausdehnungsrichtung dieser (3.2×5) rekonstruierten Terrassen ist aufgrund der Anisotropie in der Überstruktur daher ebenfalls gedreht: die Terrassen schieben die Stufen massiv zusammen (c).

Die Wahrscheinlichkeit zur Ausbildung einer rekonstruierten ungeradzahlig Terrasse hängt von dem Fehlwinkel der Ausgangsfläche ab. Bei geringer Fehlneigung (hier: 1°) besitzt bereits die Ausgangsfläche eine große Anzahl von Einfachstufen. Daher ist die Wahrscheinlichkeit zur Bildung der Rekonstruktion auf einer ungeradzahlig Terrasse hoch, und diese Terrassen sind im Endzustand der Facettierung noch immer vorhanden. Bei Fehlwinkeln oberhalb von 4° treten ungeradzahlig Terrassen hauptsächlich an Defekten der Oberfläche auf. Dort gebildete (3.2×5) rekonstruierte Terrassen werden während des Fortschreitens der Facettierung wieder verdrängt.

Bei einer Neigung des Stufenbandes von ca. 15° (d), stoppt die Ausbreitung der Terrassen. Die abstoßende Stufenwechselwirkung [107] und der zunehmende Flächenanteil energetisch ungünstiger Orientierungen widerspricht einer noch weiteren Ausdehnung der Terrassen. Da die Goldbedeckung immer noch ansteigt, die Terrassen das Gold jedoch nicht aufnehmen können, finden sich bevorzugte Adsorptionsplätze auf den Stufenbändern. Dies führt zu einer Umordnung des Stufenbandes in Facetten einer

wohldefinierten Richtung. Abhängig von der Adsorptionstemperatur ist diese Umordnung mehr oder weniger vollständig. So werden bei niedrigen Substrattemperaturen Facetten der Richtungen (113), (115) und (117) beobachtet, während oberhalb von 850°C ausschließlich (119) Facetten beobachtet werden (e). Die Umordnung geschieht auf Kosten von Flächenanteilen der (001) Terrassen. Das Gold, das vorher auf diesen Terrassen gebunden war, wird in die $c\begin{pmatrix} 4 & 0 \\ 2 & 1 \end{pmatrix}$ Rekonstruktion auf den Facetten eingebaut.

Nach der Umordnung des Stufenbandes in (119) Facetten ist die Facettierung abgeschlossen. Weitere Adsorption führt zur Generation dreidimensionaler Cluster auf der Oberfläche, deren Bildung mit LEEM verfolgt werden konnte.

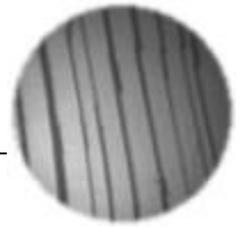
10.2 Kinetische Simulation der Facettierung

Die goldinduzierte Facettierung von vicinalen Si(001) stellt einen ordnenden Prozeß dar, der nicht nur zu einer Facettierung der Ausgangsfläche führt, sondern darüberhinaus ein optisches Gitter mit einer *regelmäßigen* Abfolge von Facetten und Terrassen erzeugt. In der Lichtbeugung spiegelt sich die Regelmäßigkeit des Gitters in der spektralen Verteilung Abb. 5.6 wieder. Die Streulichtintensität ist hier nicht, wie beispielsweise bei Lichtstreuungsexperimenten an reinen Silizium Oberflächen, um den Spekularreflex verteilt und fällt zu größeren Rauigkeiten kontinuierlich ab [108, 109], sondern es existiert ein ausgeprägtes Maximum bei 38° (Abb. 5.6).

Anhand der in den vorigen Kapiteln gewonnenen Erkenntnisse über die Facettierung wurde ein einfaches kinetisches Simulationsmodell entworfen, um das Auftreten des Maximums in der spektralen Lichtbeugungsverteilung zu erklären. Hierzu ist es nicht notwendig, den gesamten Facettierungsprozeß zu simulieren. Anhand Abb. 5.15 wurde erläutert, daß die mesoskopische Struktur der Oberfläche in Richtung senkrecht zu den Stufenkanten bereits während der Kondensation des Gittergases festgelegt wird. Dies wird durch die LEEM Messungen bestätigt. Zur Erklärung der Lichtbeugungsdaten genügt es daher, die Facettierung bis zur vollständigen Ausbildung des Stufenbandes zu simulieren.

10.2.1 Simulationsmodell

Nach Erreichen der kritischen Bedeckung Θ_{krit} kondensieren Goldatome aus dem Gittergas in einer (5×3.2) Rekonstruktion unter gleichzeitiger Bildung von (001) Terrassen. Die Stufenfolge der Oberfläche wird hierbei unterbrochen: durch die Bildung der



(001) Terrasse steigt die Stufendichte in ihrer unmittelbaren Umgebung an. Werden Kondensation und Terrassenbildung zu einem Prozeß zusammengefasst, so kann von Keimbildung gesprochen werden. Es handelt sich hierbei nicht um einen mikroskopischen Keim, dessen Verhalten z.B. mit der Theorie von Venables [110] beschrieben werden könnte, sondern um einen mesoskopischen Keim — Veränderungen der Oberfläche auf der Größenskala der Venables Theorie können mit Lichtbeugung nicht detektiert werden. Das zu simulierende Modell soll daher nicht den Anforderungen einer kinetischen Monte-Carlo Simulation gehorchen, sondern nur qualitativ die Veränderung der Oberfläche und insbesondere das Fourierspektrum reproduzieren.

In Abb. 10.2 ist ein Ausschnitt der fehlgeneigten Ausgangsfläche mit einem Keim gezeigt, der aus dem Gittergas gebildet wurde. Der Keim besitzt eine charakteristische Größe K , die sich aus den Abmessungen von Terrasse und Facette zusammensetzt. Das Größenverhältnis dieser beiden zueinander ist durch Gleichung 4.1 eindeutig festgelegt. XPEEM zeigt, daß der Terrassenbereich des Keims Gold aus der Umgebung aufammelt und damit die Dichte des Gittergases reduziert. Zusätzlich zu der eigentlichen Keimgröße K soll daher ein Einfangbereich E jeden Keims angenommen werden, in dem die Kondensation eines weiteren Keims verboten ist.

Unmittelbar nach der Kondensation breiten sich die Keime entlang der Stufenkanten (senkrecht zur Papierebene in Abb. 10.2) sofort so schnell aus, daß diese Dimension in der Simulation vernachlässigt werden darf, wie LEEM Messungen bestätigen. In horizontaler Richtung breiten sich die Keime jedoch nur langsam, mit der mittleren Geschwindigkeit v , gleichmäßig aus.

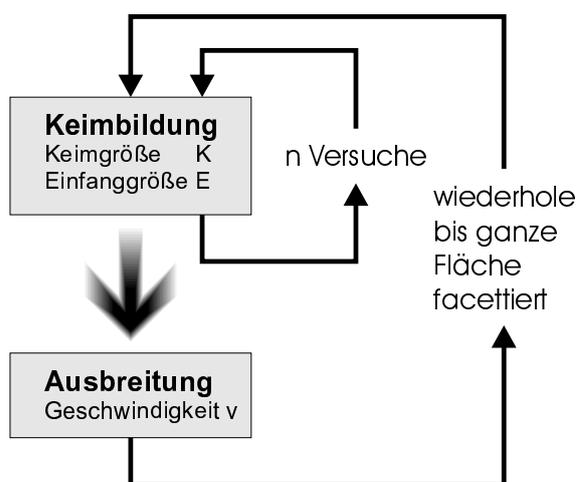


Abbildung 10.3: Algorithmus der Simulation. In jedem Schritt werden neue Keime der Größe K und dem Einfangbereich E gebildet. Der Ort der Keimbildung wird zufällig gewählt; fällt dieser in den Einfangbereich einer bereits vorhandenen Terrasse, so “stirbt” der Keim. Im zweiten Schritt breiten sich alle Terrassen mit der Geschwindigkeit v aus. Die Simulation endet, wenn die gesamte Fläche facettiert ist, d.h. wenn keine 4° fehlgeneigten Bereiche mehr vorhanden sind.

Der Algorithmus für die durchzuführende Simulation ist in Abb. 10.3 skizziert. In jedem Simulationsschritt wird zunächst n -mal versucht, einen neuen Keim zu bilden,

wobei der Ort für die Keimbildung zufällig ausgewählt wird. Ist die Keimbildung an einer gewählten Stelle verboten, da sie im Einfangbereich E eines bereits vorhandenen Keims liegt, so “stirbt” der neue Keim, d.h. der Keimbildungsprozeß entfällt.

Im zweiten Teil der Simulation wachsen alle Keime, sowohl die bereits vorhandenen als auch die neu hinzugekommenen, mit der konstanten Geschwindigkeit v . Die Größe des Einfangbereiches E ist durch die Diffusionslänge des Goldes bestimmt und wird daher konstant gehalten. Stoßen zwei Keime aneinander, so bedeutet dies, daß keine 4° fehlgeneigten Bereiche mehr zwischen ihnen vorhanden sind – die Ausbreitung der Terrassen in dieser Richtung wird gestoppt.

Die Simulation endet nach Facettierung der gesamten Fläche.

In Abb. 10.4 sind zur Verdeutlichung der Parameter Ausschnitte von Schnappschüssen einer Beispielrechnung mit 1024 Stützstellen gezeigt. Ausgangspunkt der Simulation ist die 4° geneigte Fläche, die horizontal dargestellt ist (a). In jedem Simulationsschritt wird 50 mal die Bildung eines Keimes mit einer Größe von 10 Stützstellen und einem Einfangbereich von 10 Stützstellen versucht. Vorhandene Terrassen dehnen sich bei jedem Simulationsschritt um jeweils eine Stützstelle nach rechts und eine Stützstelle nach links aus. Zwischen den gezeigten Teilbildern liegen jeweils 5 Simulationsschritte, so daß in (b) bereits 250 Keimbildungsversuche unternommen wurden. Jeder Keim setzt sich zusammen aus einer Terrasse, die zwischen zwei Stufenbereichen liegt. Die Terrassen sind in Abb. 10.4 hell dargestellt und entgegen der Ausgangsfläche im mathematisch positiven Sinn geneigt, die Stufenbänder werden dagegen dunkel abgebildet und sind im mathematisch negativen Sinn geneigt.

Der weitere Verlauf der Simulation von (b) bis (g) zeigt eine Koexistenz zwischen Terrassen, Stufenbändern und 4° geneigten Bereichen der Ausgangsfläche, wie sie in der Realität auch mit SPA-LEED und LEEM beobachtet werden konnte. In (h) ist der Endzustand nahezu erreicht. Die gesamte Fläche ist in Terrassen und Facetten zerfallen, die augenscheinlich eine gleichmäßige Größenverteilung aufweisen.

Für eine weitere Auswertung dieser Regelmäßigkeit muß das Beugungsbild der Oberfläche berechnet werden. Formal geschieht dies durch eine Fouriertransformation der Phasentransformierten [111]. Bei der Größe der erzeugten Strukturen ist die Beugungspahse jedoch nahe Null (vergleiche 5.1), weshalb die Phasentransformation vernachlässigt werden darf und die gebeugte Intensität dem Betragsquadrat der Fouriertransformierten entspricht. Um Artefakte des verwendeten FFT Algorithmus zu minimieren, muß die Berechnung über möglichst viele Stützstellen geschehen und es muß über viele Simulationsexperimente gemittelt werden.

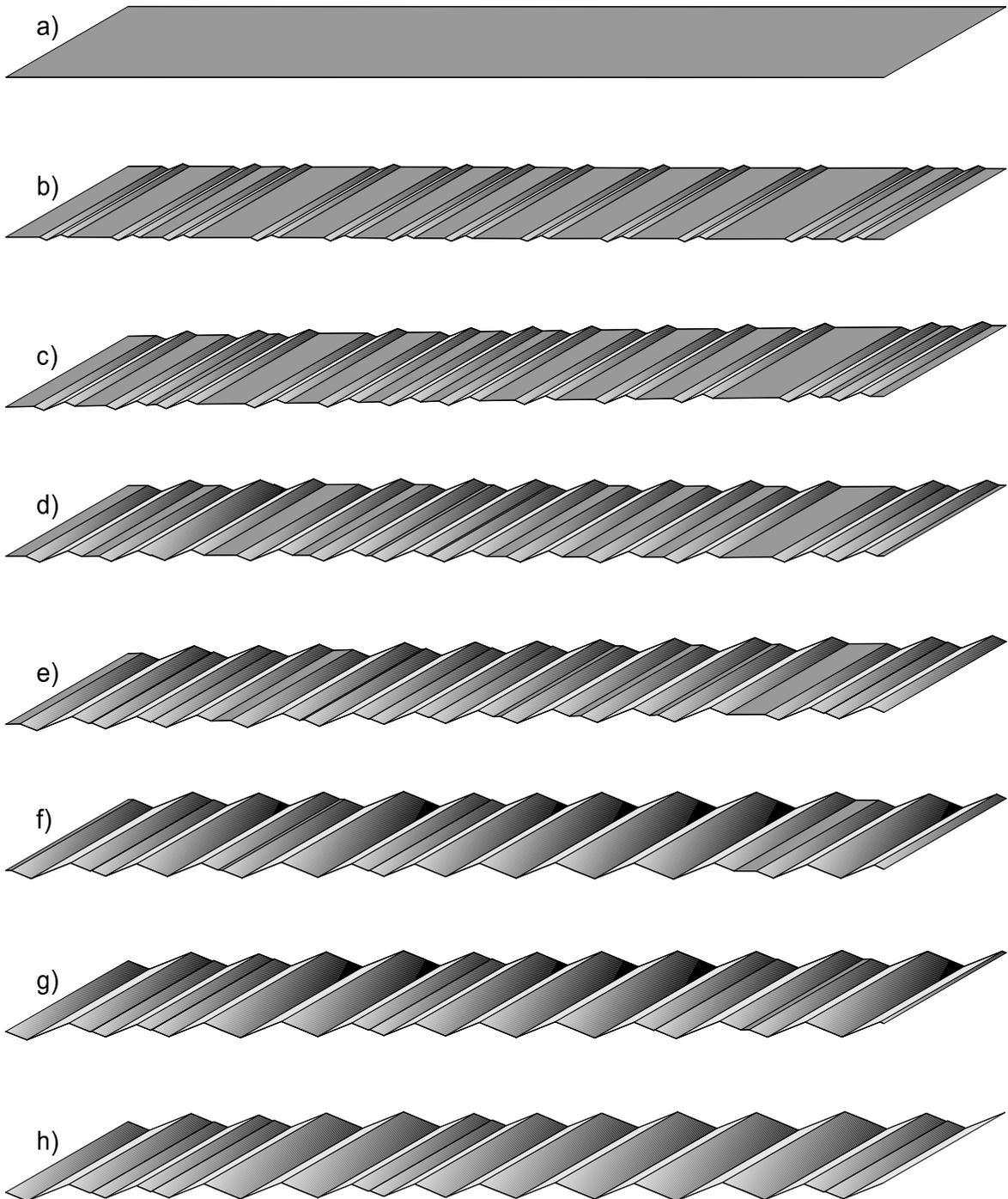
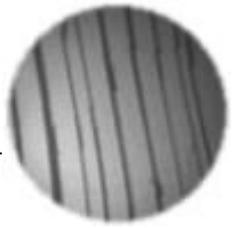


Abbildung 10.4: Kinetische Simulation mit den Parametern: Keimgröße=10, Einfangsgröße=10, Versuche zur Keimbildung=50, Wachstumsgeschwindigkeit=1, die Rechnung erfolgte mit 1024 Stützstellen, es ist nur ein Ausschnitt der Modellfläche gezeigt. (a) 4° geneigte Ausgangsfläche, (b)–(g) zwischen den Teilbildern liegen jeweils 5 Simulationsschritte. (h) Endzustand, es sind keine 4° geneigten Bereiche mehr vorhanden. Die Abbildung ist 5-fach überhöht dargestellt.

10.2.2 Ergebnisse der Simulation

In Abhängigkeit der freien Parameter Keimgröße K , Einfanggröße E , Anzahl der Keimbildungsversuche n und der Wachstumsgeschwindigkeit v wurde eine Vielzahl verschiedener Spektren einer Größe von 4096 Stützstellen berechnet, wobei je drei Parameter festgelegt waren und ein Parameter systematisch variiert wurde. Für jeden Parametersatz wurde zusätzlich über 100 Spektren gemittelt, um Artefakte durch den Fast Fourier Algorithmus zu beseitigen. Die berechneten spektralen Verteilungen jeder Serie können nach Normierung auf die Maximalintensität übersichtlich zu einem Graustufenbild zusammengesetzt werden.

In Abb. 10.5 ist dies in Abhängigkeit der Parameter K , E und n ausgeführt. Die 6 einzelnen Teilbilder zeigen jeweils die Abhängigkeit der spektralen Intensitätsverteilung von n (obere Achse) bei unterschiedlichen Werten für K und E (markierte Positionen auf der unteren Skala). Für kleine Werte von n , d.h. für eine geringe Anzahl von Keimbildungsversuchen, ist das Spektrum von diesem Parameter beherrscht. Bis auf den Ausnahmefall extrem kleiner Keime (a) sättigt die Position des Maximums jedoch ab $n \sim 50$. Die Maximumsposition wird dann in (b) bis (f) durch die Parameter Keimgröße und Einfanggröße bestimmt. Der Verlauf entspricht in etwa der Potenzfunktion in Abb. 10.5. Beachtenswert ist die Abhängigkeit von *beiden* Parametern, K und E . Wird nur die Einfanggröße variiert, so ergibt sich eine lineare Abhängigkeit für die Maximumsposition, eine Veränderung der Keimgröße hat für große Einfangwerte keinen Einfluß auf die Position.

Bisher bei der Diskussion vernachlässigt wurde die Abhängigkeit von der Ausbreitungsgeschwindigkeit der Terrassen. Die Abhängigkeit von diesem Parameter ist äquivalent zu der Zahl der Keimbildungsversuche: Für geringe Geschwindigkeiten ist der Verlauf des Spektrums bei geringer Intensität durch die Geschwindigkeit bestimmt, für größere Werte tritt jedoch eine Sättigung ein.

In dem realen Experiment sind die vier genannten Parameter mit der Temperatur verknüpft. Eine getrennte Untersuchung der Abhängigkeiten ist nicht möglich. Die Simulation reproduziert jedoch das Experiment: Für hohe Temperaturen, d.h. bei großen Einfangbereichen, Geschwindigkeiten und wenigen Keimen wird ein Spektrum erzeugt, dessen Maximum nahe am Spekularreflex liegt, bei Temperaturerniedrigung wandert das Maximum nach außen. Die beherrschenden Parameter stellen die Anzahl der gebildeten Keime sowie die Größe des Einfangbereiches dar.

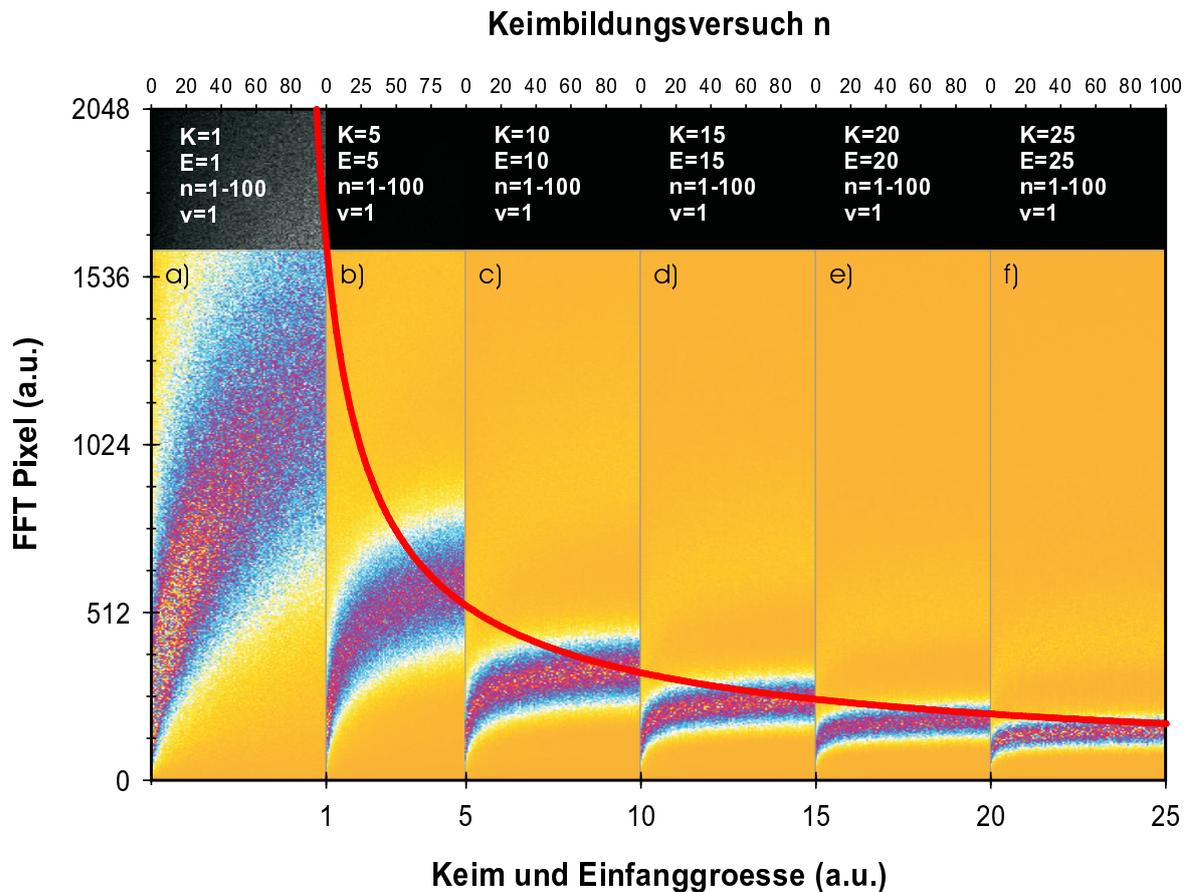
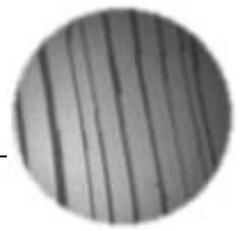


Abbildung 10.5: Simulierte Spektren simulierter Oberflächen nach Normierung auf Maximalintensität in Abhängigkeit der angegebenen Parameter. Um das erste Maximum hervorzuheben, wurde der bei 0-FFT Pixeln liegende (00) Reflex ausgeblendet

10.2.3 Vergleich mit der Mikroskopsimulation

In den vorigen beiden Abschnitten wurde gezeigt, wie durch ein einfaches Simulationsmodell spektrale Verteilungen erzeugt werden können, die ein ausgeprägtes Maximum erster Ordnung aufweisen. In diesem Abschnitt soll untersucht werden, inwiefern mit dem kinetischen Simulationsmodell generierte Flächen in der Lage sind, farbige Mikroskopbilder zu erzeugen. In Kapitel 5.1.1 wurde versucht, die Färbung der Mikroskopbilder realer Proben zu erklären, indem eine numerischen Simulation für unterschiedliche Mikroskopaperturen durchgeführt wurde. Die Testobjekte stellten zunächst ein ideales Gitter mit einer festen Periodizität $\bar{\Gamma}$ und anschließend statistisch gestörte Gitter einer Verteilung $\Gamma_I = \bar{\Gamma} \pm \alpha$ dar.

In Abb. 10.6 (b) wurde die Mikroskopsimulation auf eine Fläche (a) angewendet, die mit der kinetischen Simulation erzeugt wurde, wobei die Terrassen als weiß und die Facetten als schwarz umgesetzt wurden. Die spektrale Verteilungsfunktion dieser Ober-

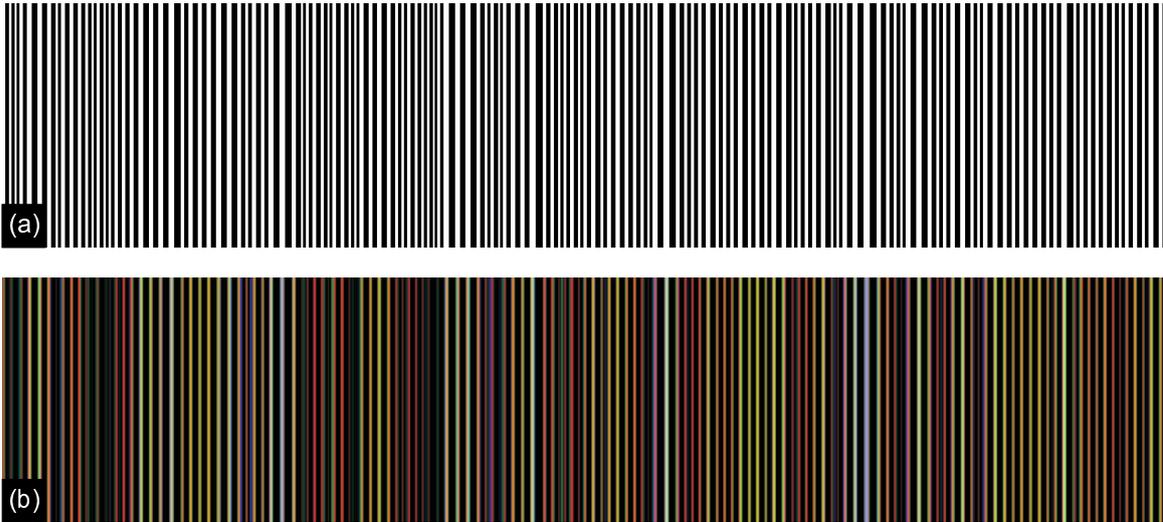


Abbildung 10.6: (a) mit dem kinetischen Modell simulierte Fläche (b) unter dem simulierten Mikroskop aus Kapitel 5.1.1. Die Parameter zur Erzeugung der Oberfläche sind $K = 5$, $E = 5$, $n = 50$, $v = 1$

fläche entspricht einem vertikalen Schnitt in Abb. 10.5 bei den angegebenen Parametern $K = 5$, $E = 5$, $n = 50$ und $v = 1$.

Die Färbung des Mikroskopbildes ist offensichtlich, und viel stärker als bei den statistischen Gittern in Kapitel 5.1.1.

Das einfache kinetische Simulationsmodell ist in der Lage, die Entstehung von Superterrassen in regelmäßigem Abstand auf einen mikroskopischen Prozeß zurückzuführen. Das Aufsammeln des Goldes aus dem Gittergas durch bereits kondensierte Terrassen und die dadurch sinkende Kondensationswahrscheinlichkeit in der Nähe der Terrassen führt zu einer langreichweitigen Ordnung der Oberfläche, die sich, sowohl im Experiment als auch in der Simulation, durch ein Maximum in der spektralen Verteilung der Oberfläche ausdrückt.

10.3 Energetische Abschätzung

In Kapitel 4 wurde die Adsorption sowohl auf der 4° fehlgeneigten Fläche als auch auf einer (119) Fläche untersucht. Die Resultate sind schematisch in Abb. 10.7 zusammengefaßt.

Eine 4° geneigte Si(001) Oberfläche der Größe n besitzt die Oberflächenenergie $n \cdot \gamma^v$. Durch Adsorption von Au findet eine Facettierung in zwei Stufen statt. Zunächst werden goldbedeckte Terrassen der Größe $n \cdot T_{15^\circ}$ und der spezifischen Oberflächenenergie

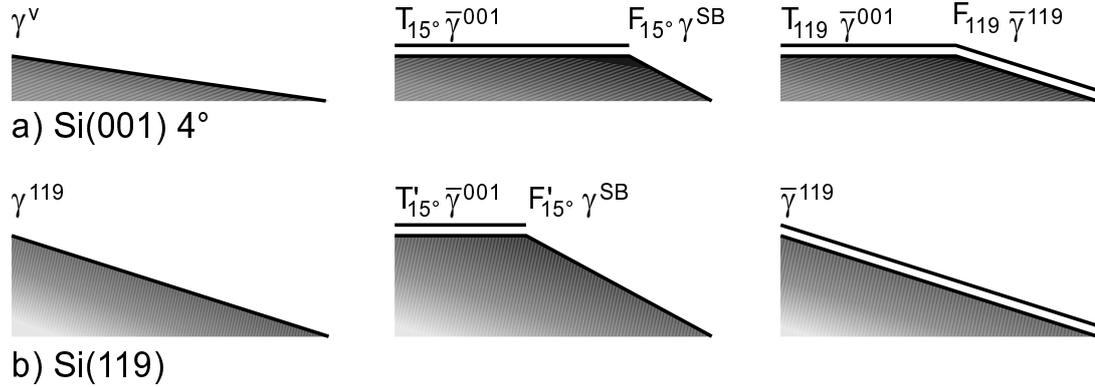


Abbildung 10.7: Zur Nomenklatur der Facettierung von Silizium Oberflächen a) Si(001) 4° vicinal, b) Si(119).

$\bar{\gamma}^{001}$ gebildet. Die Fehlneigung wird in 15° geneigten Stufenbändern der Größe $n \cdot F_{15^\circ}$ und der Energie γ^{SB} kompensiert. Die Nomenklatur ist so gewählt, daß Größen mit einem Querstrich ($\bar{\gamma}^{001}$) Oberflächenenergien goldbedeckter Bereiche angeben, Größen ohne Querstrich (γ^v) Energien goldfreier Bereiche bezeichnen. Die Buchstaben T und F bezeichnen die Terrassen- und Facettengröße in jedem Stadium der Facettierung. Um eine Unterscheidung der verschiedenen Stadien zu ermöglichen, ist die Neigung der Stufenbereiche als Index vermerkt. Der Einfachheit halber ist im Folgenden $n = 1$ gesetzt.

Der energetische Prozeß der Facettierung einer 4° vicinalen Si(001) Oberfläche wird in der eingeführten Nomenklatur beschrieben durch die Ungleichungen

$$\text{Stufenband: } \gamma^v > T_{15^\circ} \cdot \bar{\gamma}^{001} + F_{15^\circ} \cdot \gamma^{SB} \quad (10.1)$$

$$(119) \text{ Facetten: } T_{15^\circ} \cdot \bar{\gamma}^{001} + F_{15^\circ} \cdot \gamma^{SB} > T_{119} \cdot \bar{\gamma}^{001} + F_{119} \cdot \bar{\gamma}^{119} \quad (10.2)$$

Die Si(119) Oberfläche zeigt hingegen erst ein Aufrauen und die Ausbildung eines Stufenbandes, zum Ende der Adsorption wurde in Kapitel 4.6 allerdings wieder eine ebene, wenn auch rekonstruierte (119) Oberfläche gefunden. In Begriffen der Oberflächenenergien bedeutet dies

$$\text{Stufenband: } \gamma^{119} > T'_{15^\circ} \cdot \bar{\gamma}^{001} + F'_{15^\circ} \cdot \gamma^{SB} \quad (10.3)$$

$$\text{Au-bedeckte (119): } T'_{15^\circ} \cdot \bar{\gamma}^{001} + F'_{15^\circ} \cdot \gamma^{SB} > \bar{\gamma}^{119} \quad \text{und damit} \quad (10.4)$$

$$\gamma^{119} > \bar{\gamma}^{119} \quad \text{wie zu erwarten} \quad (10.5)$$

Die Größe von Terrassen und Facetten T'_{15° und F'_{15° unterscheidet sich von den korrespondierenden Größen der Si(001) 4° Oberfläche T_{15° und F_{15° , weshalb sie mit einem Strich versehen sind.

Umformen der Ungleichungen nach $\bar{\gamma}^{001}$ und $\bar{\gamma}^{119}$ liefert die vier Ausdrücke

$$(10.1) \rightarrow \bar{\gamma}^{001} < \frac{1}{T_{15^\circ}} (\gamma^v - F_{15^\circ} \cdot \gamma^{SB}) \quad (10.6)$$

$$(10.2) \rightarrow \bar{\gamma}^{119} < \frac{1}{F_{119}} (T_{15^\circ} \cdot \bar{\gamma}^{001} + F_{15^\circ} \cdot \gamma^{SB} - T_{119} \cdot \bar{\gamma}^{001}) \quad (10.7)$$

$$(10.3) \rightarrow \bar{\gamma}^{001} < \frac{1}{T'_{15^\circ}} (\gamma^{119} - F'_{15^\circ} \cdot \gamma^{SB}) \quad (10.8)$$

$$(10.4) \rightarrow \bar{\gamma}^{119} < T'_{15^\circ} \cdot \bar{\gamma}^{001} + F'_{15^\circ} \cdot \gamma^{SB} \quad (10.9)$$

Leider können aus den Gleichungen keine unteren Schranken für $\bar{\gamma}^{001}$ und $\bar{\gamma}^{119}$ extrahiert werden.

Für T und F können für beliebige Neigungen des Stufenbandes und beliebige Fehlneigungen aus Abb. 5.2 anhand geometrischer Überlegungen die Gleichungen

$$F(\Delta, \varphi) = \frac{\sin(\Delta)}{\sin(\varphi)} \quad \text{und} \quad T(\Delta, \varphi) = \cos(\Delta) - \frac{\sin(\Delta)}{\tan(\varphi)} \quad (10.10)$$

abgeleitet werden. Die zur Abschätzung von $\bar{\gamma}^{001}$ und $\bar{\gamma}^{119}$ fehlenden Energien reiner Si Oberflächen γ^{SB} und γ^v werden aus einer Arbeit von Bermond et. al. [85, 112] übernommen. Dort haben die Autoren eine Vielzahl lithographisch erzeugter Silizium Kügelchen geschmolzen und anschließend mit dem Elektronenmikroskop untersucht. Aus den Flächenanteilen der beobachteten Facetten wurden anschließend die Oberflächenenergien der unterschiedlichen Orientierungen relativ zu γ^{111} bestimmt. Mit einem Geodreieck können aus der zitierten Arbeit die Werte

$$\gamma^v \sim 0.973 \cdot \gamma^{111}, \quad \gamma^{119} \sim 0.976 \cdot \gamma^{111}, \quad \text{und} \quad \gamma^{SB} \sim 0.983 \cdot \gamma^{111} \quad (10.11)$$

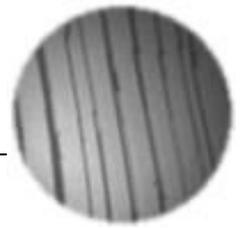
bestimmt werden. Es ist zu betonen, daß der Wert für γ^{SB} einem goldfreien Stufenband entspricht. Anhand der XPEEM Daten wird zwar deutlich, daß die Stufenbänder eine (geringe) Au Bedeckung aufweisen, dieses Gold ist jedoch als Gittergas gebunden, und nicht rekonstruiert. Es ist daher zu erwarten, daß der korrekte Wert für $\bar{\gamma}^{SB}$ nur wenig von γ^{SB} abweicht.

Einsetzen aller Werte und Bestimmung der Minima liefert

$$\bar{\gamma}^{001} < 0.946 \cdot \gamma^{111} \quad \text{und} \quad (10.12)$$

$$\bar{\gamma}^{119} < 0.976 \cdot \gamma^{111} \quad (10.13)$$

Der Wert für $\bar{\gamma}^{001}$ ist erstaunlich niedrig, bestätigt jedoch die Ausbildung der (5×3.2) Rekonstruktion als treibende Kraft der Facettierung. Die obere Schranke für $\bar{\gamma}^{119}$ entspricht der Energie der reinen (119) Oberfläche. Da der korrekte Energiewert im



Bereich des Stufenbandes $\bar{\gamma}^{SB}$ etwas kleiner ist als der verwendete Wert einer reinen, um 15° geneigten Fläche γ^{SB} , ist zu erwarten, daß der für $\bar{\gamma}^{001}$ angegebene Wert etwas zu klein, der für γ^{119} angegebene Wert hingegen etwas zu groß ist. In jedem Fall gilt jedoch

$$\bar{\gamma}^{001} < \bar{\gamma}^{119} \quad (10.14)$$

wie zu erwarten war. Schließlich stellt die Rekonstruktion auf den Terrassen die treibende Kraft für die Bildung der Superterrassen dar und nicht die Rekonstruktion auf den Facetten, wie im Fall der Au induzierten Facettierung von Si(111) [113].

10.4 Erzeugung von Nanodrähten

In diesem Abschnitt soll der Weg von superterrassierten Proben zu realen Drähten beschrieben werden, an denen die Leitfähigkeit experimentell bestimmt werden kann.

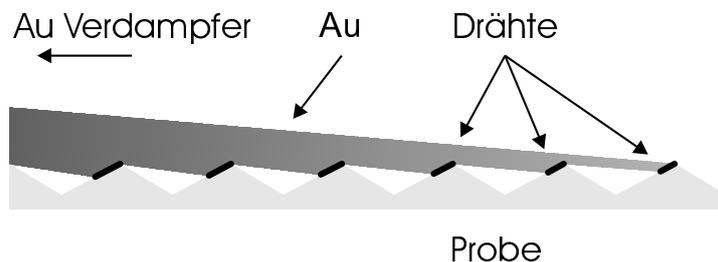


Abbildung 10.8: Präparation von Drähten durch selektive Epitaxie. Bei Bedampfung der Probe mit Gold unter streifendem Einfall wirft die dreidimensionale Facettenstruktur eine Schatten.

Nach der Facettierung werden die Proben aus dem Vakuum ausgebaut, und in einem Pumpstand bei Raumtemperatur unter streifendem Einfall mit ca. 50nm Gold bedampft. Dieser Vorgang ist in Abb. 10.8 skizziert. Es wird deutlich, daß der Einfallswinkel des Goldes auf die Probe bei diesem Prozeß ein extrem kritischer Parameter ist. Um Winkeldivergenzen zu minimieren ist der Verdampfer möglichst weit entfernt (15cm) von der Probe angebracht. Da bezüglich der makroskopischen Orientierung der Probe von 4.2° sowohl Terrassen als auch Facetten um jeweils ca. 4° gegen die Rückseite der Probe geneigt sind, kann der Einfallswinkel für Au zwischen 0° (keine Erzeugung von Drähten) und 4.2° (die gesamten Terrassen werden bedampft) variiert werden. Im vorliegenden Fall wurde ein Winkel von 3° angestrebt.

Ob die Erzeugung von Drähten erfolgreich war, kann nach der Präparation mit dem Rasterelektronenmikroskop kontrolliert werden. In Abb. 10.9 sind hierzu zwei Möglichkeiten skizziert, eine Probe im SEM einzubauen. Die Elektronenkanone ist jeweils hinter der Papierebene angebracht, der Betrachter ist am Ort des Detektors. Die geometrische

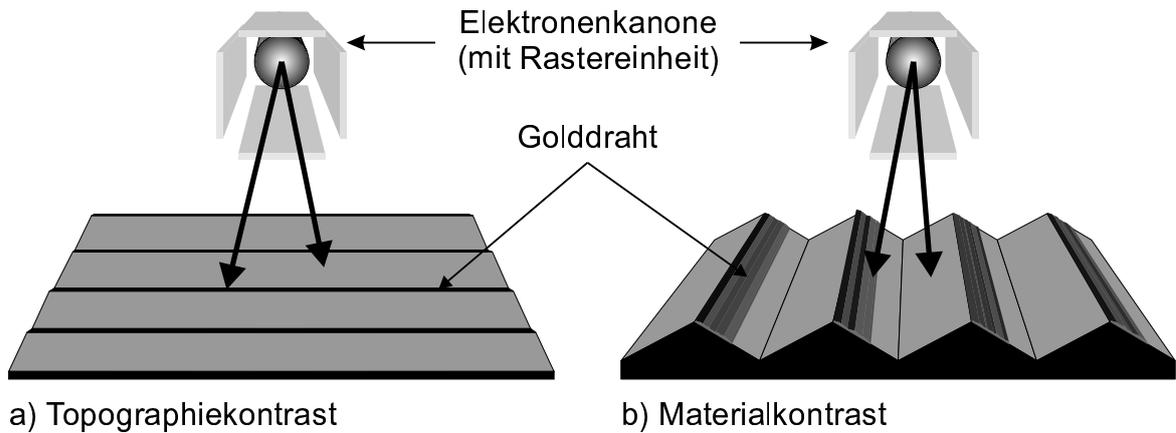


Abbildung 10.9: Kontrastmechanismen im SEM.

Konstruktion des SEM Bildes entspricht einer optischen Abbildung mit Beleuchtung von der Detektorseite [114]. Kontrast entsteht einerseits durch unterschiedliche Austrittsarbeiten (Materialkontrast), andererseits auch durch unterschiedliche Neigungen verschiedener Flächenanteile relativ zu der Kanone (Topographiekontrast). Bei den superfacettierten Proben ist es möglich, durch geschickte Wahl des experimentellen Aufbaus einen der beiden Kontrastmechanismen zu optimieren. Ein Einbau der Probe wie in Teilbild (a) gezeigt, erzeugt einen solch großen Topographiekontrast, daß Materialkontrast vollkommen vernachlässigt werden kann. Ein Beispielbild für diese Anordnung findet sich beispielsweise in Abb. 4.11. Ein Beispiel dafür, wie groß der Materialkontrast zwischen Silizium und Gold ist, liefert (bei gleicher Geometrie) Abb. 1.10.

Wird die Probe dagegen auf dem Probenhalter um 90° gedreht (b), so besitzen Terrassen und Facetten einen identischen Neigungswinkel relativ zum Detektor, und der Materialkontrast überwiegt. Erwartungsgemäß kann in dieser Geometrie auf superfacettierten Proben vor der Drahterzeugung kein Kontrast gefunden werden. Nach der Drahtdeposition kann jedoch ein Bild wie in Abb. 10.10 beobachtet werden. Die selektive Bedampfung mit Gold führt zu einem Materialkontrast, der die goldbedeckten Terrassen hell und die Facetten dunkel abbildet.

Auf der linken Seite des SEM Bildes ist ein dreidimensionaler Cluster auf der Oberfläche zu erkennen. Daß dieser schon während der UHV Präparation entstanden und nicht erst nachträglich auf die Oberfläche gebracht wurde, zeigt sein Einfluß auf die ihn umgebenden Stufen (vergl. Abb. 4.11). Während der schrägen Deposition für die Drahtbildung, die von links erfolgte, werfen die Cluster einen Schatten. Erwartungsgemäß ist in dem Kernschattenbereich kein Kontrast zu erkennen. Dies beweist den Materialkontrast an den anderen Stellen des Bildes und zeigt, daß die Drahtbildung

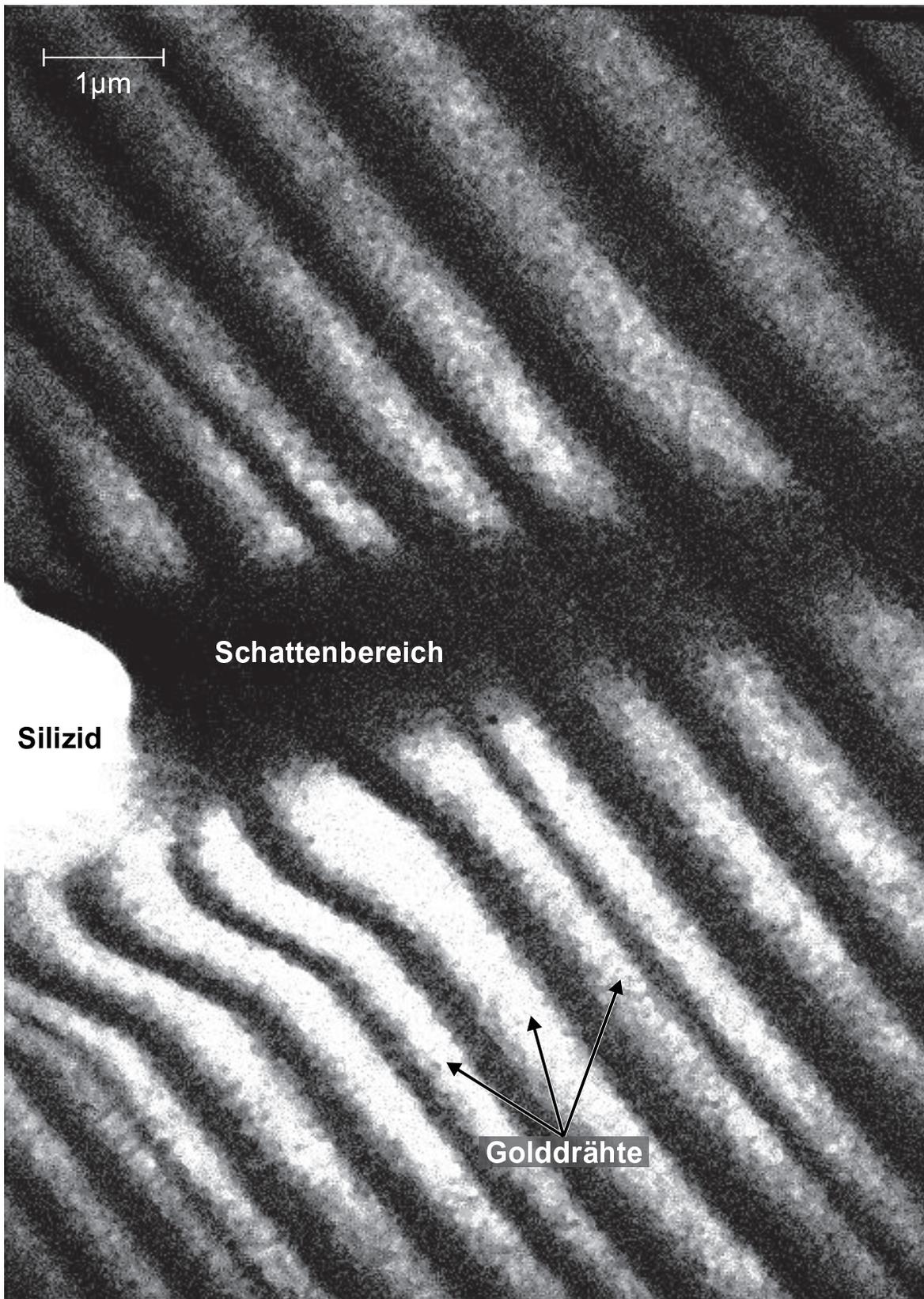
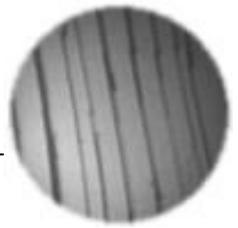


Abbildung 10.10: Materialkontrast der deponierten Nanodrähte im SEM.

erfolgreich war.

Wie empfindlich jedoch diese Drähte sind, wird anhand von Abb. 10.11 deutlich. Dort wurde die Probenoberfläche nach der Erzeugung von Drähten durch schräge Deposition versehentlich (leicht) mit einer Pinzette berührt. Deutlich ist der dunkle Streifen zu erkennen, in dem das Gold von der Pinzettenspitze eingesammelt wurde und zu dem "Goldhaufen" rechts im Bild zusammengeschieben wurde. Vermutlich liegt in dieser extremen Empfindlichkeit der Drähte die Begründung, weshalb nach Kontaktieren der Proben (Kapitel 1.5), Anbringen von Kontaktdrähten (Bonden) und Einkühlen auf 1.5K keine Leitfähigkeit beobachtet wurde. Es ist gut vorstellbar, daß bei dem rabiatischen Bondprozess die Drähte an den Kontaktpads einfach abreißen. Ist dies der Fall, so kann das Problem durch den Wechsel des Drahtmaterials zu beispielsweise Aluminium gelöst werden, da Aluminium deutlich besser auf Silizium haftet als Gold

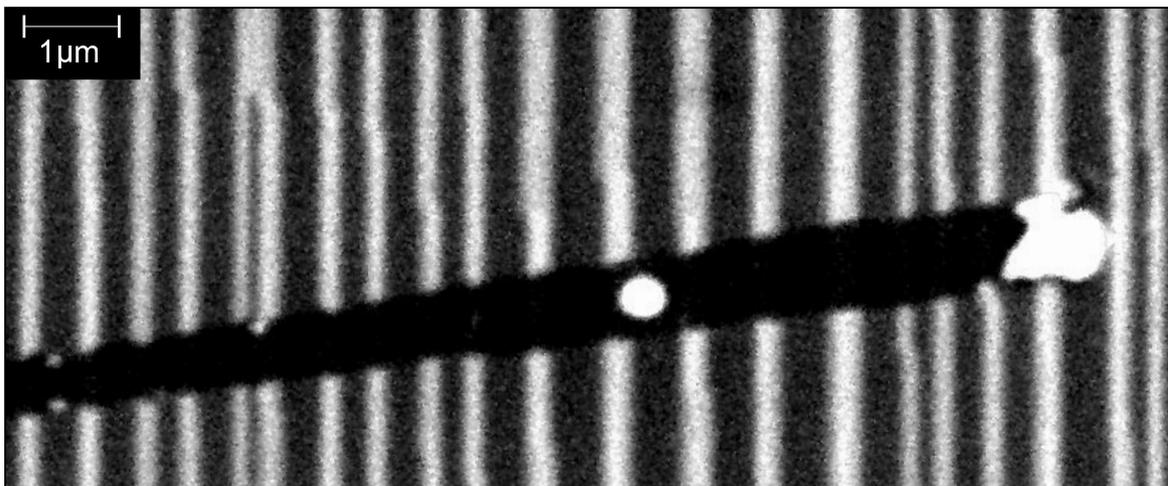
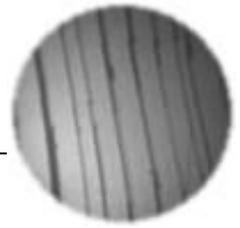


Abbildung 10.11: Nanodrähte, die durch leichtes Berühren mit einer Pinzette teilweise zerstört wurden.

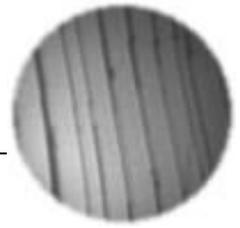
Zunächst ist jedoch auszuschließen, daß die Drähte *in sich* unterbrochen sind und nur aus kleinen Inselchen bestehen, die untereinander keinen Kontakt besitzen. Dies kann durch eine Überwachung der Leitfähigkeit während der Drahterzeugung erfolgen. Bei dickeren Au Filmen sollten sich die Au Inseln berühren und somit bereits bei Raumtemperatur ein Anstieg der Leitfähigkeit meßbar sein. Außerdem sollte bereits kurz vor der Perkolation Tunneltransport stattfinden. Beim Tunneln in Gold und Silber haben verschiedene Gruppen die Entstehung von Licht berichtet [115, 116]. Bei den untersuchten Edelmetallen ist dieser Effekt so groß, daß er mit bloßem Auge wahrgenommen werden kann. Auch hierin besteht daher eine Möglichkeit, die Drahterzeugung zu überwachen.



Literaturverzeichnis

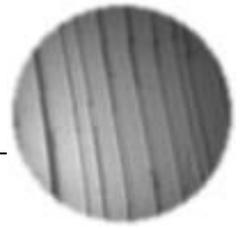
- [1] SIA. *Semiconductor Industries Association National Technology Roadmap for Semiconductors*. 1994 ([document](#))
- [2] SANDLER, N.P. ; MASLOV, D.L.: Interactions and disorder in multichannel quantum wires. In: *Phys. Rev. B* 54 (1997), Nr. 4, S. 13308–16 ([document](#))
- [3] GARCIA-MOCHALES, P. ; SERENA, P.A. ; GARCIA, N. ; COSTA-CRÄMER, J.L.: Conductance in disordered Nanowires: Forward and backscattering. In: *Phys. Rev. B* 53 (1996), Nr. 15, S. 10268–10280 ([document](#))
- [4] NICOLIC, K. ; MACKINNON, A.: Conductance and conductance fluctuation of narrow disordered quantum wires. In: *Phys. Rev. B* 50 (1994), Nr. 15, S. 11008–11017 ([document](#))
- [5] TAMURA, H. ; ANDO, T.: Conductance fluctuations in quantum wires. In: *Phys. Rev. B* 44 (1991), Nr. 4, S. 1792–1800 ([document](#))
- [6] YANSON, A.I. ; BOLLINGER, G. R. ; BROM, H.E. van d. ; AGRAIT, N. ; VAN RUITENBEEK, J.M.: Formation and manipulation of a metallic wire of single Au atoms. In: *Nature* 395 (1998), S. 783–785 ([document](#))
- [7] COSTA-CRÄMER, J.L. ; GARCIA, N. ; GARCIA-MOCHALES, P. ; SERENA, P.A. ; MARQUES, M.I. ; CORREIA, A.: Conductance quantization in nanowires formed between micro and macroscopic metallic electrodes. In: *Phys. Rev. B* 55 (1997), Nr. 8, S. 5416–5424 ([document](#))
- [8] OHNISHI, H. ; KONDO, Y. ; TAKAYANAGI, K.: Quantized conductance through individual rows of suspended Gold atoms. In: *Nature* 395 (1998), S. 780–782 ([document](#))
- [9] FRIEDRICHOWSKI, S. ; DUMPICH, G.: One- and two-dimensional quantum transport in thin gold wires. In: *Phys. Rev. B* 58 (1998), Nr. 15, S. 9689–9692 ([document](#))

- [10] LOHAU, J. ; FRIEDRICHOWSKI, S. ; DUMPICH, G. ; WASSERMANN, E.F. ; WINTER, M. ; REETZ, M.T.: Electron-beam lithography with metal colloids: Direct writing of metallic nanostructures. In: *J. Vac. Sci. Technol. B* 16 (1998), Nr. 1, S. 77–79 ([document](#))
- [11] LOHAU, J. ; FRIEDRICHOWSKI, S. ; DUMPICH, G.: Electron-beam lithography using a scanning transmission electron microscope CM12 (Philips). In: *J. Vac. Sci. Technol. B* 16 (1998), Nr. 3, S. 1150–1154 ([document](#))
- [12] SONG, S. ; YOON, M. ; MOCHRIE, S.G.J. ; STEPHENSON, G.B. ; MILNER, S.T.: Faceting kinetics of stepped Si(113) surfaces: dynamic scaling and nano-scale grooves. In: *Surf. Sci.* 372 (1997), S. 37–63 ([document](#))
- [13] YOON, M. ; MOCHRIE, S.G.J. ; TATE, M.W. ; GRUNER, S.M. ; EIKENBERRY, E.F.: Periodic faceting of a Si(113) surface miscut towards $[1\bar{1}0]$. In: *Surf. Sci.* 411 (1998), S. 70–85 ([document](#))
- [14] SULIGA, E. ; HENZLER, M.: Faceting of a Ge(111) surface and its vicinals during Ag adsorption. In: *J. Vac. Sci. Technol. A* 1 (1983), Nr. 3, S. 1507–11 ([document](#))
- [15] LI, L. ; WEI, Y. ; TSONG, I.S.T.: Reconstruction, step-bunching and faceting of a vicinal Si(100) surface induced by indium adsorption. In: *Surf. Sci.* 304 (1994), S. 1–11 ([document](#))
- [16] GAI, Z. ; JI, H. ; HE, Y. ; HU, C. ; ZHAO, R.G. ; YANG, W.S.: $\{310\}$ faceting of the Ge(001) 2×1 surface induced by indium. In: *Surf. Sci. Lett.* 338 (1995), S. L851–6 ([document](#))
- [17] SEEHOFER, L. ; HUHS, S. ; FALKENBERG, G. ; JOHNSON, R.L.: Gold-induced faceting of Si(111). In: *Surf. Sci.* 329 (1995), S. 157–166 ([document](#))
- [18] STOYANOV, S.: Electromigration induced step bunching on Si surfaces - How does it depend on the temperature and heating current direction? In: *Jpn. J. Appl. Phys.* 30 (1991), Nr. 1, S. 1–6 ([document](#)), [3.3](#)
- [19] STOYANOV, S. ; NAKAHARA, H. ; ICHIKAWA, M.: Dynamics of step bunching induced by DC resistive heating of Si wafer. In: *Jpn. J. Appl. Phys.* 33 (1994), Nr. 1 A, Part 1, S. 254–9 ([document](#))
- [20] JUNG, T. ; SCHLITTLER, R. ; GIMZEWSKI, J.K. ; HIMPEL, F.J.: One-dimensional metal structures at decorated steps. In: *Appl. Phys. A* 61 (1995), S. 467–74 ([document](#))



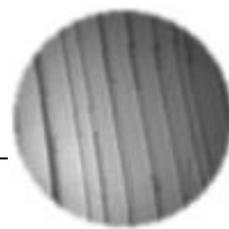
- [21] SUNAMURA, H. ; USAMI, N. ; SHIRAKI, Y. ; FUKATSU, S.: Observation of lateral confinement effect in Ge quantum wires self-aligned at step edges on Si(100). In: *Appl. Phys. Lett.* 68 (1983), Nr. 13, S. 1847–9 ([document](#))
- [22] VIERECK, J. ; TRÄGER, F. ; HOHEISEL, W.: Generation of long-ranging metallic nanostructures by decoration of steps on dielectric substrates. In: *Surf. Sci.* 340 (1995), S. L988–92 ([document](#))
- [23] MEIER, A.: *Der Schritt von atomaren Stufen zu Superterrassen auf vicinalem Si(001)*, Institut für Festkörperphysik, Universität Hannover, Dissertation, Oktober 1997 ([document](#)), [1.2](#), [1.4.1](#), [4.2](#), [4.2.1](#), [4.5.1](#), [6.2](#)
- [24] MEIER, A. ; ZAHL, P. ; VOCKENROTH, R. ; HORN-VON HOEGEN, M.: Step arrangement control of vicinal Si(001) by Ag adsorption. In: *Appl. Surf. Sci.* 123/124 (1997), S. 694–698 ([document](#))
- [25] FÖLSCH, S. ; WINAU, D. ; MEYER, G. ; RIEDER, K.H. ; HORN-VON HOEGEN, M. ; SCHMIDT, T. ; HENZLER, M.: Ag-induced multistep formation on Si(001). In: *Appl. Phys. Lett.* 67 (1995), Nr. 15, S. 2185–7 ([document](#))
- [26] FÖLSCH, S. ; MEYER, G. ; RIEDER, K.H.: Ag-mediated step-bunching instability on vicinal Si(100). In: *Surf. Sci.* 394 (1997), Nr. 1-3, S. 60–70 ([document](#))
- [27] ZAHL, P.: *Kinetik der Vielfachstufenbildung von Si(001) durch Ag Adsorption*, Institut für Festkörperphysik, Universität Hannover, Diplomarbeit, 1996 ([document](#)), [1.2](#)
- [28] SCHEITHAUER, U. ; MEYER, G. ; HENZLER, M.: A new LEED Instrument for quantitative spot profile analysis. In: *Surf. Sci.* 178 (1986), S. 441–451 [1.1](#)
- [29] SCHMIDT, Th.: *Entwicklung einer verbesserten Elektronenbeugungsapparatur*, Institut für Festkörperphysik, Universität Hannover, Diplomarbeit, 1990 [1.1](#)
- [30] MEYER ZU HERINGDORF, F.-J. ; PIETSCH, H.: Software zum Entzerren von LEED Bildern. In: <http://www.fkp.uni-hannover.de/FKP/SPALEED/neutrans.zip> (1998) [1.1](#), [1.4](#), [1.1](#)
- [31] HILD, R.: *STM Untersuchungen zur atomaren Struktur der Gold-induzierten Rekonstruktion auf vicinalem Si(001)*, Institut für Festkörperphysik, Universität Hannover, Diplomarbeit, 1998 [1.2](#), [6.1](#), [8.2.4](#)
- [32] HENZLER, M. ; GÖPEL, W.: Oberflächenphysik des Festkörpers. In: *Teubner Studienbücher – Physik*. B. G. Teubner, 1994 [1.4](#), [2.1](#), [2.1](#)

- [33] MÜLLER, B. H.: *Heteroepitaxie mit Gitterfehlanpassung: Germanium und Silizium*, Universität Hannover, Dissertation, 1995 [1.4.1](#)
- [34] KAMMLER, M.: *Heteroepitaxie auf Silizium mit Adsorbaten*, Institut für Festkörperphysik, Universität Hannover, Diplomarbeit, 1996 [1.4.1](#)
- [35] MEIER, A.: *SPA-LEED Untersuchungen epitaktischen Wachstum von CaF_2 auf $\text{Si}(111)$* , Institut für Festkörperphysik, Universität Hannover, Diplomarbeit, 1994 [1.4.1](#), [2.1](#)
- [36] KÄHLER, D.: *Facettierung von vicinalen $\text{Si}(001)$ -Flächen bei Adsorption von Gold*, Institut für Festkörperphysik, Universität Hannover, Diplomarbeit, 1997 [1.4.1](#), [4.5.1](#), [4.7.1](#), [4.7.2](#), [4.8.2](#)
- [37] SEAH, M.P. ; DENCH, W.A.: Quantitative electron spectroscopy of surfaces. A standard data base for electron inelastic mean free paths in solids. In: *Surf. Interface Anal.* 1 (1979), S. 2 [2.1](#)
- [38] LENT, C.S. ; COHEN, P.I.: Diffraction from stepped surfaces; I. Reversible surfaces. In: *Surf. Sci.* 139 (1984), S. 121–154 [2.1](#)
- [39] WOLLSCHLÄGER, J. ; FALTA, J. ; HENZLER, M.: Electron diffraction at stepped homogeneous and inhomogeneous surfaces. In: *Appl. Phys. A* 50 (1990), S. 57–68 [2.1](#)
- [40] HORN-VON HOEGEN, M.: Growth of semiconductor layers studied by spot profile analysing low energy electron diffraction. In: *Zeitschrift für Kristallographie* (in press) [2.1](#), [2.2.1](#), [5.3.3](#)
- [41] HEIDENREICH, R.D.: Fundamentals of transmission electron microscopy. In: *Interscience, New York* (1964), S. 101–105 [2.1.2](#)
- [42] PARK, R.L. ; HOUSTON, J.E. ; SCHREINER, D.G.: The LEED instrument response function. In: *Rev. Sci. Instrum.* 42 (1979), S. 60–65 [2.1.2](#), [2.1.2](#)
- [43] PENDRY, J.B.: Low Energy Electron Diffraction. In: *Academic Press, London* (1974), S. 5–6 [2.1.2](#)
- [44] COMSA, G.: Coherence length and/or transfer width? In: *Surf. Sci.* 81 (1979), S. 57–86 [2.1.2](#)
- [45] HUSZAR, M.: *SPA-LEED Rauheitsanalyse der unter Wasserstoffeinfluß facettierten $\text{Si}(111)$ Fläche*, Institut für Festkörperphysik, Universität Hannover, Diplomarbeit, 1996 [2.1.2](#), [8.1.1](#)



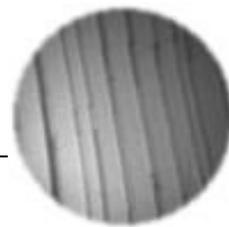
- [46] MORITZ, W.: *persönliche Mitteilung*. 1998 [2.3.1](#)
- [47] MEYER ZU HERINGDORF, F.-J.: Software für k_{\perp} Scans. In: <http://www.fkp.uni-hannover.de/FKP/SPALEED/whering32.zip> (1998) [2.3.2](#)
- [48] MEYER ZU HERINGDORF, F.: *Untersuchung zur Disilan-CVD auf Si(100) und Si(113)*, Institut für Festkörperphysik, Universität Hannover, Diplomarbeit, 1996 [2.3.2](#), [8.1.1](#)
- [49] MÜLLER, B.: *Profilanalyse bei der Reflexionselektronenbeugung (RHEED): elastische und inelastische Streuung*, Universität Hannover, Dissertation, 1994 [2.3.2](#)
- [50] MÜLLER, B. ; HENZLER, M.: Comparison of reflection high-energy electron diffraction and low energy electron diffraction using high-resolution instrumentation. In: *Surf. Sci.* 389 (1997), S. 338–348 [2.3.2](#)
- [51] KITTEL, Ch.: *Einführung in die Festkörperphysik*. München : Oldenbourg, 1988 [3.1](#)
- [52] DUKE, C.B.: Surface structures of tetrahedrally coordinated semiconductors: principles, practice, and universality. In: *Appl. Surf. Sci.* 66 (1993), Nr. 1-4, S. 543–52 [3.1](#)
- [53] DUKE, C.B.: Principles of semiconductor surface reconstruction. In: *Scanning Microsc.* 8 (1994), Nr. 4, S. 753–64 [3.1](#)
- [54] LANNOO, M. ; FRIEDEL, P.: Atomic and electronic structure of surfaces, theoretical foundations. In: *Springer Series in Surface Science, Vol.16, Abschn. 4.3.1* (1991). – Springer, Berlin [3.1](#), [3.1](#)
- [55] KEATING, P.N.: Effect of invariance requirements on the elastic strain energy of crystals with application to the diamond structure. In: *Phys. Rev.* 145 (1966), Nr. 2, S. 637–45 [3.1](#), [3.1](#)
- [56] LANNOO, M. ; ALLAN, G.: Green's-function calculation of the lattice response near the vacancy in silicon. In: *Phys. Rev. B* 25 (1982), Nr. 6, S. 4089–4101 [3.1](#)
- [57] WOOD, A.E.: Vocabulary of surface crystallography. In: *J. of Appl. Phys.* 35 (1964), Nr. 4, S. 1306–1312 [3.1](#)
- [58] LEVINE, J.D.: Structural and electronic model of negative electron affinity on the Si/Cs/O surface. In: *Surf. Sci.* 34 (1973), S. 90–107 [3.2](#)

- [59] WANG, Y. ; BRONIKOWSKI, M.J. ; HAMERS, R.J.: An atomically resolved scanning tunneling microscopy study of the thermal decomposition of disilane on Si(001). In: *Surf. Sci.* 311 (1994), S. 64–100 [3.2](#)
- [60] MO, Y.-W. ; LAGALLY, M.: Anisotropy in surface migration of Si and Ge on Si(001). In: *Surf. Sci.* 248 (1991), Nr. 3, S. 313–20 [3.2](#)
- [61] MO, Y.-W. ; KLEINER, J. ; WEBB, M. ; LAGALLY, M.: Surface self diffusion of Si on Si(001). In: *Surf. Sci.* 268 (1992), Nr. 1-3, S. 275–95 [3.2](#)
- [62] RAMSTAD, A. ; BROCKS, G. ; KELLY, P. J.: Theoretical study of the Si(100) surface reconstruction. In: *Phys. Rev. B* 51 (1995), Nr. 20, S. 14504–23 [3.1](#), [3.2](#)
- [63] CHADI, D.J.: Stabilities of single-layer and bilayer steps on Si(001) surfaces. In: *Phys. Rev. Lett.* 59 (1987), Nr. 15, S. 1691–94 [3.4](#), [3.3](#), [3.3](#)
- [64] GAI, Z. ; ZHAO, G. ; LI, X. ; YANG, W.S.: Faceting and nanoscale faceting of Ge(hhl) surfaces around (113). In: *Phys. Rev. B* 58 (1998), Nr. 8, S. 4572–8 [3.3](#)
- [65] HERRING, C.: Some theorems on the free energies of crystal surfaces. In: *Phys. Rev.* 82 (1982), S. 87–93 [3.3](#)
- [66] DE MIGUEL, J.J. ; AUMANN, C.E. ; KARIOTIS, R. ; LAGALLY, M.G.: Evolution of vicinal Si(001) from double- to single-atomic-height steps with temperature. In: *Phys. Rev. Lett.* 67 (1991), Nr. 20, S. 2830–3 [3.3](#), [4.1.1](#)
- [67] TONG, X. ; BENNET, P.A.: Terrace-width-induced domain transition on vicinal Si(100) studied with microprobe diffraction. In: *Phys. Rev. Lett.* 67 (1991), Nr. 1, S. 101–4 [3.3](#), [3.3](#), [4.1.1](#)
- [68] ALERHAND, O. L. ; BERKER, A. N. ; JOANNOPOULOS, J. D. ; VANDERBILT, David ; HAMERS, R. J. ; DEMUTH, J. E.: Finite-temperature phase diagram of vicinal Si(100) surfaces. In: *Phys. Rev. Lett.* 64 (1990), Nr. 20, S. 2406–2409 [3.3](#)
- [69] SALANON, B. ; BARBIER, L. ; LAPUJOLADE, J.: Wetting transition on vicinal surfaces of Si(100). In: *J. Vac. Sci. Technol. A* 10 (1992), Nr. 4, S. 2066–70 [3.3](#), [4.1.1](#)
- [70] DABROWSKI, J. ; PEHLKE, E. ; SCHEFFLER, M.: Calculation of the surface stress anisotropy for the buckled Si(001) (1×2) and $p(2 \times 2)$ surfaces. In: *Phys. Rev. B* 49 (1994), Nr. 7, S. 4790–3 [3.3](#)



- [71] DABROWSKI, J. ; PEHLKE, E. ; SCHEFFLER, M.: Relation between atomic structure and surface-stress anisotropy: Calculations for the clean Si(001) surface. In: *J. Vac. Sci. Technol. B* 12 (1984), Nr. 4, S. 2675–7 **3.3**
- [72] MEN, F.K. ; PACKARD, W.E. ; WEBB, M.B.: Si(100) surface under an externally applied stress. In: *Phys. Rev. Lett.* 61 (1988), Nr. 21, S. 2469–71 **3.3**
- [73] ALERHAND, O.L. ; VANDERBILT, D. ; MEADE, R.D. ; JOANNOPOULOS, J.D.: Spontaneous formation of stress domains on crystal surfaces. In: *Phys. Rev. Lett.* 61 (1988), Nr. 17, S. 1973–6 **3.3**
- [74] MARCHENKO, V.I.: Possible structures and phase transitions on the surface of crystals. In: *JETP Lett.* 33 (1981), S. 381–3 **3.3**
- [75] SCHRÖDER-BERGEN, E. ; RANKE, W.: Steps on Si(001) vicinal surfaces tilted by various angles in the $[1\bar{1}0]$ –, $[100]$ – and $[2\bar{1}0]$ –zones, investigated by high resolution LEED. In: *Surf. Sci.* 259 (1991), S. 323–38 **3.3**
- [76] AUMANN, C.E. ; DE MIGUEL, J.J. ; KARIOTIS, R. ; LAGALLY, M.G.: Temperature dependence of the step structure of vicinal Si(001) surfaces. In: *Surf. Sci.* 275 (1992), S. 1–15 **3.3**
- [77] WASSERFALL, J. ; RANKE, W.: Azimuthal variation of the step distribution on vicinal Si(001) surfaces. In: *Surf. Sci.* 315 (1994), S. 227–36 **3.3**
- [78] HANBÜCKEN, M. ; RÖTTGER, B. ; NEDDERMEYER, H.: Scanning tunneling microscopy on concave-shaped Si(100) substrates. In: *Surf. Sci.* 331–333 (1995), S. 1028–32 **3.3**
- [79] ZANDVLIET, H.J.W. ; VAN DIJKEN, S. ; POELSEMA, B.: Direct determination of the step-edge formation energies of the energetically stable and unstable double-layer step edges of Si(001). In: *Phys. Rev. B* 53 (1996), Nr. 23, S. 15429–31 **3.3**
- [80] ALERHAND, O.L. ; BERKER, A.N. ; JOANNOPOULOS, J.D. ; VANDERBILT, D. ; HAMERS, R.J. ; DEMUTH, J.E.: Finite-temperature phase diagram of vicinal si(100) surfaces. In: *Phys. Rev. Lett.* 64 (1990), Nr. 20, S. 2406–9 **4.1.1**
- [81] MINODA, H. ; YAGI, K. ; MEYER ZU HERINGDORF, F.-J. ; MEIER, A. ; KÄHLER, D. ; HORN-VON HOEGEN, M.: Gold-induced faceting on a Si(001) vicinal surface: Spot-profile-analyzing LEED and reflection-electron-microscopy study. In: *Phys. Rev. B* 59 (1999), Nr. 3, S. 2363–75 **4.2.1**

- [82] YAMANAKA, A. ; TANISHIRO, Y. ; YAGI, K.: Surface electromigration of Au on Si(001) studied by REM. In: *Surf. Sci.* 264 (1992), S. 55–64 [4.11](#), [4.5](#)
- [83] MINODA, H. ; HORN-VON HOEGEN, M. *Die Daten wurden freundlicherweise zur Verfügung gestellt von H. Minoda, Universität Hannover, Hannover* [4.5.1](#)
- [84] YAGI, K.: Reflection Electron Microscopy. In: *J. Appl. Cryst.* 20 (1987), S. 147–160 [4.5.1](#)
- [85] BERMOND, J.M. ; METOIS, J.J. ; EGEEA, X. ; FLORET, F.: The equilibrium shape of silicon. In: *Surf. Sci.* 330 (1995), S. 48–60 [4.6](#), [10.3](#)
- [86] COPEL, M. *Die MEIS Untersuchungen wurden von M. Copel am IBM Watson Research Center, Yorktown Heights, USA durchgeführt.* [4.8.2](#)
- [87] BERRY, M. V. ; KLEIN, S.: Die Farbe von Kaustiken. In: *Physikalische Blätter* 53 (1997), Nr. 11, S. 1095–1098 [5.1.1](#)
- [88] KELLER, M.: *DuMont's Handbuch der Bühnenbeleuchtung.* DuMont Buchverlag Köln, 1985 [5.1.1](#)
- [89] BERGAMNN ; SCHÄFER: *Lehrbuch der Experimentalphysik, Band 3: Optik.* De Gruyter, Berlin, 1993 [5.3.3](#)
- [90] LIN, X.F. ; WAN, K.J. ; GLUECKSTEIN, J.C. ; NOGAMI, J.: Gold-induced reconstructions of the Si(001) surface: The 5×3 and $\sqrt{26}\times 3$ phases. In: *Phys. Rev. B* 47 (1993), Nr. 7, S. 3671–6 [6.1](#), [6.2](#)
- [91] VENEKLASEN, L.H.: Design of a spectroscopic low-energy electron microscope. In: *Ultramicroscopy* 36 (1991), S. 76–90 [7](#)
- [92] SCHMIDT, Th. ; HEUN, S. ; SLEZAK, J. ; DIAZ, J. ; PRINCE, K.C.: SPELEEM: Combining LEEM and spectroscopic imaging. In: *Surf. Rev. and Lett.* 5 (1998), Nr. 6, S. 1287–1296 [7](#), [7.2](#), [7.1.1](#), [7.4](#)
- [93] TROMP, R.M. ; MANKOS, M. ; REUTER, M.C. ; ELLIS, A.W. ; COPEL, M.: A new low energy electron microscope. In: *Surf. Rev. and Lett.* 5 (1998), Nr. 6, S. 1189–1197 [7.1.1](#), [7.1.1](#), [7.2](#), [7.1.1](#)
- [94] WICHTENDAHL, R. ; FINK, R. ; KUHLENBECK, H. ; PREIKSZAS, D. ; ROSE, H. ; SPEHR, R. ; HARTEL, P. ; ENGEL, W. ; SCHLÖGL, R. ; FREUND, H.-J. ; BRADSHAW, A.M. ; LILIENKAMP, G. ; SCHMIDT, Th. ; BAUER, E. ; BENNER, G. ; UMBACH, E.: SMART: An aberration-corrected XPEEM/LEEM with energy filter. In: *Surf. Rev. and Lett.* 5 (1998), Nr. 6, S. 1249–1256 [7.1.1](#), [7.2](#), [7.1.1](#)



- [95] DUDEN, Th. ; BAUER, E.: Spin polarized low energy electron microscopy. In: *Surf. Rev. and Lett.* 5 (1998), Nr. 6, S. 1213–1219 [7.1.1](#)
- [96] ELMITEC: Elmitec WWW Informationen. In: <http://elmittec-gmbh.com> (1998) [7.2](#)
- [97] BAUER, E.: LEEM Basics. In: *Surf. Rev. and Lett.* 5 (1998), Nr. 6, S. 1275–1286 [7.1.1](#)
- [98] CASALIS, L. ; JARK, W. ; KISKINOVA, M. ; LONZA, D. ; MELPIGNANO, P. ; MORRIS, D. ; ROSEI, R. ; SAVOIA, A. ; ABRAMI, A. ; FAVA, C. ; FURLAN, P. ; PUGLIESE, R. ; VIVODA, D. ; SANDRIN, G. ; WEI, F.-Q. ; CONTARINI, S. ; DEANGELIS, L. ; GARIAZZO, C. ; NATALETTI, P. ; MORRISON, G.R.: ESCA microscopy beamline at ELETTRA. In: *Rev. Sci. Instrum.* 66 (1995), S. 10 [7.1.1](#)
- [99] SAKAI, Y. ; KATO, M. ; MASUDA, S. ; HARADA, Y. ; ICHINOKAWA, T.: Development of a low energy electron microscope with an energy analyzer. In: *Surf. Rev. and Lett.* 5 (1998), Nr. 6 [7.1.1](#)
- [100] HIRAYAMA, H. ; HIROI, M. ; IDE, T.: {331} facets of selectively grown epitaxial Si layers on SiO₂ patterned Si(001) surfaces. In: *Phys. Rev. B* 39 (1988), Nr. 8, S. 5222 [8.1.1](#)
- [101] LIN, X. F. ; WAN, K. J. ; GLUECKSTEIN, J. C. ; NOGAMI, J.: Gold-induced reconstruction of the Si(001) surface: The 5×3 and $\sqrt{26}\times 3$ phases. In: *Phys. Rev. B* 47 (1993), Nr. 7, S. 3671–6 [8.2.4](#), [8.14](#)
- [102] YEH, J.J. ; LINDAU, I.: Atomic subshell photoionization cross sections and asymmetry parameters: $1 \leq Z \leq 103$. In: *Atomic data and nuclear data tables* 32 (1985), S. 1–155 [9.1](#)
- [103] BRIGGS, D. ; SEAH, M.P. (Ed.): *Practical surface analysis by auger and x-ray photoelectron spectroscopy*. John Wiley & Sons, 1983 [9.1](#)
- [104] DAVIS, L. ; MACDONALD, M.C. ; PALMBERG, P.W. ; RIACH, G.E. ; WEBER, R.E.: *Handbook of auger electron spectroscopy*. Physical Electronics Industries, 1976 [9.1](#)
- [105] HRICOVINI, K. ; BONNET, J.E. ; CARRIERE, B. ; DEVILLE, J.P. ; HANBÜCKEN, M. ; LAY, G. L.: Photoelectron spectroscopy studies of the formation of the Au-Si(100) interface using synchrotron radiation. In: *Surf. Sci.* 211/212 (1989), S. 630 [9.3](#), [9.2](#), [9.2](#)

- [106] BRUNDLE, C.R. ; BAKER, A.D.: *Electron Spectroscopy*. Academic Press, New York., 1978 9.2, 9.2
- [107] ZANDVLIET, H.J.W. ; ELSWIJK, H.B.: Morphology of monatomic step edges on vicinal Si(001). In: *Phys. Rev. B* 48 (1993), Nr. 19, S. 14269–75 10.1
- [108] SCHNASSE, G.: *Streulichtmessungen an geätzten Silicium Oberflächen*, Institut für Festkörperphysik, Universität Hannover, Diplomarbeit, 1995 10.2
- [109] KUMPE, R.: *Streulicht und Rastertunnelmikroskopuntersuchungen an optischen Silicium Flächen*, Universität Hannover, Dissertation, 1997 10.2
- [110] VENABLES, J.A. ; SPILLER, G.D.T. ; HANBÜCKEN, M.: Nucleation and growth in surface adsorption processes. In: *Rep. Prog. Phys.* 47 (1984), S. 339–459 10.2.1
- [111] HECHT, Eugene: *Optik*. McGraw–Hill, 1987 10.2.1
- [112] BERMOND, J.M. ; METOIS, J.J. ; HEYRAUD, J.C. ; FLORET, F.: Shape universality of equilibrated silicon crystals. In: *Surf. Sci.* 416 (1998), S. 430–47 10.3
- [113] ZHACHUK, R. ; HILD, R. ; MEYER ZU HERINGDORF, F.-J. ; OLSHANETSKY, B.Z. ; HORN-VON HOEGEN, M.: Untersuchungen zur Au Adsorption auf vicinalen Si(111) Flächen. (unveröffentlicht) 10.3
- [114] REIMER, L. ; PFEFFERKORN, G.: *Rasterelektronen–Mikroskopie*. Springer Verlag, 1977 10.4
- [115] DAWSON, P. ; WALMSLEY, D.G. ; QUINN, H.A. ; FERGUSON, A.J.L.: Observation and explanation of light–emission spektra from statistically rough Cu, Ag and Au tunnel junctions. In: *Phys. Rev. B* 30 (1984), Nr. 6, S. 3164–3178 10.4
- [116] BERNDT, R. ; GIMZEWSKI, J.K.: The role of proximity plasmon modes on noble metal surfaces in scanning tunneling microscopy. In: *Surf. Sci.* 269/270 (1992), S. 556–559 10.4

Lebenslauf

Frank-Joachim Meyer zu Heringdorf
15.10.1969 geboren in Osnabrück, Niedersachsen

31.08.1976 Max-Greve Grundschule, Bochum

04.08.1980 Freiherr vom Stein Gymnasium, Bochum

13.08.1984 Gymnasium Melle, Melle

05.05.1989 Abitur

01.07.1989– 15.09.1989 Werkstudent bei Siemens / KWU (Berlin)

15.10.1989 Studium der Physik, Universität Hannover

01.08.1991– 01.10.1991 Klöckner Georgsmarienhütte GmbH, Osnabrück
(programmieren in DBase)

09.10.92 Vordiplom

01.07.1993– 31.08.1993 Klöckner Georgsmarienhütte GmbH, Osnabrück
(programmieren in PASCAL)

15.11.1994– 14.11.1995 Diplomarbeit
Institut für Festkörperphysik, Universität Hannover
Thema der Arbeit:
Disilan Epitaxie auf Si(100) und Si(113)

09.02.1996 Diplomprüfung in Physik

Ab 1.4.1996 wissenschaftlicher Mitarbeiter
Institut für Festkörperphysik, Universität Hannover

Danksagung

Nach drei Jahren Promotion und insgesamt 4 Jahren am Institut für Festkörperphysik in Hannover ist hoffnungslos, abschließend und lückenlos alle aufzählen zu wollen, bei denen ich rückblickend das Bedürfnis verspüre, mich zu bedanken.

Herr Prof. Dr. M. Horn-von Hoegen hat die Themenstellung zu dieser Arbeit vergeben und durch viel "Rückenwind", Motivation und Diskussion zum Gelingen beigetragen. Herrn Prof. Dr. M. Henzler verdanke ich die Möglichkeit, die Arbeit in der Abteilung Oberflächen durchführen zu dürfen, sowie viele wertvolle Tips und Hinweise.

Herr Prof. Dr. H. Pfnür hat einige Ideen durch seine Kompetenz in den Bereichen XPS und Phasenübergänge eingebracht.

Herrn Prof. Dr. R. Haug danke ich für die Erlaubnis zur (ausgiebigen) Nutzung von Infrastruktur der Abteilung "Nanostrukturen".

Herrn Prof. Bauer für seinen Beitrag zur Ermöglichung der LEEM und XPEEM Messungen (sowie für die Einladung zum LEEM Workshop in Arizona).

Ohne die intensive Betreuung von Dr. Th. Schmidt wären die LEEM Messzeiten sicherlich nicht erfolgreich gewesen. Die "Leidensgenossen" der XPEEM Nachtschichten waren Dr. Th. Schmidt, Dr. S. Heun, B. Ressel, Dr. K. Prince, P. Zahl und R. Hild.

Unseren japanischen Kooperationspartnern Prof. K. Yagi, Dr. H. Minoda und T. Shimakura danke ich für ihre Gastfreundschaft bei meinem Besuch in Tokyo.

Von meinen Diplomanden verdanke ich D. Kähler wesentliche Ideen und Messungen zum Gittergasmodell und R. Hild die meisten der (ausgezeichneten) STM-Bilder.

Meinem langjährigen Begleiter durch das Studium, G. Schnasse verdanke ich viele Diskussionen über Institutsbelange und jede Menge "Doppelkekse". Dies gilt ebenso für H. Goldbach, wenn auch das Wort "Doppelkeks" durch "Saunabesuch" ersetzt werden muß.

Allen anderen Institutsmitgliedern sei an dieser Stelle für das nette Arbeitsklima gedankt. Hier sind noch einmal hervorzuheben F. Hohls, der die ersten Leitfähigkeitsmessungen an den Drahtstrukturen versucht hat, P. Hullmann für diverse kleine Hilfeleistungen und Ch. Tegenkamp, der bereitwillig meine Fragen zu XPS beantwortete. Einen reibungslosen Betrieb der MBE-Apparatur verdanke ich auch unserer Werkstatt, die schnelle und dringende Reparaturarbeiten immer schnell und gut ausführte. Meinen Eltern danke ich, daß sie mir auch in dieser Zeit jede mögliche Unterstützung haben zukommen lassen.

Die undankbare Aufgabe des Korrekturlesens dieser Arbeit übernahmen R. Hild und auszugsweise Dr. Th. Schmidt. Die stilistische Unbedenklichkeitsbescheinigung wurde von meiner Schwester K. Meyer zu Heringdorf erstellt, für Rechtschreibfehler zeichnet B. Husemann verantwortlich ...

Britta Husemann verdanke ich außerdem die Überwindung von insgesamt ca. 35000km Autobahn zwischen Osnabrück und Hannover.

Abschließend gilt mein Dank der Deutschen Forschungsgemeinschaft, mit deren finanzieller Unterstützung es überhaupt erst möglich war, diese Arbeit durchzuführen. Die XPEEM Meßzeit am Speicherring ELETTRA wurde aus Mitteln der Europäischen Union finanziert.