

**Vergleichende Untersuchungen zur
Morphologie und zur elektrischen
Leitfähigkeit ultradünner Silberschichten**

Vom Fachbereich Physik
der Universität Hannover
zur Erlangung des Grades

Doktor der Naturwissenschaften
Dr. rer. nat.

genehmigte Dissertation

von

M.sc. En-Zhou Luo

geboren am 24. September 1959
in Stadt Shaodong der Provinz Hunan, Volksrepublik China

1993

Referent: Prof. Dr. M. Henzler
Korreferent: Prof. Dr. H.-U. Everts
Tag der Promotion: 29 Oktober 1993

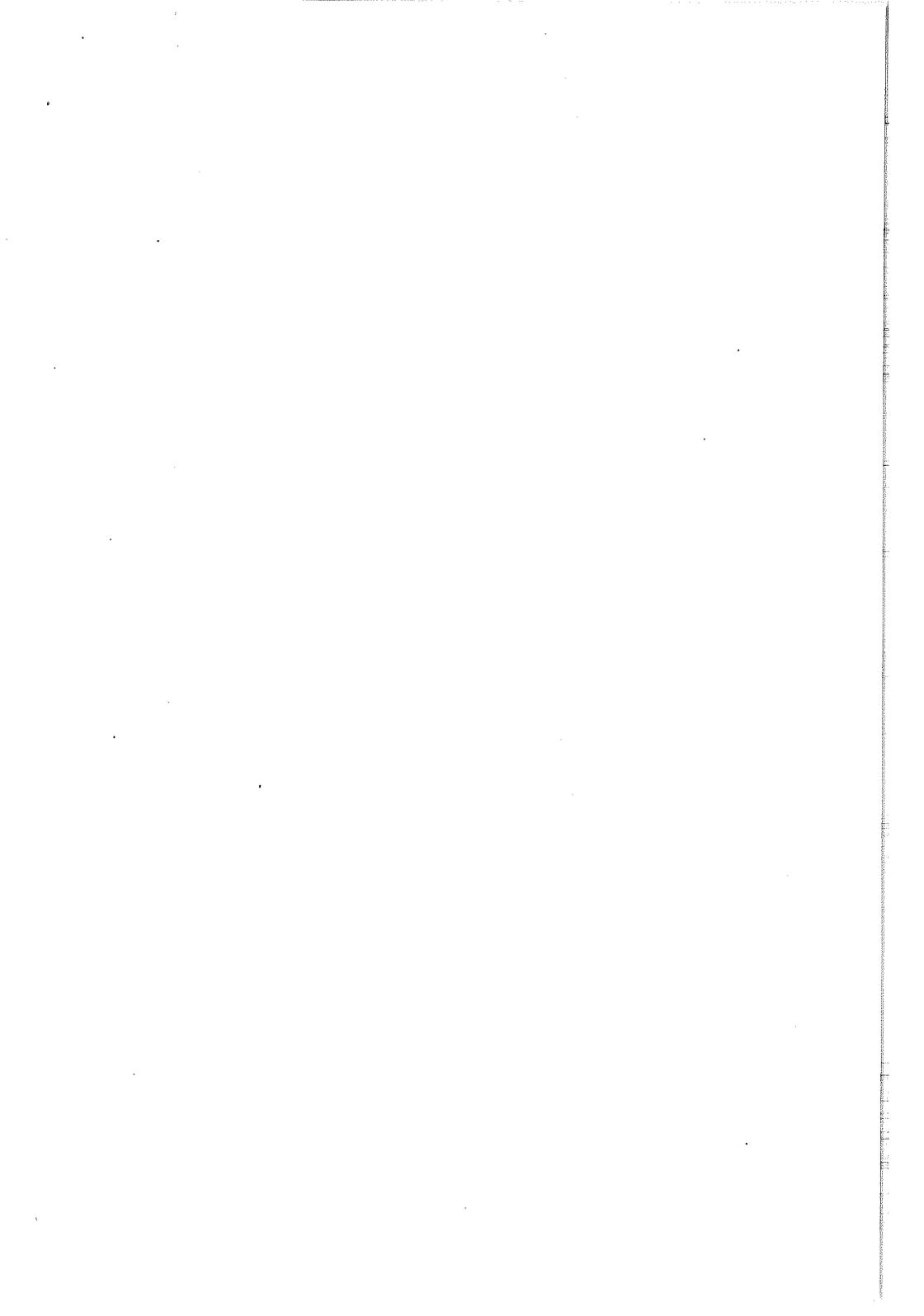
Zusammenfassung

Die durch epitaktisches Wachstum von Ag auf Si(111) und Ag auf Ag(111) bei tiefen Temperaturen erzeugten Oberflächendefekte sowie ihr Ausheilen wurden mit einem hochauflösenden LEED-System (Spot Profil Analysis-LEED) untersucht. Die genaue Analyse der mit ihm gewonnenen Reflexprofile erlaubt es, die Morphologie der Oberflächen quantitativ zu bestimmen. Dadurch konnte ein tiefes Verständnis sowohl der Wachstumsprozesse als auch der Auswirkungen von Oberflächendefekten auf die Eigenschaften des Elektronentransportes in dünnen Schichten gewonnen werden.

Typische Defekte ultradünner Silberschichten, die bei 120K auf Si(111)-7x7 gedampft wurden, sind Rotationsmosaik, Korngrenzen und atomare Stufen. Durch Tempern bis 200 K wird die Stufendichte verringert. Tempert man bei höheren Temperaturen, so bricht die Silberschicht auf.

Ag wächst auf Ag(111) bei 130 K statistisch, d.h. die vertikale Diffusion über Stufenkanten ist stark behindert. Die Atome können aber weiterhin auf den Terrassen lateral diffundieren. Die mittlere Terrassenlänge $\langle L \rangle$ nimmt mit der Bedeckung monoton ab. Im Bedeckungsbereich von 0.75-3.5Ml folgt die mittlere Terrassenlänge bzw. die Standardabweichung σ der Terrassenlängenverteilung der Bedeckung mit einem Potenzgesetz ($\langle L \rangle \propto \theta^{-2/3}$ und $\sigma \propto \theta^{-2/3}$). Die Terrassenlängenverteilungen $P(L)$ in diesem Bedeckungsbereich können sehr gut durch Gamma-Verteilungen beschrieben werden. Wird die Wachstumstemperatur erhöht, verringert sich die Oberflächenrauigkeit. Die laterale Diffusionsbarriere E_d -ebene konnte direkt quantitativ bestimmt werden (E_d -ebene=0.18eV). Die vertikale Diffusionsbarriere E_d -edge wurde durch Vergleich von Monte-Carlo Simulationen mit den Messungen abgeschätzt, die untere Grenze der Diffusionsbarriere über Stufenkanten liegt bei E_d -edge=0.23 eV.

Die Änderung des spezifischen Widerstands dünner Silberschichten durch das Wachstum von Ag auf Ag(111) bei tiefen Temperaturen bzw. nach Tempern ist auf die jeweilig erzeugte Oberflächenrauigkeit zurückzuführen. Dadurch kann man den Beitrag der diffusen Oberflächenstreuung von den Streuprozessen der Leitungselektronen abtrennen. Das Wachstum von Ag auf Ag(111) bei tiefen Temperaturen erzeugt eine sehr raue Oberfläche, so daß der spezifische Widerstand der Schicht stark ansteigt. Wird eine bei tiefen Temperaturen erzeugte Schicht mit rauher Oberfläche getempert, so heilt sie aus, wodurch sich der spezifische Widerstand der Schicht verringert. In dieser Arbeit wurde die Auswirkung der gemessenen Oberflächenrauigkeit auf die gemessene Leitfähigkeit dieser Schichten detailliert untersucht. Es ist zum ersten Mal seit der Entdeckung des Klassischen- Size-Effektes von Fuchs 1938 gelungen, die Änderung des spezifischen Widerstands, aufgrund der diffusen Oberflächenstreuung der Leitungselektronen an einer rauhen Oberfläche, deren Morphologie mit SPA-LEED quantitativ bestimmt wurde, ohne freie Parameter quantitativ exakt zu beschreiben.



Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Beugung langsamer Elektronen an Oberflächen mit Defekten	4
2.1	Kinematische Beugungstheorie	4
2.2	Beugung von Oberflächen mit verschiedenen Defekten	7
2.2.1	Atomare Stufen	7
2.2.2	Inhomogenitäten	15
2.2.3	Mosaikstruktur	16
3	Epitaktisches Wachstum	18
3.1	Wachstumsmoden	18
3.2	Mikroskopische Beschreibung des epitaktischen Wachstum	19
3.3	Homoepitaktisches Wachstum von Metallen	22
4	Die Oberflächenrauigkeit und die Leitfähigkeit dünner Schichten	24
4.1	Dünne Schichten und Size-Effekte	24
4.2	Die diffuse Oberflächenstreuung einfacher Metallschichten	25
5	Experimenteller Aufbau	30
5.1	Das Vakuumsystem	30
5.2	Der Kristallhalter und die Kühlung	31
5.3	Der Silberverdampfer	32
5.4	Das Augersystem	32
5.5	Das SPA-LEED-System	32
5.6	Präparation der Kristalle	33
6	Ag auf Si(111) bei 120 K	34
6.1	Wachstumsmode	34
6.2	Die vertikale und die laterale Rauigkeit	36

6.2.1	Inhomogenitäten	39
6.2.2	Atomare Stufen auf den Silberschichten	41
6.3	Diskussion	43
7	Ag auf Ag(111)	45
7.1	Herstellung der Basisschicht	46
7.1.1	"Optimale" Bedingung für Herstellung	46
7.1.2	Quantitativ Charakterisierung der Basisschicht	48
7.2	Wachstum von Ag auf Ag(111) bei 130 K	50
7.2.1	Die vertikale Rauigkeit	52
7.2.2	Die laterale Rauigkeit	55
7.3	Die Diffusionsenergien von Ag auf Ag(111)	61
7.3.1	Die laterale Diffusionsbarriere	61
7.3.2	Die vertikale Diffusionsbarriere	63
7.4	Tempern der Ag Schichten	66
7.5	Der Einfluß der Oberflächenrauigkeit auf die Leitfähigkeit dünner Silberschichten	70
8	Diskussion und Ausblick	77
8.1	Diskussion	77
8.2	Ausblick	81
	Literaturverzeichnis	84

Abkürzungsverzeichnis

AES	Auger Electron Spectroscopy
LEED	Low Energy Electron Diffraction
LEEM	Low Energy Electron Microscopy
RHEED	Reflection High Energy Electron Diffraction
SEM	Scanning Electron Microscopy
SPA-LEED	Spot Profile Analysis of LEED
STM	Scanning Tunneling Microscopy
TEM	Transmission Electron Microscopy
UHV	Ultra High Vacuum
a	lateraler Gitterabstand der Oberfläche, $a_{\text{Ag}(111)}=0.289\text{nm}$, $a_{\text{Si}(111)}=0.386\text{nm}$
d	vertikaler Schichtenabstand der Oberfläche, $d_{\text{Ag}(111)}=0.236\text{nm}$
D	Schichtdicke
E	Primärenergie der Elektronen
E_d	Diffusionsbarriere
E_i^*	Bindungsenergie des kritischen Keims
H(h)	Stufenhöhenverteilung
$H(K_{\perp})$	Fouriertransformierte der Stufenhöhenverteilung
G(K)	Gitterfaktor
$G_0(K_{\perp})$	Anteil des Zentralreflexes an der Gesamtintensität
i^*	kritische Keimgröße
k_F	Fermiwellenvektor, $k_F(\text{Ag})=1.19 \times 10^{10}/\text{m}$
K_{\parallel}	Komponente des Streuvektors parallel zur Oberfläche
K_{Hwb}	Halbwertsbreite des Profils
K_{\perp}	Komponente des Streuvektors senkrecht zur Oberfläche
$\langle L \rangle$	mittlere Terrassenlänge (in atomaren Einheiten)
MI	Monolage ($1\text{MI Ag}(111)=1.38 \times 10^{19}\text{Atome}/\text{m}^2$)
N_x	stabile Inseldichte
P(L)	Terrassenlängenverteilung
$P(K_{\parallel})$	Fouriertransformierte der Terrassenlängenverteilung
R	Aufdampftrate
$\langle R \rangle$	mittlerer Inseldurchmesser (in atomaren Einheiten)
S	Streuphase ($S=dK_{\perp}/2\pi$)
T_s	Aufdampftemperatur

Δ	vertikale Rauhtiefe (in atomaren Einheiten)
θ	Bedeckung (stets im Monolagen angegeben)
θ_m	Mosaikwinkel
μ	Freie Oberflächenenergie
ξ	Korrelationslänge (in atomaren Einheiten)
ρ	spezifischer Widerstand
$\rho_{sr}, \Delta\rho$	zusätzlicher spezifischer Widerstand aufgrund diffuser Oberflächenstreuung
σ	Standardabweichung der Terrassenlängenverteilung (in atomaren Einheiten)
$\Phi_{step}(K_{ }, K_{\perp})$	skaliertes Profil der Reflexverbreitung durch atomare Stufen
Ag	Silber
Si	Silizium

Kapitel 1 Einleitung

Ein altes chinesisches Sprichwort sagt: *"Gold ist niemals rein, ein Mensch ist niemals perfekt."* Diese Feststellung gilt auch für die realen Oberflächen von Festkörpern und künstlich hergestellten dünnen Schichten. Da strukturelle Defekte auf Oberflächen und in dünnen Schichten in der Realität unvermeidbar sind und sie die Eigenschaften sowie die ablaufenden Prozesse auf Oberflächen und in dünnen Schichten beeinflussen, ist die Untersuchung von Oberflächendefekten ein wesentlicher Schwerpunkt der heutigen Oberflächenphysik [Henzler 1977, 1982, 1986, Lagally 1988].

Dünne Schichten sind sowohl physikalisch (zur Untersuchung quasi-zweidimensionaler Materie) als auch technologisch (optische Filter, integrierte elektronische Bauteile) von sehr großem Interesse. Deshalb wird das Wachstum solcher Schichten sehr intensiv untersucht. Das Wachstum läuft in verschiedenen Phasen ab: Keimbildung, Inselwachstum etc. Das Wachstum dünner Schicht bzw. die Morphologie der wachsenden Oberfläche bei tiefen Temperaturen ist im wesentlichen durch kinetische Prozesse bestimmt. Wegen der geringeren Beweglichkeit der Atome bei tiefen Temperaturen kann sich niemals eine ideal glatte Schicht aufbauen, so daß die wachsende Oberfläche immer mit Defekten behaftet ist. Vom physikalischen Standpunkt aus sind natürlich folgende Fragen von besonderem Interesse: Wie kann man Oberflächendefekte charakterisieren und messen? Wie wirken sich Oberflächendefekte auf die atomistischen Prozesse während des Wachstums von Oberflächen aus? Welche von Defekten hervorgerufenen Effekte beeinflussen das Wachstum? Wie wirken Oberflächendefekte auf die physikalischen Eigenschaften dünner Schichten, wie z.B. die Leitfähigkeit? Um diese Fragen zu beantworten, benötigt man eine oberflächensensitive Methode, mit der man Oberflächendefekte analysieren kann.

Je nach dem Interesse der Untersuchung werden viele Meßmethoden zur Analyse von Oberflächendefekten verwendet. Mikroskopische Methode wie Lichtmikroskopie, TEM, SEM, STM, AFM, REM, LEEM und FIM liefern ein vergrößertes Bild der Oberfläche oder der Grenzfläche (TEM). Interessiert man sich für Oberflächendefekte auf einer atomaren Skala, braucht man eine Methode, die atomare Abstände auflösen kann. Durch die großen Fortschritte auf dem Gebiet der Tunnelmikroskopie während der vergangenen Jahre ist es gelungen, einzelne Oberflächenatome darzustellen [Köhler 1989]. *"Such images have considerable aesthetic appeal in condensed matter physics: what could be more satisfying than to actually 'see' the arrangement of atoms in a solid"* [Zangwill 1988]. Die zahlreichen

und eindrucksvollen STM-Bilder liefern viele qualitative und lokale Informationen über die atomare Anordnung sowie über strukturelle Defekte auf der Oberflächen, die mit anderen Methoden nicht erreicht werden. Im Gegensatz zu diesen mikroskopischen Methoden mittels der Beugungsmethoden, wie Röntgenbeugung, RHEED und LEED, über große Bereiche und liefern quantitative Informationen über die charakteristische Verteilung von Oberflächendefekten.

Im Vergleich zu anderen Beugungsmethoden hat LEED einige besondere Vorteile, die im folgenden aufgeführt werden sollen. Gegenüber der Röntgenbeugung zeichnet sich LEED aufgrund der beschränkten Eindringtiefe der Elektronen durch eine wesentlich höhere Oberflächenempfindlichkeit aus. Gegenüber RHEED hat LEED den Vorteil einer erheblich einfacheren Auswertung der Meßergebnisse, da bei RHEED aufgrund der hohen Energie der Elektronen dynamische Streueffekte i.A. nicht vernachlässigt werden dürfen [Joyce 1986].

LEED wird seit langem für den Nachweis periodischer Strukturen eingesetzt. Seit einigen Jahren wird mit LEED auch die Analyse von Oberflächendefekten durchgeführt. Oberflächendefekte führen zu signifikanten Verbreiterungen der LEED-Reflexe. Die Analyse der Reflexprofile (SPA-LEED = Spot Profile Analysis - Low Energy Electron Diffraction) ermöglicht Rückschlüsse auf die Art und die Verteilung der auftretenden Defekte [Henzler 1982, 1984]. Dazu wurden vor einigen Jahren ein hochauflösendes LEED System [Scheithauer 1986, Schmidt 1990] und entsprechende Theorien [Lu 1982, Lent 1984, Wollschläger 1989, 1990, 1993] entwickelt, mit denen man sowohl die laterale als auch die vertikale Rauigkeit quantitativ bestimmen und verschiedenartige Defekte von einander gut trennen kann. Mit dieser Methode hat man erfolgreich Ergebnisse über die Präparation und das Verhalten verschiedener Systeme gewonnen, wie z.B. über epitaktisches Wachstum [He 1992, Horn 1987, 1993, Falta 1991, Meyer 1990, Saloner 1985, Schmidt 1993, Wollschläger 1991, Zou 1991], über kritische Phasenübergänge in chemisorbierten Systemen [Wang 1985, Pfnür 1990], über das kinetische Verhalten von Adsorbaten [Zou 1988, Tringides 1987, Busch 1990], über katalytische Systeme [Falta 1989], über den Rauigkeits-Phasenübergang [Wollschläger 1991], über das zweidimensionale Schmelzen einatomarer Adsorbatschichten [Meyer 1988, Müller 1992, Wollschläger 1991].

Das Wachstum von Ag auf Ag(111) wurde von Rosenfeld et.al. mit Helium-Streuung [Rosenfeld 1993] und Vegt et.al. mit Röntgenbeugung [Vegt 1992] untersucht. Da bei diesen Untersuchungen nur die Oszillation der Intensität während des Aufdampfens der Schichten untersucht wurde, konnte hier auch nur eine grobe Charakterisierung der Oberflächenmorphologie der Ag-Schichten gegeben werden. Um die Morphologie, insbesondere die laterale und vertikale Rauigkeit der Schichten, genauer zu analysieren, sind

Untersuchungen bei vielen Streubedingungen notwendig. Diese Informationen sollen in dieser Arbeit bereitgestellt werden.

Ist die Schichtdicke nicht deutlich größer als die mittlere freie Weglänge der Leitungselektronen, wird die Leitfähigkeit wegen der diffusen Oberflächenstreuung der Leitungselektronen stark beeinflußt. Obwohl dieses Phänomen schon im Jahre 1938 von Fuchs [Fuchs 1938] entdeckt wurde, ist diese Frage bis heute ein hochinteressantes Thema der Dünnenschichtphysik geblieben. Zahlreiche Modelle wurden entwickelt, die den Einfluß der Oberflächenrauigkeit auf die Leitfähigkeit beschreiben. Aber bis heute ist es noch nicht gelungen, diese Abhängigkeit quantitativ zu erfassen. In dieser Arbeit wird erstmals gezeigt, wie man durch die Kombination von SPA-LEED und Leitfähigkeitsmessungen dem tieferen Verständnis dieser Abhängigkeit qualitativ und quantitativ ein großes Stück näher kommen kann.

Kapitel 2 Beugung langsamer Elektronen an Oberflächen mit Defekten

2.1 Kinematische Beugungstheorie

Um die Strukturen von Kristalloberflächen bestimmen zu können, benötigt man oberflächensensitive Methoden mit atomarer Auflösung. Die Beugung langsamer Elektronen (LEED) stellt eine solche Meßmethode dar. Bei Energien von 20-500 eV ist die Eindringtiefe der Elektronen von typischerweise 0.3-1 nm [Seah 1979], wodurch die hohe Oberflächenempfindlichkeit gewährleistet ist. Da außerdem die de-Broglie-Wellenlänge zwischen 0.05-0.3 nm liegt, kann man die Untersuchungen mit atomarer Auflösung durchführen. Nutzt man diese Methode, um nicht nur die Symmetrie, sondern auch Defekte der Oberfläche zu untersuchen, ist es notwendig, das Beugungsbild genau zu analysieren. Dieses läßt sich nur im Rahmen der dynamischen LEED Theorie beschreiben, die die Vielfachstreuung der Elektronen vollständig berücksichtigt. Für die Oberflächendefektanalyse sind solche Rechnungen aber heute noch nicht möglich [Henzler 1988]. Deshalb benutzt man für die Defektanalyse die kinematische Beugungstheorie, die i.a. eine gute Beschreibung für das Profil des gebeugten Elektronenstrahls liefert.

Die Grundlage der kinematischen LEED Theorie bildet die Fraunhofersche Beugung, bei der das Beugungsbild durch die Fouriertransformation des realen Raums beschrieben wird. Im Rahmen der Fouriertransformation ist das 'Volumen' im Fourierraum umgekehrt proportional zu dem 'Volumen' im realen Raum, d.h. daß das LEED-Experiment empfindlicher auf 'kleine' Defekte als auf 'große' Defekte ist. So wird z.B. das Beugungsprofil von N regelmäßig angeordneten Atomen durch

$$I(K) = \frac{\sin^2\left(\frac{NK}{2}\right)}{\sin^2\left(\frac{K}{2}\right)} \quad (2.1)$$

beschrieben. Die Halbwertsbreite des Profiles ist proportional zu $\frac{2\pi}{N}$, d.h. je größer N ist, desto schmäler ist das Profil. Daher kann man die mittlere Größe von Inseln oder Terrassen sofort aus der Reflexprofilbreite erschließen.

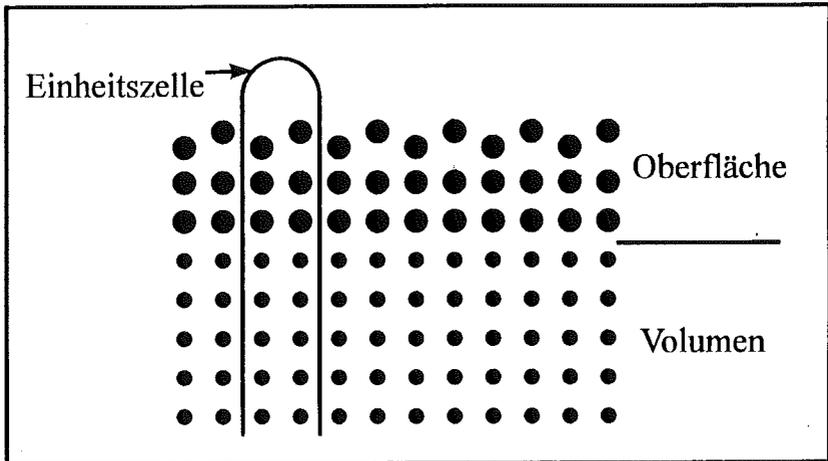


Abb.2.1. Beispiele für Einheitszellen, wie sie in der kinematischen Beugungstheorie benutzt werden. (aus [Henzler 1984])

In der kinematischen Beugungstheorie wird die Oberfläche in Einheitszellen unterteilt (Abb.2.1.). Die Position der n -ten Einheitszelle sei \mathbf{R}_n . Ihre Streuamplitude wird mit $f_n(\mathbf{K})$ bezeichnet. Die Amplitude der gestreuten Welle ist dann

$$A(\mathbf{K}) = \sum_n f_n \exp\{i\mathbf{K}\mathbf{R}_n\} \quad (2.2)$$

wobei $\mathbf{K} = \mathbf{K}_f - \mathbf{K}_i$ den Streuvektor bezeichnet.

In einem Beugungsexperiment wird nicht die Amplitude der gebeugten Welle, sondern ihre Intensität $I(\mathbf{K})$ gemessen.

$$I(\mathbf{K}) = |A(\mathbf{K})|^2 \quad (2.3)$$

$$= \sum_n \sum_m f_{n+m} f_m^* \exp\{i\mathbf{K}(\mathbf{R}_{n+m} - \mathbf{R}_m)\}$$

Zuzätzlich nimmt man in der kinematischen Theorie für eine homogene Oberfläche an, daß die Streufaktoren aller Einheitszellen gleich sind: $f_n = f_m = f(\mathbf{K})$. Unter dieser Annahme kann man die Gleichung (2.2.) umschreiben in:

$$I(\mathbf{K}) = F(\mathbf{K}) \cdot G(\mathbf{K}) \quad (2.3')$$

mit dem Formfaktor

$$F(\mathbf{K}) = |f(\mathbf{K})|^2 \quad (2.4)$$

und dem Gitterfaktor

$$G(\mathbf{K}) = \sum_n \sum_m \exp\{i\mathbf{K}(\mathbf{R}_{n+m} - \mathbf{R}_n)\} \quad (2.5)$$

Der erste Term (2.4) (dynamischer Formfaktor) beschreibt im wesentlichen die Gesamtintensität des gebeugten Elektronenstrahls. Sie variiert i.a. nur schwach mit der Parallelkomponente K_{\parallel} des Streuvektors. Daher wird das Profil des gebeugten Elektronenstrahls durch den zweiten Term (2.5) (Gitterfaktor) dominiert. Er ist nur durch die Anordnung der Einheitszellen beeinflusst. Durch Analyse dieses Termes kann man die Informationen über die Anordnung der Atome an der Oberfläche gewinnen. (Oberflächendefektanalyse mit Beugung langsamer Elektronen = SPA-LEED)

Geht man von einer defektfreien Oberfläche aus, so liegen sämtliche Atome auf einem Gitter, das durch die Einheitsvektoren \mathbf{a}_x und \mathbf{a}_y , aufgespannt wird. Der Einfachheit halber nehmen wir im folgenden ein quadratisches Grundgitter an ($|\mathbf{a}_x| = |\mathbf{a}_y| = a$), so daß die Position des n -ten Atoms durch $\mathbf{a}n$ gegeben ist. Strukturelle Defekte führen zu einer Abweichung \mathbf{u}_n von dieser Position. Der Gitterfaktor wird dann durch

$$G(\mathbf{K}) = \sum_n \langle \exp\{i\mathbf{K}(\mathbf{u}_{n+m} - \mathbf{u}_n)\} \rangle_m \exp\{i\mathbf{K}\mathbf{a}n\} \quad (2.6)$$

beschrieben.

Die Funktion in den Mittelungsklamern in Gl(2.6) bezeichnet man als Phasenkorrelation

$$\varphi(\mathbf{n}, \mathbf{K}) = \langle \exp[i\mathbf{K}(\mathbf{u}_{n+m} - \mathbf{u}_n)] \rangle_m = \int C(\mathbf{n}, \mathbf{u}) \exp(i\mathbf{K}\mathbf{u}) d\mathbf{u} \quad (2.7)$$

Hier bezeichnet $C(\mathbf{n}, \mathbf{u})$ die Paarkorrelation, die die Wahrscheinlichkeit angibt, daß zwei Atome, deren Distanz im idealen Gitter $a\mathbf{n}$ ist, durch Störungen des Gitters von dieser Distanz um den Vektor \mathbf{u} abweichen.

Für eine defektfreie Oberfläche, bei der die Phasenkorrelation identisch 1 ist, ergibt sich der Gitterfaktor:

$$G(\mathbf{K}) = \sum_{\mathbf{G}_n} \delta(\mathbf{K}_n - \mathbf{G}_n) \quad (2.8)$$

mit den reziproken Gittervektor

$$\mathbf{G}_n = \frac{2\pi}{a} (G_x, G_y)$$

d.h. daß eine ideal geordnete, defektfreie Oberfläche im Beugungsbild Reflexe mit δ -funktionsförmigen Profilen liefert.

2.2. Beugung von Oberflächen mit verschiedenen Defekten

2.2.1 Atomare Stufen

Atomare Stufen sind in der Realität unvermeidbar und können durch viele Oberflächenprozesse, wie z.B. bei epitaktischem Wachstum oder thermischer Behandlung, erzeugt werden. Sie können die Eigenschaften der Oberflächen (z.B. die Leitfähigkeit dünner Schichten) und viele Prozesse auf der Oberfläche (z.B. das Wachstum) beeinflussen. Daher werden atomare Stufen besonders intensiv in der Physik der Oberfläche untersucht [Henzler 1977, 1982, Lagaly 1989, Lu 1982, Wollschläger 1990, Lent 1985].

Die Morphologie atomar gestufter Oberflächen kann man durch zwei Parameter leicht charakterisieren. Zum einen ist die vertikale Rauigkeit durch die Schichtenverteilung gekennzeichnet. Sie kann durch die Rauigkeit Δ (Standardabweichung der Schichtenverteilung) beschrieben werden. Zum anderen bestimmt die Terrassenlängenverteilung die laterale Rauigkeit. Sie kann pauschal durch die Stufendichte oder die mittlere Terrassenlänge $\langle L \rangle$ charakterisiert werden. Durch die Verwendung hochauflösender Instrumente [Scheithauer 1986, Schmidt 1990] und die Analyse der Reflexprofile [Horn 1987, Wollschläger 1990, 1991] kann die Rauigkeit der Oberfläche in Hinblick auf beide Parameter sehr genau vermessen werden.

Im folgenden wird angenommen, daß sich alle Atome auf einem gemeinsamen lateralen Grundgitter befinden. Atomare Stufen bewirken, daß einige Atome ihre vertikale Position um ein Vielfaches h_n des Schichtenabstandes d ändern können, d.h. die Abweichungen u_n in Gl.(2.6) sind

$$u_n = dh_n e_z \quad (2.9)$$

Hier bezeichnet e_z den Gittervektor senkrecht zur Oberfläche. Für gestufte Oberflächen ergibt sich der Gitterfaktor

$$G(K) = \sum_n \varphi(K, n) \exp(i a K_n n) \quad (2.10)$$

mit

$$\varphi(K, n) = \langle \exp(i K_1 d (h_{n+m} - h_n)) \rangle = \sum_h C(n, h) \exp(i d K_1 h) \quad (2.11)$$

Die Paarkorrelation $C(n, h)$ bezeichnet in diesem Fall die Wahrscheinlichkeit, daß zwei Atome, die n Plätze lateral voneinander entfernt sind, eine Höhendifferenz von h besitzen. Man kann bei einer endlichen Anzahl von Schichten diese Paarkorrelation in Anteile

$$C(n, h \neq 0) = C_h (1 - \vartheta_h(n)) \quad (2.12)$$

mit

$$C_h = \sum_l p_{l+h} p_l \quad (2.13)$$

separieren [Lent 1985], wobei p_l der Anteil der sichtbaren Oberflächenatome in der l -ten Schicht ist. Da die Paarkorrelation $C(n, h \neq 0)$ die beiden Grenzwerte $C(0, h \neq 0) = 0$ und $C(n \rightarrow \infty, h \neq 0) = C_h$ annimmt, lauten die entsprechenden Grenzwerte für die in Gl. (2.12) eingeführten Funktionen ϑ_h :

$$\vartheta_h(n \rightarrow \infty) = 0 \quad \text{und} \quad \vartheta_h(0) = 1 \quad (2.14)$$

Aus der für alle Abstände n geltende Normierung

$$\sum_h C(n, h) = 1$$

erhält man die in Gl.(2.12) nicht berücksichtigte partielle Paarkorrelation $C(n, h=0)$.

Aus der so gewonnen Paarkorrelation ergibt sich der Gitterfaktor:

$$G(K) = G_0(K_{\perp}) \delta(K_{\parallel}) + (1 - G_0(K_{\perp})) \phi_{\text{step}}(K_{\perp}, K_{\parallel}) \quad (2.15)$$

mit

$$G_0(K_{\perp}) = \sum_h C_h \cos(dh K_{\perp}) \quad (2.16)$$

und

$$(1 - G_0(K_{\perp})) \phi_{\text{step}}(K_{\perp}, K_{\parallel}) = \sum_{h \neq 0} C_h [1 - \cos(dh K_{\perp})] \phi_h(K_{\parallel}) \quad (2.17)$$

wobei $\phi_h(K_{\parallel})$ die Fouriertransformierte der $\vartheta_h(n)$ ist.

Gl.(2.15) weist deutlich darauf hin, daß das Profil aus zwei Teilen besteht, einem δ -förmigen

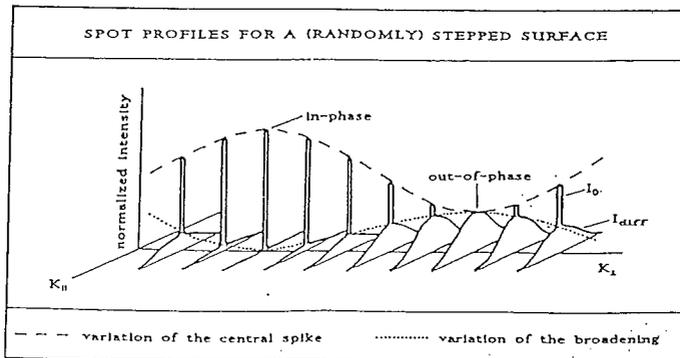


Abb.2.2 Typische Abhängigkeit des Profils von der Streubedingungen bei einer gestuften Oberfläche (aus [Wollschläger 1989])

Zentralreflex, wie er bei der Beugung an einer idealen Oberfläche auftritt, und einer verbreiterten diffusen Schulter, die durch Interferenz der Elektronen an unterschiedlichen Terrassen hervorgerufen wird. Das Verhältnis beider Anteile am Gesamtprofil hängt von der Streuphase ab.

2.2.1.1 Die vertikale Rauigkeit

Aus der Analyse der Variation des Zentralreflexes mit der Streuphase $S = \frac{d K_{\perp}}{2\pi}$ ist es möglich, die vertikale Rauigkeit zu bestimmen. Aus Gl. (2.16) kann man sehen, daß der Anteil des Zentralreflexes am Gesamtprofil nur von der Streuphase abhängt und bei *In-Phase* ($S=0,1,2,\dots$, konstruktive Interferenz) den maximalen Wert ($G_{\max}=1$) annimmt.

In der Nähe der In-Phase Bedingung entwickelt man den Gitterfaktor, für $S=m+s$, $s \ll 1$ (m ganzzahlig)

$$\begin{aligned} G_0(S=m+s)_{\text{In-Phase}} &= G_0(m+s) = G_0(m) + s \frac{dG_0}{ds} + \frac{s^2}{2} \frac{d^2G_0}{ds^2} \\ &= 1 + s \frac{dG_0}{ds} + \frac{s^2}{2} \frac{d^2G_0}{ds^2} \end{aligned} \quad (2.18)$$

Aus Gl.(2.16) ergibt die äquivalente Entwicklung

$$G_0(K_{\perp}) = \sum_h C_h \cos(dh K_{\perp}) = \sum_h C_h \left(1 - \frac{1}{2} (2\pi h s)^2\right) \quad (2.19)$$

Da $\sum_h C_h = 1$ und $\sum_{h>0} C_h h^2 = \Delta^2$ ist, ergibt der Vergleich von Gl.(2.18) mit Gl.(2.19).

$$\Delta^2 = -\frac{1}{2} \frac{1}{(2\pi)^2} \frac{d^2G_0}{ds^2} \quad (2.20)$$

D.h., die Rauhtiefe Δ ist direkt aus der Krümmung der Variation des Zentralreflexes $G_0(S)$ bei der In-Phase Bedingung abzulesen. Hieraus kann man leicht auch die vertikale Rauigkeit der Oberflächen analysieren, die stark vertikal aufgeraut sind. Bei diesen Oberflächen sind viele Schichten an der Oberfläche sichtbar, wodurch eine Schichtverteilungsanalyse oft nur schwer möglich ist.

2.2.1.2 Die laterale Rauigkeit

Die diffuse Schulter in Gl.(2.15) enthält die Informationen über die laterale Rauigkeit an der Oberfläche. Die detaillierte Form der Schulter hängt von der lateralen Korrelation oder der Terrassenlängenverteilung ab.

Im einfachsten Fall des Zwei-Schichten-Modells befindet sich auf einer Substratfläche nur eine einatomar dicke Schicht (Abb. 2.3). In der Paarkorrelation in Gl.(2.20) treten dann nur noch die Höhendifferenzen $h=0, \pm 1$ auf. Damit kann man die Paarkorrelation vollständig durch die Bedeckung θ der Adschicht und die laterale Abhängigkeit $\vartheta_h(\mathbf{n}) = \vartheta(\mathbf{n})$ beschreiben, so daß die Form der diffusen Schulter unabhängig von der Streuphase K_{\perp} ist:

$$\Phi_{\text{step}}(K_{\perp}, K_{\parallel}) = \Phi_{\text{step}}(K_{\parallel}) = \sum_{\mathbf{n}} \vartheta(\mathbf{n}) \exp(i \mathbf{n} \cdot \mathbf{K}_{\parallel}) \quad (2.21)$$

In Gl.(2.21) sind sowohl $\vartheta(\mathbf{n})$ als auch die diffuse Schulter $\Phi_{\text{step}}(K_{\parallel})$ von den Terrassenlängenverteilungen $P_A(L)$ der unbedeckten Substratschicht und $P_B(L)$ der Adsorbatschicht abhängig. Daher kann man aus der Analyse der diffusen Schulter die laterale Rauigkeit der Oberfläche bestimmen.

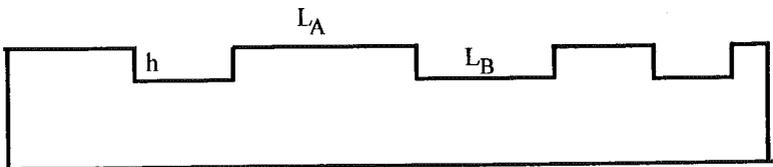


Abb. 2.3 Schematische Darstellung des Zwei-Schichten Modells.

Ein einfaches eindimensionales Zwei-Schichten Modell behandelt die Oberfläche als eine markovsche Kette [Lent 1985, Welbery 1985]. Dieses Modell ist korrekt für Oberflächen ohne Wechselwirkung zwischen atomaren Stufen. Für solche Oberflächen ist die Terrassenlängenverteilung geometrisch.

$$P_A(L) \propto \exp(-L/\langle L_A \rangle) \quad (2.22)$$

$$P_B(L) \propto \exp(-L/\langle L_B \rangle) \quad (2.23)$$

Hieraus ergibt sich die Lorentzform der diffusen Schilter [Lenz 1985, Wollschläger 1991]:

$$\Phi_{\text{step}}(K_{\parallel}) = \frac{\kappa^2}{\kappa^2 + K_{\parallel}^2} \quad (2.24)$$

mit

$$\kappa = 1/\langle aL_A \rangle + 1/\langle aL_B \rangle \quad (2.25)$$

Damit kann man die mittlere Terrassenlänge von Substrat- und Adsorbatschicht direkt aus der auf den Abstand zum nächsten Reflex normierten Halbwertsbreite der Schulter bestimmen:

$$K_{\text{Hwb}}/K_{10} = 2\kappa/2\pi = (1/\langle aL_A \rangle + 1/\langle aL_B \rangle)/\pi \quad (2.26)$$

wenn man außerdem die Adsorbatschichtbedeckung θ kennt, da $\langle L_A \rangle/\langle L_B \rangle = (1-\theta)/\theta$ ist. Die läßt sich aber, wie in §2.2.1.1 beschrieben wurde, aus der Variation des Zentralreflexes bestimmen.

Dieses Modell ist in vielen Fällen eine sehr gute Näherung, manchmal aber zu einfach. Die lorentzförmige Schulter beruht auf der Annahme einer geometrischen Terrassenlängenverteilung. Wenn die Terrassenlängenverteilung ein Maximum in der Nähe der mittleren Terrassenlänge $\langle L \rangle$ aufweist, verhält sich die Schulter anders. Eine Verteilung, bei der dieses der Fall ist, ist die Gammaverteilung:

$$P(L) = \frac{\lambda^\beta}{\Gamma(\beta)} L^{\beta-1} \exp(-\gamma L) \quad (2.27)$$

Hier ist $\Gamma(\beta)$ die Gammafunktion. Die mittlere Terrassenlänge ist $\langle L \rangle = \frac{\beta}{\lambda}$, die Varianz bzw. Standardabweichung ($\sigma^2 = \langle L^2 \rangle - \langle L \rangle^2$) ist

$$\sigma = \frac{\langle L \rangle}{\sqrt{\beta}}$$

Man kann zeigen [Wollschläger 1993], daß bei einer gepeakten Terrassenlängenverteilung, wie sie z.B. durch Gl.(2.27) für $\beta > 1$ gegeben ist, die Schulter in zwei lorentzförmige lateral verschobene Anteile aufspaltet:

$$\phi_{\text{step}}(K_{\parallel}) \propto \{(K_{\text{Hwb}})^2 + (K_{\parallel} - K_r)^2\}^{-1} + \{(K_{\text{Hwb}})^2 + (K_{\parallel} + K_r)^2\}^{-1} \quad (2.28)$$

Die Halbwertsbreite und die Position beider Anteile läßt sich auf die mittlere Terrassenlänge und die skalierte Standardabweichung

$$\eta = \frac{\sigma}{\langle L \rangle} = \beta^{-1/2}$$

zurückführen:

$$K_{\text{Hwb}} \cdot \langle aL \rangle = \pi^2 \cdot (\sigma / \langle L \rangle)^2 = \pi^2 \eta^2 \quad (2.29)$$

$$K_r \cdot \langle aL \rangle = \pi \left\{ 1 - \frac{\pi}{2} \cdot (\sigma / \langle L \rangle)^4 \right\} = \pi \left\{ 1 - \frac{\pi^2}{2} \eta^4 \right\} \quad (2.30)$$

Daher kann man aus dem Verhältnis $\eta' = 2K_r / K_{\text{Hwb}}$ von der Aufspaltung zur Halbwertsbreite der Lorentzfunktion die skalierte Standardabweichung:

$$\eta' = \frac{\eta^2}{2\pi} + \left\{ \eta^2 / 2\pi + 2 / \pi^2 \right\}^{1/2} \quad (2.31)$$

bestimmen. Aus der kann man zusammen mit der Halbwertsbreite die mittlere Terrassenlänge

$$\langle aL \rangle = \eta^2 \pi^2 / K_{\text{Hwb}} \quad (2.32)$$

ermitteln.

Für $\sigma=0$ ergibt sich auf der Oberfläche eine absolut regelmäßige Struktur der Länge $2\langle L \rangle$. Sie entspricht einer Überstruktur mit den Satellitenreflex bei $K_r = \pm \pi / \langle L \rangle$. Für $\sigma = \langle L \rangle$ ($\beta=1$ in Gl.(2.27)) erhält man den Fall einer geometrischen Verteilung und die Schulter ist durch ein einfaches lorentzförmiges Profil gegeben (Gl(2.24)). Im Wertebereich $\eta = \sigma / \langle L \rangle \rightarrow 0$ spaltet der Reflex auf, beide Anteile verändern ihre Position von $K_r = 0$ gegen die Werte $K_r = \pm \pi / \langle L \rangle$ und werden zunehmend schmaler.

Im Unterschied zum Zwei-Schichten-Modell, bei dem nur die Intensität der Schulter von der Streuphase abhängt, variiert beim Mehr-Schichten-Modell auch die Form der Schulter periodisch mit der Streuphase. Sind Stufenhöhen- und Terrassenlängenverteilung nicht korreliert, so ergibt sich das Profil [Wollschläger 1990, Pukite 1985].

$$\Phi_{\text{step}}(K_{\perp}, K_{\parallel}) = \frac{1}{2(1 - \cos(a K_{\parallel}))} \left\{ \frac{(1 - H(K_{\perp}))(1 - P(K_{\parallel}))}{1 - H(K_{\perp})P(K_{\parallel})} + \text{c.c.} \right\} \quad (2.33)$$

Wobei $H(K_{\perp})$ und $P(K_{\parallel})$ die Fouriertransformierte der Stufenhöhen- bzw. Terrassenlängenverteilung bezeichnen:

$$H(K_{\perp}) = \sum_h H(h) \exp(i h K_{\perp}) \quad (2.34)$$

$$P(K_{\parallel}) = \sum_L P(L) \exp(i a L K_{\parallel}) \quad (2.35)$$

Die Stufenhöhenverteilung koppelt an die Streuphase K_{\perp} , die Terrassenlängenverteilung dagegen an K_{\parallel} .

Abschließend soll auch hier das Beispiel einer geometrischen Terrassenlängenverteilung

$$P(L) \propto \exp(-L/\langle L \rangle) \quad (2.36)$$

angewendet werden. Hat die Oberfläche keinen makroskopischen Neigungswinkel gegen die Horizontale, so ist die Höhenverteilung symmetrisch, wodurch ihre Fouriertransformierte reell ist. Das Profil wird daher durch eine Lorentzfunktion beschrieben:

$$\Phi_{\text{step}}(K_{\parallel}) \propto [(1 - H(K_{\perp}))^2 + \langle L \rangle^2 (a K_{\parallel})^2]^{-1} \quad (2.37)$$

Aus Gl.(2.41) ergibt sich, daß man aus einer Fourieranalyse der skalierten Halbwertsbreite

$$\frac{a K_{\text{t}wb}}{2\pi} = \frac{1 - H(K_{\perp})}{\pi \langle L \rangle} \quad (2.38)$$

sowohl die mittlere Terrassenlänge $\langle L \rangle$ als auch die Höhenverteilung $H(h)$ bestimmen kann.

2.2.2 Inhomogenitäten

Neben den strukturellen Defekten, wie sie im letzten Abschnitt behandelt wurden, gibt es eine weitere Sorte von Defekten, die mit Elektronenbeugung gut untersucht werden kann: Inhomogenitäten. Typische Beispiele für Inhomogenitäten einer Oberfläche sind heteroepitaktische Systeme. Während bei gestuften Oberflächen die Streuamplitude aller Atome gleich ist und die Reflexe nur aufgrund der unterschiedlichen vertikalen Position der Atome verbreitert sind, liegen bei Inhomogenitäten Oberflächen unterschiedliche Streuamplitude vor.

Um die Diskussion zu vereinfachen, beschränkt man sich auf ein eindimensionales heteroepitaktisches Zwei-Streuer-Modell (Abb. 2.3). Die Streuamplitude der Adsorbatatome sei f_A , die der Substratome sei f_B . Die beiden Streuamplituden sind komplexe Zahlen und hängen von der Streubedingung K_{\perp} ab. Ihr Verhältnis ist zum einen durch das Verhältnis der Streuamplitudenbeträge $\varepsilon(K_{\perp})$ zum anderen durch die Phasendifferenz $\Phi(K_{\perp})$ gemäß

$$\frac{f_B}{f_A} = \varepsilon(K_{\perp}) \exp[i\Phi(K_{\perp})] \quad (2.39)$$

gegeben.

An der Braggbedingung, d.h. $aK_{\parallel} = 2\pi m$, ist, wie Gl. (2.3) zeigt, die Peak-Intensität durch [Henzler 1990]:

$$\begin{aligned} I_{\text{peak}} &= \left| \sum_n \sum_m f_{n+m} f_m^* \exp\{i\mathbf{K}(\mathbf{R}_{n+m} - \mathbf{R}_m)\} \right|_{K_{\parallel}=0} \\ &= \sum_n \sum_m f_{n+m} f_m^* \exp\{iK_{\perp}(\mathbf{h}_{n+m} - \mathbf{h}_m)\} \\ &= |\langle f \rangle|^2 \end{aligned} \quad (2.40)$$

gegeben, wobei die mittlere Streuamplitude $\langle f \rangle$ durch

$$\langle f \rangle = \exp\{i d K_{\perp}\} f_A (1 - \theta) + f_B \theta = f_A \{ (1 - \theta) + \theta \varepsilon \exp[i\Phi - i d K_{\perp}] \} \quad (2.41)$$

definiert ist. Bei der In-Phase Bedingung ($dK_{\perp} = 2m\pi$, $m=1, 2, \dots$) hat die unterschiedlich vertikale Position von Substrat- und Adatomen keinen Einfluß auf die Peak-Intensität. Sie läßt sich aus

$$I_{\text{peak}} = |f_A|^2 \{ (1-\theta)^2 + 2\epsilon\theta(1-\theta)\cos(\Phi) + (\theta\epsilon)^2 \} \quad (2.40)$$

beschreiben. Die Gesamtintensität (auf die 2D-Brillouin Zone integriert) beträgt:

$$I_{\text{int.}} = (1-\theta)|f_A|^2 + \theta|f_B|^2 = |f_A|^2 \{ (1-\theta) + \theta\epsilon \} \quad (2.42)$$

Die Gl.(2.40) - Gl. (2.42) zeigen, daß i.a. bei der In-Phase Bedingung Peak-Intensität und Gesamtintensität nicht identisch sind. Daher muß der Reflex noch eine Schulter, die auf Inhomogenitäten zurückzuführen ist, aufweisen [Wollschläger 1989, 1990]. Hierbei werden als Inhomogenitäten nicht nur unterschiedliche Elemente (Adsorbate) gezählt, sondern alle Spezies (z.B. auch Defekte), die andere Streuamplituden als das Substrat besitzen.

2.2.3 Mosaikstruktur

Eine andere Abweichung von der Idealoberfläche stellen Mosaikdarstellungen dar. Hierbei ist die Unterlage selbst nur in Teilbereichen fehlerfrei und Nachbarbereiche gegeneinander um Bruchteile eines Grades verkippt (Abb. 2.4). Der Gesamtkristall setzt sich also mosaikartig aus fast gleich orientierten Bereichen zusammen, wobei jeder Bereich über viele Atomabstände fehlerfrei ist. Das reziproke Gitter ist rechts in Abb. 2.4 dargestellt, wobei parallele Stangen jeweils zum gleichen Kristallit gehören. Man beobachtet also mit steigendem K_{\perp} eine monotone Verbreiterung der Reflexprofile, die proportional zur Standardabweichung θ_m der Mosaikwinkelverteilung ist:

$$K_{\text{Hwb}} \propto \theta_m K_{\perp} \quad (2.43)$$

Sind auf den Mosaiken zusätzlich atomare Stufen vorhanden, so überlagert die charakteristische Verbreiterung der Reflexprofile durch atomare Stufen (siehe §2.2.1) die durch Mosaik hervorgerufene Verbreiterung. Jedoch kann man die Mosaikwinkelverteilung sehr präzise aus den bei In-Phase Bedingungen gemessenen Reflexverbreiterungen bestimmen, da bei dieser Streuphase die Profile nicht durch atomare Stufen beeinflusst werden.

Außer atomaren Stufen, Inhomogenitäten und Mosaiken, die in diesem Kapitel diskutiert wurden, gibt es auf realen Oberflächen noch viele weitere Defektarten, wie z.B. Facetten, Punktdefekte, laterale und vertikale Verrückungen, Gitterverzerrungen usw., die mit LEED quantitativ bestimmt werden können [Wollschläger 1990, Falta 1991, Horn 1993, Yang 1992, Müller 1992]. Auf sie soll hier nicht weiter eingegangen werden, da sie bei dem in dieser Arbeit studierten System Ag/Si(111) und Ag/Ag(111) eine untergeordnete Rolle spielen.

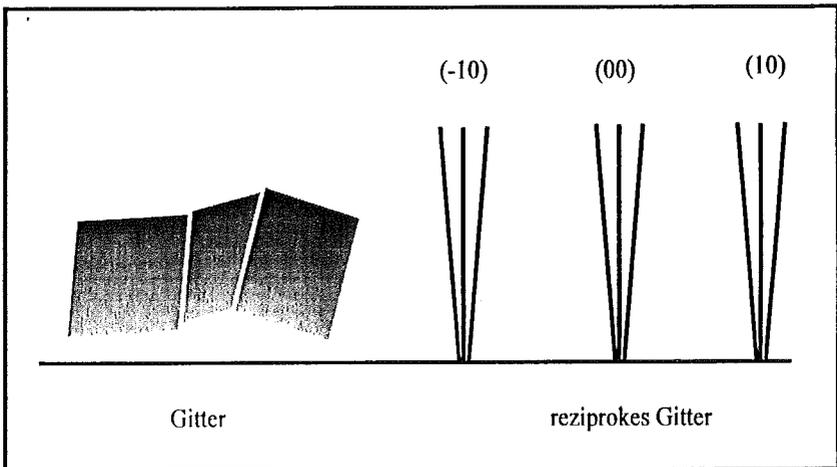


Abb. 2.4 Schematische Darstellung des Ortsraums und des reziproken Raums einer Mosaikstruktur. (aus [Henzler 1991])

Kapitel 3 Epitaktisches Wachstum

3.1 Wachstumsmoden

Epitaktisches Wachstum ist ein Verfahren der Kristallisation. Die Kristallisation ist ein Phasenübergang 1. Ordnung, d.h. die Energie des ganzen Systems ändert sich. Daher gibt es beim Abscheiden des epitaktischen Materials eine Keimbildungsbarriere. Dieser Effekt ähnelt der Überhitzung oder Unterkühlung einer Flüssigkeit. Berücksichtigt man allein die Änderung der Freien Energie des Systems, so unterscheidet man für das heteroepitaktische Wachstum im wesentlichen drei Wachstumsarten [Bauer 1958, 1982, Venables 1984]:

Dreidimensionales Inselnwachstum (Volmer-Weber-Mode):

Das aufgedampfte Material kondensiert in dreidimensionalen Inseln. Die Inseln wachsen sowohl lateral als auch vertikal zum Substrat.

Schichtwachstum (Frank-van der Merwe-Mode):

Das aufgedampfte Material kondensiert in zweidimensionalen Inseln, die nur lateral wachsen. Auf diesen können sich jedoch weitere Inseln bilden (Vielschichtwachstum). Insgesamt bleibt jedoch eine starke Tendenz zum zweidimensionalen Wachstum.

Stranski-Krastanow-Mode:

Dieser Mode ist eine Mischung der beiden anderen Moden. Zunächst wächst das aufgedampfte Material schichtweise, bis es nach einigen Schichten zur Ausbildung von dreidimensionalen Inseln kommt.

Der Wachstumsmode wird durch den Vergleich der Freien Oberflächenenergie des Substrats μ_s , der Freien Grenzflächenenergie μ_i und der Freien Oberflächenenergie der aufwachsenden Schicht μ_a bestimmt:

$$\Delta\mu = \mu_a + \mu_i - \mu_s \quad (3.1)$$

Für $\Delta\mu > 0$ ergibt sich das 3D-Inselwachstum und für $\Delta\mu < 0$ das Schichtwachstum. Wechselt die Änderung der Freien Energie nach einigen gewachsenen Schichten ihr Vorzeichen, so kommt es zum Stranski-Krastanow Wachstum.

Diese drei Wachstumsmoden treten nur im thermodynamischen Gleichgewicht auf. Die Keimbildungsbarriere bewirkt, daß oft wachstumskinetische Effekte die Morphologie der wachsenden Schicht dominieren.

3.2 Mikroskopische Beschreibung des epitaktischen Wachstums

Wenn ein Kristall nur schnell genug wachsen kann, bleibt er oft in einem langlebigen metastabilen Zustand, weil die Beweglichkeit der Atome im Kristallverbund sehr gering ist. Daher kann man die Kristalleigenschaften nicht durch sein thermodynamisches Gleichgewicht beschreiben, sondern muß die verschiedenen zeitabhängigen Prozesse berücksichtigen, die am Wachstum beteiligt sind. Deshalb ist das epitaktische Wachstum das Resultat des Zusammenspiels von thermodynamischen und kinetische Eigenschaften.[Müller-Krumbhaar 1978, Venables 1984, Kern 1975, Zinke-Allmang 1992] Die typischen zeitabhängigen

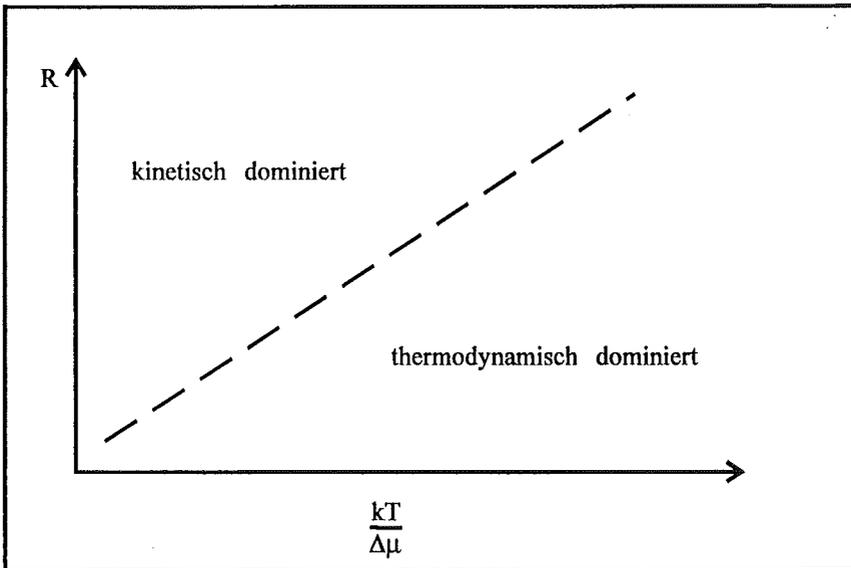


Abb. 3.1 Schematische Darstellung des Einflusses der beiden Wachstumsparameter

Prozesse sind von der Wachstumsrate bzw. Aufdampfrate R und der Oberflächendiffusion abhängig, die wiederum von der Temperatur T abhängt. So sind die beiden auch experimentell kontrollierbaren Parameter Aufdampfrate und Substrattemperatur sehr wichtig. Abb. 3.1 stellt schematisch die Auswirkung der beiden Parameter auf das Wachstum dar: bei niedriger Substrattemperatur T und hoher Aufdampfrate R ist das Wachstum durch kinetische Prozesse bestimmt, aber bei sehr hohen Substrattemperaturen T und sehr kleinen Wachstumsraten R ist es durch thermodynamische Eigenschaften des Systems dominiert.

Die Kristalle wachsen, indem Atome aus einer nichtkristallinen Phase in das Kristallgitter des wachsenden Kristalls eingebaut werden. Die Atome aus der nichtkristallinen Phase erreichen die Oberfläche, auf der sie hin und her diffundieren, bis sie entweder wieder von der Oberfläche desorbieren oder sich fest an den Kristall anlagern (Abb. 3.2). Notwendig für einen festen Einbau der Atome ist, daß sie sich an bestehende Inseln anlagern. Jedoch sind nicht alle Inseln stabil, sie müssen erst eine kritische Keimgröße überwunden haben, um nicht wieder auseinander zu fallen. Daher werden die Wachstumsrate, die Form und Güte der Kristalle entscheidend durch die kritische Keimgröße und Keimdichte beeinflusst.

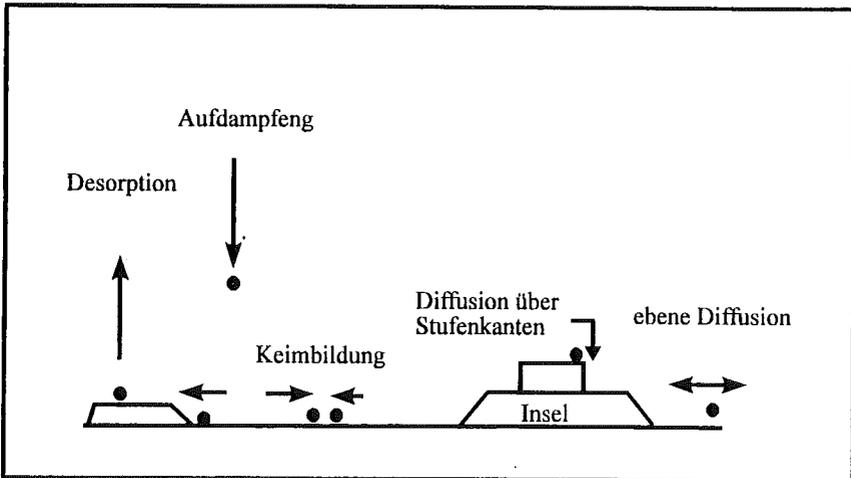


Abb. 3.2 Schematische Darstellung der atomaren Prozesse während des epitaktischen Wachstums.

Neben den experimentell kontrollierbaren Parametern Aufdampfrate R und Substrattemperatur T gibt es noch anderen "intrinsische" Parameter, die auch den Wachstumsprozess und die Morphologie der aufgewachsenen Schicht beeinflussen können.

Dieses sind die Diffusionsbarriere E_d , die Bindungsenergie E_b und die Desorptionsenergie E_a , die sowohl vom Material des Substrats und des Adsorbats als auch der lokalen Konfiguration abhängen. Die Bestimmung dieser mikroskopischen Systemeigenschaften ist eine wichtige Aufgabe zum Verständnis des Kristallwachstums auf einer mikroskopischen Längenskala. Zu diesem Zweck hat man Theorien entwickelt, die aus experimentell meßbaren Größen (z.B. Inseldichten) und deren Abhängigkeit von der Aufdampfrate und der Substrattemperatur Rückschlüsse auf charakteristische Energien zulassen.

Das Kristallwachstum wird durch die Änderung der Inselgrößen und -dichten charakterisiert. Schon früh ist das Wachstum der Inseln durch Ratengleichungen beschrieben worden [Venables 1984], wobei später auch viele Prozesse berücksichtigt wurden, die beim realen Kristallwachstum eine wichtige Rolle spielen. Daher unterscheidet man drei verschiedene Wachstumsstadien: Keimbildung (2D oder 3D), Inselwachstum und Inselkoaleszenz. Berücksichtigt man, daß es auf einer Insel auch atomare Stufen gegeben kann (Abb. 3.2), die bei SPA-LEED Untersuchungen das Profil zusätzlich verbreitern, so kann man Inselgrößen nur bei der In-Phase Bedingung bestimmen (für heteroepitaktisches Wachstum). Zusätzlich muß man die Terrassenlängen- und Schichtverteilung berücksichtigen. Aber für geringe Bedeckungen kann man diesen Effekt vernachlässigen, da sich im wesentlichen nur zweidimensionale Inseln bilden. Dann ist die Inseldichte N_x proportional zum Quadrat der Stufendichte, die man mit SPA-LEED sehr genau bestimmen kann. Stowell [Stowell 1970, Venables 1984] hat gezeigt, daß bei tiefen Temperaturen (wo die Desorption sehr gering ist) die stabile Inseldichte durch folgende Form beschrieben wird:

$$N_x(T,R) \propto R^p \exp\left(-\frac{E_n}{kT}\right) \quad (3.2)$$

$$\text{mit} \quad E_n = [E_{i^*} + i^* E_d] / (i^* + 2) \quad \text{und} \quad (3.3)$$

$$p = \frac{i^*}{i^* + 2} \quad (3.4)$$

Hier ist i^* die kritische Keimgröße, E_{i^*} die Bindungsenergie des kritischen Keims, E_d ist Diffusionsbarriere und k die Boltzmann Konstante.

Indem die Inseldichte $N_x(T,R)$ in Abhängigkeit von der Wachstumstemperatur T und Aufdampfrate R (die beiden Parameter sind experimentell kontrollierbar) beschrieben wird, kann man aus Gl. (3.2-3.4) sowohl die kritische Keimgröße i^* als auch die charakteristischen Energie E_{i^*} und E_d entnehmen. Für das homoepitaktische Wachstum von Metallen bei tiefen Temperaturen ist i^* normalerweise sehr klein ($i^*=1$) [Ernst 1992]. In diesem Fall hat ein kritischer Keim keine Bindungsenergie und aus Gl. (3.2) ergibt sich $E_n = E_d/3$. Hier ist zu

beachten, daß die charakteristische Energie E_d in Gl(3.1) bei verschiedenen Wachstumsmoden eine unterschiedliche Bedeutung hat. Wenn ein reines Schichtwachstum vorliegt, ist E_d allein durch die Diffusionsbarriere auf der Fläche E_d -ebene gegeben. Für den Fall des dreidimensionalen Inselwachstums muß zusätzlich noch die vertikale Diffusion über Stufenkanten berücksichtigt werden, so daß insbesondere die Diffusionsbarriere an den Stufenkanten E_d -edge eine wichtige Rolle spielt.

Man kann sagen, daß E_d -ebene und E_d -edge die Morphologie der wachsenden Oberfläche beeinflussen. Qualitativ beeinflusst E_d -ebene stärker die laterale Rauigkeit und E_d -edge stärker die vertikale Rauigkeit. Da man mit SPA-LEED sowohl die laterale Rauigkeit als auch die vertikale Rauigkeit der Oberfläche bestimmen kann, ist es möglich, die beiden Parameter experimentell zu erfassen.

3.3 Homoepitaktisches Wachstum von Metallen

Für das homoepitaktische Wachstum von Metallen kann die Freie Energie keine entscheidende Rolle spielen, da das Material bzw. die Freien Oberflächenenergien der aufgedampften Schicht und des Substrats gleich sind. Daher sollte das Wachstum grundsätzlich im Schichtwachstumsmode ablaufen.* Oft wird das Wachstum von kinetischen Effekten dominiert, d.h. die Morphologie der Oberfläche während des Wachstums wird durch die Beweglichkeit des Adsorbats und die Aufdampftrate sehr stark beeinflusst.

Je tiefer die Substrattemperatur ist, desto schwächer ist die Beweglichkeit des Adsorbats. Im Extremfall haben die Adsorbate überhaupt keine Beweglichkeit, d.h. die Atome aus der Gasphase bleiben an der Stelle haften, wo sie auf der Oberfläche auftreffen. Ein etwas verallgemeinerter Fall liegt vor, wenn die adsorbierten Atome zwar lateral auf den Terrassen noch diffundieren können, sie aber nicht über atomare Stufen in andere Schichten wechseln können. Beide Wachstumsarten beschreibt man als statistisches Wachstum. Die Oberflächenrauigkeit Δ steigt bei diesem Wachstumsmode monoton mit der Bedeckung an:

$$\Delta = \sqrt{\theta} \quad (3.5)$$

während sie bei Schichtwachstum oszilliert.

* Wenn die Freien Energien der verschiedenen Orientierungen des Kristalls sehr stark anisotrop sind, können sich auch 3D Inseln bilden.

Entgegen der Tendenz eines zunehmend statistischen Wachstums bei tiefen Temperaturen wurde in manchen Systemen (Cu/Cu(100), Pt/Pt(111), Cu/Cu(111)) ein "Reentrant layer-by-layer" Wachstumsmode bei sehr tiefen Substrattemperaturen entdeckt [Egelhoff 1989, Kunkel 1990, Wischhöfer 1992, Schmidt 1993], obwohl die Beweglichkeit des Adsorbats sehr klein ist. Dieses Verhalten kann nicht durch die gebräuchlichen einfachen Oberflächendiffusionsmodelle erklärt werden. Es gibt aber neue Ansätze, um dieses Wachstum zu verstehen. Zu diesen Phänomen stellte Egelhoff [Egelhoff 1989] ein Modell dar, das die latente Kondensationswärme der aus der Gasphase auf die Oberfläche auftreffenden Atome als Energiequelle für vorübergehende Diffusion ("transient mobility") benutzt. Evans [Evans 1990] entwickelte stattdessen das Modell des "downward funneling", bei dem Atome an bereits gewachsenen Pyramiden abrutschen, dadurch Gräben auffüllen und somit die Oberfläche nicht so rauh wie beim statistischen Wachstum werden lassen. Poelsema [Poelsema 1991] entwickelte ein anderes Modell, bei dem Atome bei tiefen Temperaturen viele kleine Inseln bilden. Weitere aufgedampften Atome auf den vorliegenden kleinen Inseln diffundieren leicht über Kinken, damit die Oberfläche nicht rauh wird.

Kapitel 4 Die Oberflächenrauigkeit und die Leitfähigkeit dünner Schichten

4.1 Dünne Schichten und Size-Effekte

Leitungsvorgänge im Volumenfestkörper werden durch die Boltzmannsche Transporttheorie für ein weites Anwendungsfeld gut beschrieben. Beim Übergang zu dünnen Schichten kommt es durch die Reduktion der Dicke der Schicht auf mikroskopische Ausmaße zu Abweichungen, den sogenannten Size-Effekten. Wird die Schichtdicke D vergleichbar mit der freien Weglänge der Leitungselektronen l , so muß die Streuung an den Grenzflächen der Schicht mit berücksichtigt werden. Man nennt es klassischen Size-Effekt (KSE). Wenn sich weiterhin die Schichtdicke in der Größenordnung der de Broglie-Wellenlänge der Leitungselektronen befindet, wird die Komponente des Wellenvektors senkrecht zur Schicht quantisiert. Diese Änderung der elektronischen Struktur ist als Quantum Size-Effekt (QSE) bekannt. Zusätzlich zu diesen beiden Effekten kommt es in dünnen Filmen häufig zu erhöhten Defektkonzentrationen, die als zusätzliche Streuprozesse beitragen und die nicht vernachlässigt werden dürfen. Eine Lösung der Boltzmannschen Stoßgleichung mit Randbedingungen, die durch das Modell einer dünnen Schicht vorgegeben werden, geht auf Fuchs zurück [Fuchs 1938]. In diesem Modell wird der Streuprozess an der Grenzfläche durch einen Spiegelungsparameter p_S beschrieben. Die Rechnung liefert den spezifischen Widerstand $\rho(D)$ der Schicht bezogen auf den Wert ρ_∞ eines Festkörpers mit der gleichen Volumenstruktur und chemischen Zusammensetzung:

$$\rho(D) = \rho_\infty + \frac{3}{8} \rho_\infty l_\infty \frac{1}{D} (1 - p_S) \quad l_\infty \leq D \quad (4.1)$$

Der spezifische Widerstand ρ der dünnen Schicht ist als Funktion der D durch einen Parameter festgelegt:

Von diesen sind das Produkt $\rho_\infty l_\infty$ und ρ_∞ Materialkonstanten. Der Spiegelungsparameter p_S charakterisiert die Streuung an der Grenzfläche.

4.2 Die diffuse Oberflächenstreuung einfacher Metallschichten

Bei dünnen, zusammenhängenden, einfachen Metallschichten mit der Dicke in der Größenordnung der mittleren freien Weglänge der Leitungselektronen hat der spezifische Widerstand einen durch Grenzflächenstreuung verursachten Beitrag (wie im Abschnitt 4.1 diskutiert). Dieser Beitrag ist von der Morphologie der Grenzflächen abhängig, die i.a. durch die Oberflächenrauigkeit charakterisiert wird. Aber im Modell von Fuchs wird keine Beziehung zwischen dem Spiegelungsparameter p_s und der Grenzflächenrauigkeit hergestellt. In den meisten Fällen wird der Spiegelungsparameter als ein "Anpassungsparameter" benutzt, und manchmal liefert er unphysikalische Werte, um den gemessenen spezifischen Widerstand auszuwerten (negative Werte) [Leuung 1984, Heun 1993]. Es gab zahlreiche Untersuchungen, besonders bei den Halbleitersystemen wie z.B. Si/SiO₂ [Hahn 1982, Hahn 1985, Goodnick 1985, Wollschläger 1987], die die Auswirkungen der Grenzflächenstreuung auf die Beweglichkeit der Ladungsträger berücksichtigten. Für die Systeme der einfachen Metallschichten wurden solche Effekte qualitativ (d.h. ohne reale Messungen der Grenzflächenrauigkeit) diskutiert [Schumacher 1982, Jalochowski 1992].

Theoretische Modelle zur Beschreibung der diffusen Grenzflächenstreuung wurden von vielen Autoren entwickelt [Ando 1982, Gold 1985]. Im folgenden wird ein Modell vorgestellt, das man sehr häufig bei Halbleitersystemen benutzt.

In diesem Modell wird die Grenzfläche (zum Vakuum oder zwischen verschiedenen Schichten) durch die kontinuierliche Funktion $z(\mathbf{r})$ beschrieben, die die Höhe der Grenzfläche über einem gedachten Niveau an der Stelle $\mathbf{r}=(x,y)$ angibt. Man nimmt an, daß die Grenze zwischen der dünnen Schicht und dem Vakuum bzw. Substrat eine unendlich hohe Barriere für die Elektronen der Schicht bildet. Das System mit einer glatten Grenzfläche wird durch ein Kastenpotential näherungsweise beschrieben. Um die Rauigkeit der Barriere zu berücksichtigen, wird dieses Potential nach Taylor entwickelt:

$$V(\mathbf{r}, z(\mathbf{r})) \approx V_0(\mathbf{r}) + V'(z)z(\mathbf{r}) \quad (4.2)$$

$$V'(z) = \frac{\partial V(z)}{\partial z}$$

Der neu auftretende Term $V_{SI}=V'(z)z(\mathbf{r})$ beschreibt die zusätzliche Streuung der Elektronen an der Grenzfläche.

Der Hamiltonian für die Elektronen an der Grenzflächenschicht ist:

$$H=H_0+H'$$

$$H_0=-\frac{\hbar^2}{2m}\nabla^2+V_0(\mathbf{r}) \quad (4.3)$$

$$H'=V'(z)z(\mathbf{r})$$

Für einfache Metallschichten ist das Modell der freien Elektronen näherungsweise gültig, so daß man setzt:

$$V_0(\mathbf{r})=0$$

Aus der Gl.(4.3) läßt sich das Matrixelement für den Übergang von Zustand $|k\rangle$ des Elektrons in den Zustand $|k'\rangle$ in Bornscher Näherung berechnen. Für das Modell der freien Elektronen und für elastische Streuung ist die Wellenfunktion des Elektrons eine ebene Welle (Abb. 4.1):

$$\langle k| \propto \exp(-ik\cdot\mathbf{r})$$

$$|k'\rangle \propto \exp(ik'\cdot\mathbf{r}) \quad (4.4)$$

Das Matrixelement ist:

$$M_{k,k'} \propto \langle k| H' |k'\rangle \propto V'(z) \int z(\mathbf{r}) \exp\{i(\mathbf{k}-\mathbf{k}')\cdot\mathbf{r}\} d\mathbf{r} \quad (4.5)$$

Die diesem Übergang entsprechende Relaxationszeit beträgt

$$\tau_{k,k}^{-1} \propto |\langle k| H' |k'\rangle|^2 \propto |V'(z)|^2 \int z(\mathbf{r})z(\mathbf{r}+\mathbf{r}') \exp\{-i(\mathbf{k}-\mathbf{k}')\cdot\mathbf{r}\} d\mathbf{r}d\mathbf{r}'$$

$$=|V'(z)|^2 \int f(\mathbf{r}) \exp\{-i\mathbf{Q}\cdot\mathbf{r}\} d\mathbf{r} \quad (4.6)$$

mit

$$\mathbf{Q}=\mathbf{k}-\mathbf{k}' \quad \text{und} \quad |\mathbf{Q}|=2k_F \sin(\Theta/2) \quad (4.7)$$

$$f(\mathbf{r})=\int z(\mathbf{r}')z(\mathbf{r}+\mathbf{r}')d\mathbf{r}' \quad (4.8)$$

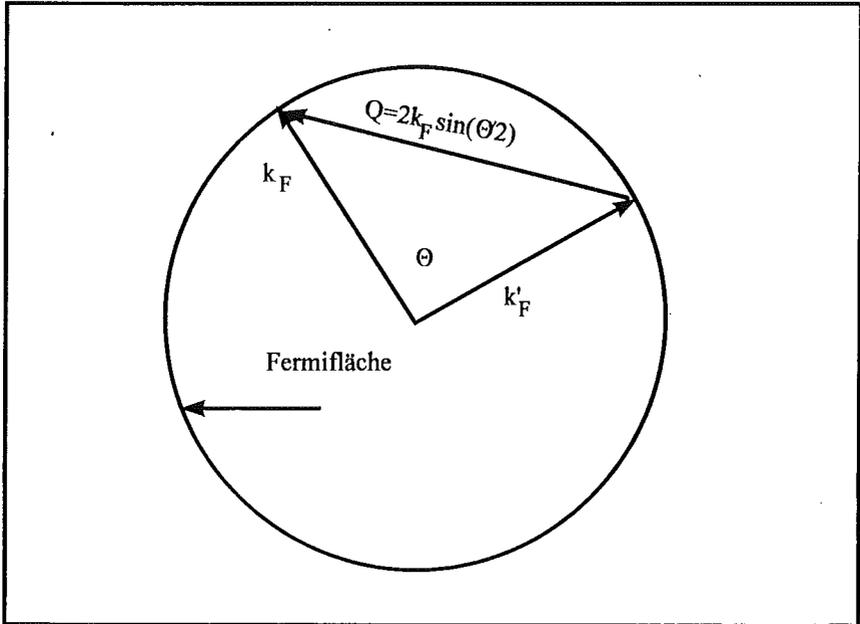


Abb. 4.1 Das Modell der freien Elektronen

Hier ist $f(\mathbf{r})$ die Höhenkorrelationsfunktion der Grenzfläche, k_F ist der Fermivektor der Elektronen und Θ ist der Winkel zwischen dem Zustand vor der Streuung \mathbf{k} und dem Zustand nach der Streuung \mathbf{k}' . Folgende Annahmen wurden hier gemacht (Abb. 4.1):

- a) Nur die Elektronen auf der Fermifläche tragen zur Leitfähigkeit der Schicht bei.
- b) Nur elastische Streuungen werden berücksichtigt.

Außer diffuser Grenzflächenstreuung tragen auch andere Streuprozesse zum gesamten Widerstand der Schicht bei. Solche Streuungen sind Volumendefektstreuung (z.B. Punktdefekte, Streuung an Korngrenzen) und Elektron-Phonon Streuung. Wenn die verschiedenen

Streuprozesse nicht voneinander abhängig sind, kann man sie unter verschiedenen experimentellen Bedingungen trennen. Nach der Boltzmannschen Theorie ist der spezifische Widerstand ρ_{sr} durch Grenzflächenstreuung umgekehrt proportional zu der entsprechenden Relaxationszeit::

$$\begin{aligned}\rho_{sr} &= \frac{m}{n e^2 \tau} \propto |V'(z)|^2 \int \tau^{-1}_{\mathbf{k}, \mathbf{k}'} d\mathbf{k} d\mathbf{k}' \\ &= |V'(z)|^2 \int \tau^{-1}_0 (1 - \cos(\Theta)) d\mathbf{Q}\end{aligned}\quad (4.9)$$

Von den Gl. (4.6 - 4.9) kann man sehen, daß ρ_{sr} von der Höhenkorrelation der Grenzfläche abhängt. Für eine isotrope Oberfläche kann man annehmen:

$$f(r) = \int z(\mathbf{r}) z(\mathbf{r} + \mathbf{r}') d\mathbf{r}' = \Delta^2 \exp(-r/\xi) \quad (4.10)$$

wobei Δ die vertikale Rauhgigkeit und ξ die laterale Korrelationslänge der Grenzfläche bezeichnen. Man setzt Gl.(4.10) in Gl.(4.9) ein, und mit Gl.(4.6) und Gl.(4.7) ergibt sich der spezifische Widerstand:

$$\rho_{sr} \propto |V'(z)|^2 (\Delta \xi)^2 \int \frac{(1 - \cos(\Theta))}{(1 + |\mathbf{Q}\xi|^2)^{3/2}} d\Theta = |V'(z)|^2 (\Delta \xi)^2 F(\xi) \quad (4.11')$$

$$\text{mit } F(\xi) = \int \frac{(1 - \cos(\Theta))}{(1 + |\mathbf{Q}\xi|^2)^{3/2}} d\Theta = \int \frac{(1 - \cos(\Theta))}{(1 + 4k_F^2 \xi^2 \sin^2(\Theta/2))^{3/2}} d\Theta$$

Die Gl.(4.11') zeigt, daß ρ_{sr} durch Δ , ξ und V' beschrieben wird. Die Parameter Δ und ξ können mit dem SPA-LEED sehr genau gemessen werden. Daher kann durch gleichzeitige Messung von Widerstandswerten und SPA-LEED Profilen ein tieferes Verständnis von elektronischen Steuprozesse der Oberflächen gewonnen werden.

Kaser et.al. [Kaser 1993] haben mit dem Formalismus von "force-balance equation" ein Modell für dünne Metallschichtsysteme entwickelt. Wenn die Schicht dick genug und die Höhenkorrelationsfunktion durch Gl.(4.10) beschrieben ist, d.h. ihr Fermiwellenvektor gleich dem Fermiwellenvektor des Volumens des gleichen Materials ist (d.h. ohne Berücksichtigung der Quantum Size Effekte), liefert das Modell den Beitrag der diffusen Oberflächenstreuung zum spezifischen Widerstand wie folgt:

$$\lim_{\nu_{k_F} \rightarrow \infty} \rho_{\text{St}} = \frac{9\pi\hbar\Delta^2}{2e^2D} F(\xi_{k_F})$$

Hier ist $F(\xi_{k_F}) \approx 0.666/\xi_{k_F}$ für $\xi_{k_F} \gg 5$ und (4.11)

$$F(\xi_{k_F}) = \frac{4\pi}{45} (\xi_{k_F})^2 \quad \text{für } \xi_{k_F} \ll 2$$

In der Gl. (4.11) ist D die Schichtdicke. ξ und Δ haben gleiche Bedeutung wie in Gl. (4.11').

Wißmann [Wißman 1975] stellt in einer einfachen Rechnung einen Zusammenhang zwischen der diffusen Oberflächenstreuung und der Oberflächenkonzentration der Streuzentren Z her. In dieser Rechnung wirkt eine Stufenkante nur als ein Streuzentrum, das einen anderen Streuwirkungsquerschnitt Ω hat. Der Anteil der diffus gestreuten Leitungselektronen ist also proportional zu der Streuzentrenflächenkonzentration Z und dem Wirkungsquerschnitt Ω :

$$\rho(D) = \rho_{\infty} + (\rho.l)_{\infty} \frac{Z\Omega}{D} \quad (4.12)$$

Kapitel 5 Experimenteller Aufbau

5.1 Das Vakuumsystem

Die Messungen dieser Arbeit wurden im Ultrahochvakuum(UHV) durchgeführt,

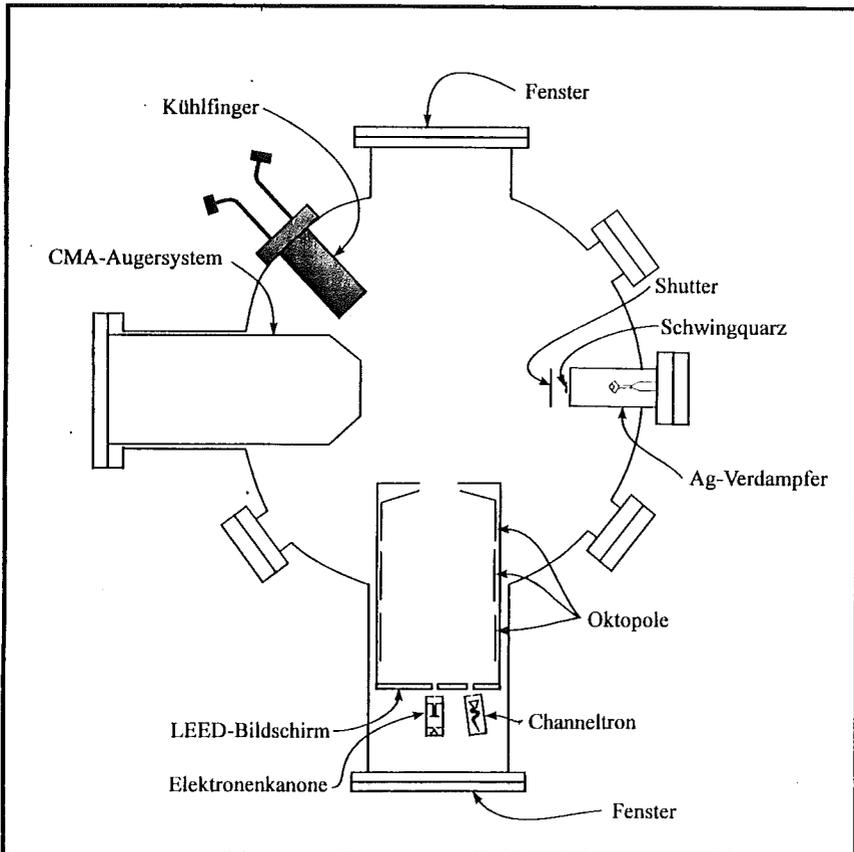


Abb. 5.1 Schnitt durch die Meßeinheit der UHV-Anlage, deren Aufbau in Abb. 5.1 schematisch dargestellt ist. Das Pumpsystem besteht aus einer 200 l/s Ionengetter und einer 1100 l/s Titansublimationspumpe, wodurch ein Basisdruck unter 10^{-8}

Pa erreicht werden konnte. Als Untersuchungsmethoden stand neben SPA-LEED noch ein Augerelektronenspektrometer (AES) zur Verfügung.

5.2 Der Kristallhalter und die Kühlung

Der Kristallhalter ist in Abb. 5.2 dargestellt. Als Kristalle wurden 1.5 mm dicke vorpolierte Siliziumwafer verwendet, die zu einer Größe von $10 \times 10 \text{ mm}^2$ ausgesägt wurden. An den Seiten waren Kerben in diese Waferstücke gesägt, so daß sie von Wolframdrähten gehalten werden konnten. Ein NiCr/Ni-Thermoelement zur Temperaturmessung war, durch ein dünnes Molybdänblech von Silizium getrennt, zwischen einem der Wolframdrähte und der Kerbe im Siliziumwafer angebracht. Die Trennung des Thermoelements vom Kristall ist notwendig, um eine Nickelverunreinigung auf der Si Oberfläche zu vermeiden.

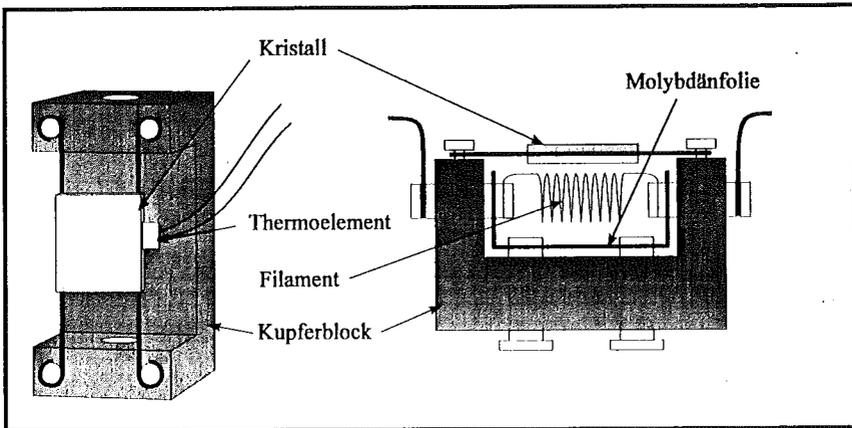


Abb. 5.2 Der Kristallhalter

Hinter dem Kristall befand sich ein Filament mit 250 W Heizleistung, mit dem der Kristall sowohl durch Wärmestrahlung und als auch durch Elektronenstoß geheizt werden konnte.

Über Kupferlitzen war der Kristallhalter mit einem Kühlfinger verbunden, in den flüssiger Stickstoff geleitet werden konnte. Dadurch konnte der Kristall auf eine Temperatur von 120 K gekühlt werden.

5.3 Der Silberverdampfer

Als Verdampfungsmaterial diente Silber der Reinheit 5N. Es wurde resistiv aus einer Perle verdampft, die an einem Wolframdraht hing. Die Aufdampfrate wurde über die Frequenzänderung eines mitbedampften Schwingquarzes bestimmt. Während des Aufdampfens blieb der Druck unter 2×10^{-8} Pa.

5.4 Das Augersystem

Zur Überprüfung von Kontamination der Oberflächen, aber auch zur Analyse der aufgedampften Schichten, wurde ein CMA-Augersystem verwendet.

5.5 Das SPA-LEED-System

Die Hauptmeßmethode dieser Arbeit ist ein SPA-LEED. Abb. 5.3 zeigt eine schematische Übersicht über das Gerät. Da das System und dessen Erweiterung ausführlich in [Scheithauer 1986, Schmidt 1990] beschrieben sind, soll hier nur ein kurzer Überblick gegeben werden.

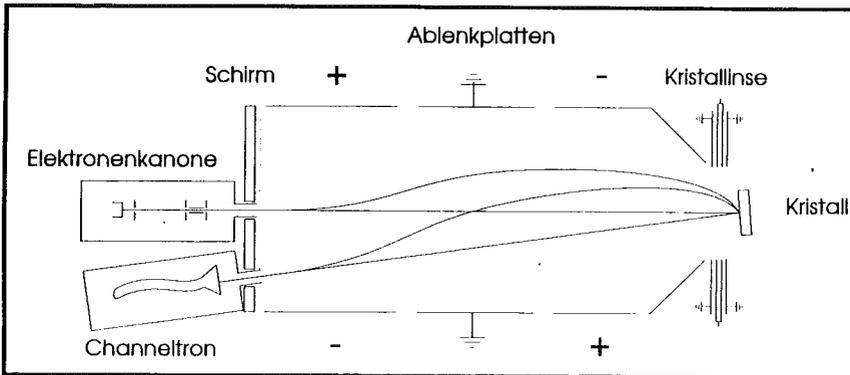


Abb. 5.3 Schematische Darstellung des SPA-LEED Systems

Das Meßsystem kann auf zwei Weisen betrieben werden. Im Sichtbetriebe wird die 4-Gitter - LEED - Optik dazu benutzt, einen schnellen Überblick über das Beugungsbild des Kristalls zu gewinnen und den Kristall für den hochauflösenden Betrieb vorjustieren.

Im hochauflösenden Modus wird der gebeugte Elektronenstrahl auf eine 100 μm Blende vor dem Channeltron abgebildet. Um nun ein Profil aufnehmen zu können, muß das Beugungsbild über die Blende geschwenkt werden. Dies geschieht mit Hilfe einer elektrostatischen Ablenkungseinheit, die aus drei hintereinander gesetzten Oktopolen besteht. Die Längen- und Spannungsverhältnisse und die Form der Oktopole sorgen dafür, daß sich während der Messung der Ort des Elektronenstrahls auf der Probe so gut wie nicht ändert. Mit diesem SPA-LEED konnten Transferweiten bis zu 210 nm nachgewiesen werden. [Scheithauer 1986]

5.6 Präparation der Kristalle

Für die Experimente wurden kommerzielle n-dotierte Siliziumwafer mit einem spezifischen Widerstand von 500 $\Omega\text{ cm}$ verwendet. Die Wafer wurden vorher mit Oxidier- und Ätzschritten behandelt, da die Wafer mit der Kristallsäge bearbeitet worden waren. Als Oxidationsmittel diente eine Mischung aus gleichen Teilen von Ammoniak (NH_3), Wasserstoffperoxid (H_2O_2) und destilliertem Wasser (H_2O). Flußsäure wurde als Ätzmittel eingesetzt. Zum Ende der Behandlung wurde der Kristall für 5 Minuten in das Oxidationsmittel gelegt, damit sich ein Schutzoxid bildete. Vor dem Einbau der Proben wurden sie in Propanol gewaschen. Anschließend wurden sie mit einem schwach Ethanol getränkten Papiertuch abgezogen.

Die Proben wurden im UHV auf 1500 K geflasht, wobei der Druck unter 10^{-6} Pa blieb. Die so erzeugten Oberflächen zeigten sehr brillante 7×7 LEED Bilder.

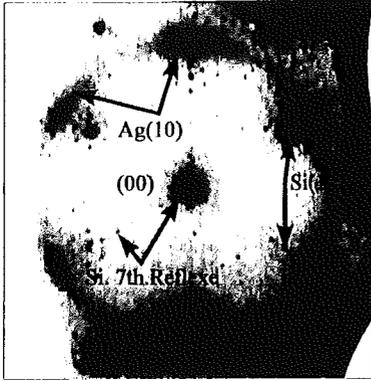
Kapitel 6 Ag auf Si(111) bei 120K

6.1 Wachstumsmode

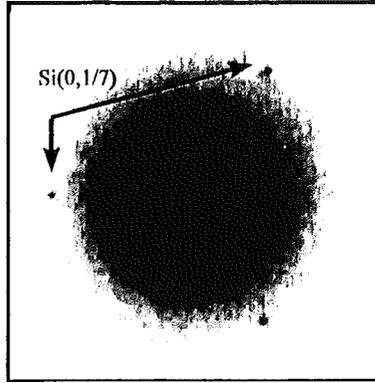
Das Wachstum ultradünner Ag-Schichten ($\theta \leq 5 \text{ ML}$) bei tiefen Temperaturen wurde von Thielking [Thielking 1992] mit SPA-LEED ausführlich untersucht. Hier soll nur ein Kurzüberblick gegeben und einige Beispiele dargestellt werden.

Abb. 6.1 zeigt einige typische zweidimensionale LEED-Beugungsbilder von verschiedenen dicken Ag-Schichten, die bei einer Substrattemperatur von 120 K erzeugt wurden. Die LEED-Bilder zeigen folgende qualitativen Informationen:

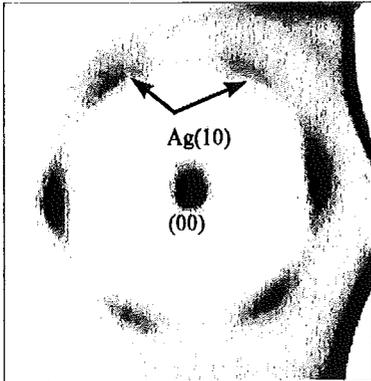
- a) Die sechszählige Symmetrie des Beugungsbildes, das nach dem Aufdampfen der Ag-Schichten zusätzlich entsteht, zeigt, daß die Ag-Schichten mit (111)-Orientierung wachsen.
- b) Die Silberinseln sind nicht gleich ausgerichtet, sondern gegen die kristallografischen Richtungen des Substrats verdreht (Rotationsmosaik), wie man an der "Bananen"-form der Ag(10) Reflexe erkennt. Solche Rotationsmosaik wurden auch bei den bei 300K hergestellten Schichten beobachtet.
- c) Obwohl das Wachstum bei 120K im Quasi- Schicht-für-Schicht Wachstumsmode erfolgt [Tringides 1992, Jalochowski 1988], sieht man bis zu einer Bedeckung von 3 Monolagen neben den Ag-Reflexen auch Substratreflexe (Abb.6.1(a) und (b)), da bei kleiner Dicke ($<3\text{ML}$) die Schicht für Elektron "durchsichtig" ist. Ab 4 Monolagen sind die Substratreflexe (Abb.6.1.(c)) kaum sichtbar.
- d) Abb. 6.1.(d) zeigt, daß die bei 120 K gewachsene vollständig geschlossene Silberschicht, durch Tempern aufbricht, da die Substratreflexe nach dem Tempern wieder deutlich auftauchen.



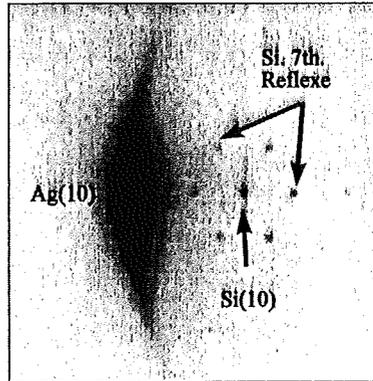
a) 1.5 ML/120K



b) 3 ML/120K, (00) Reflex



c) 4 ML/120K



d) 4 ML/120K und getempert bei 300K

Abb. 6.1 2D LEED-Bilder von verschiedener Ag-Schichten, die bei einer Substrattemperatur von 120K erzeugt wurden. ($E=84$ eV)

6.2 Die vertikale und die laterale Rauigkeit

In der Arbeit von Thielking [Thielking 1992] wurde die Inselgrößen- und Inselabstandsverteilung (also im wesentlichen die laterale Rauigkeit) der bei verschiedenen Wachstumsbedingungen hergestellten Schichten detailliert analysiert. Als Ergänzung dieser Untersuchungen werden hier zusätzlich einige Beispiele der vertikalen und lateralen Rauigkeitsanalyse dargestellt.

Um die vertikale Rauigkeit genau zu analysieren, ist es notwendig, die gemessenen Profile in Spitze und Schulter aufzuteilen. Bei sehr kleinen Bedeckungen ($\theta \leq 4\text{ML}$) kann man das Profil des Spiegelreflexes ((00) Reflex) in eine δ -formige Spitze (aufgrund der instrumentellen Verbreiterung durch ein Gaußprofil beschreibbar) und eine breite diffuse Schulter mit Lorentzprofil aufteilen (Gl.(6.1)). In Abb. 6.2 ist diese Aufspaltung bei unterschiedlichen Streubedingungen und unterschiedlichen Schichtbehandlungen dargestellt.

$$I(K_{\parallel}, K_{\perp}) = I_D \delta(K_{\parallel}) + I_S(K_{\parallel}, K_{\perp}) \quad (6.1)$$

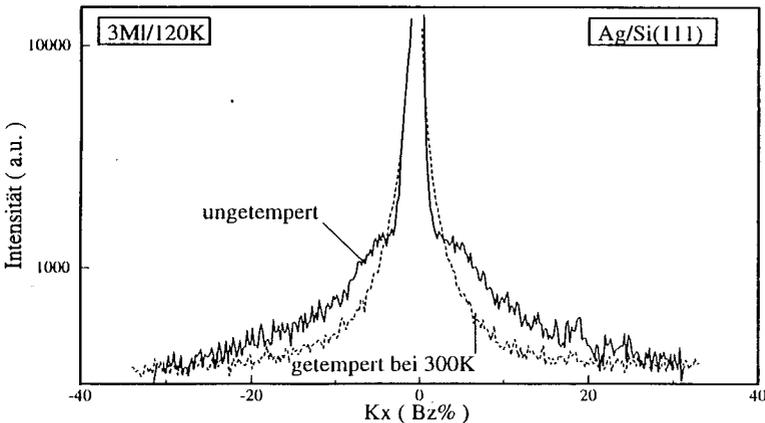


Abb. 6.2.a. 1D LEED Profil des (00) Reflexes einer 3 ML Silberschicht (hergestellt bei 120 K) bei einer In-Phase Bedingung ($S_{\text{ag}} = 4$) vor und nach dem Tempern bei 300 K

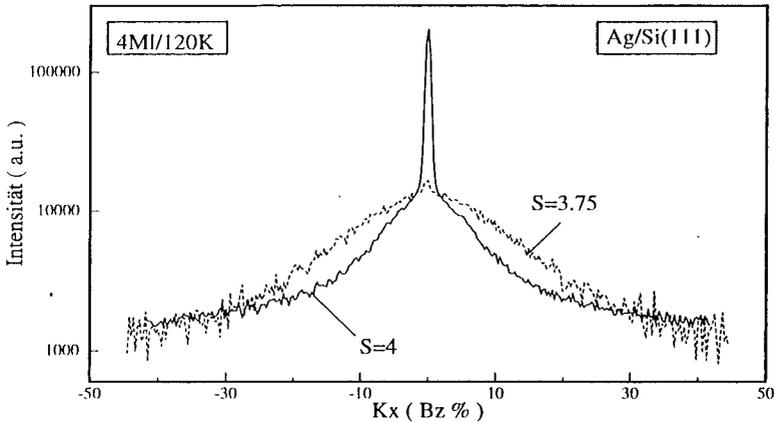


Abb 6.2.b 1D LEED Profil des (00) Reflexes einer 4 ML Silberschicht bei verschiedenen Streubedingungen ($S_{ag}=4$ und $S_{ag}=3.75$). Die Silberschicht wurde bei 120K hergestellt.

Während sich die Halbwertsbreite des δ -förmigen Peaks nicht mit der Streuphase änderte, variierte die Halbwertsbreite der lorentzförmigen Schulter (Potenz = 1.5) deutlich. In Abb.6.3. ist die Halbwertsbreitenvariation der diffusen Schulter gegen Streuphase dargestellt. Sowohl die Streuphasen der Si(111) Oberfläche ($2\pi S_{si} = K_{\perp} d_{si(111)}$) als auch der Ag(111) Oberfläche ($2\pi S_{ag} = K_{\perp} d_{ag(111)}$) sind eingetragen. Das Bild 6.3. zeigt folgendes deutlich:

- Bei den ungetemperten Schichten (3 ML und 4 ML) oszilliert die Halbwertsbreite der diffusen Schulter mit der Ag(111)-Streuphase.
- Durch Tempern verschwindet dieser Oszillationscharakter, so daß die Halbwertsbreite der diffusen Schulter fast konstant mit der Streuphase S bleibt.
- Auch bei den In-Phase Bedingungen verschwindet die diffuse Schulter nicht. Die integrierte Schulter-Intensität besitzt sogar einen großen Anteil an der Gesamtintensität des Profils.

Im weiteren soll diskutiert werden, welche physikalische Gründe dieses hier aufgezeigte Verhalten der diffusen Schulter hervorrufen.

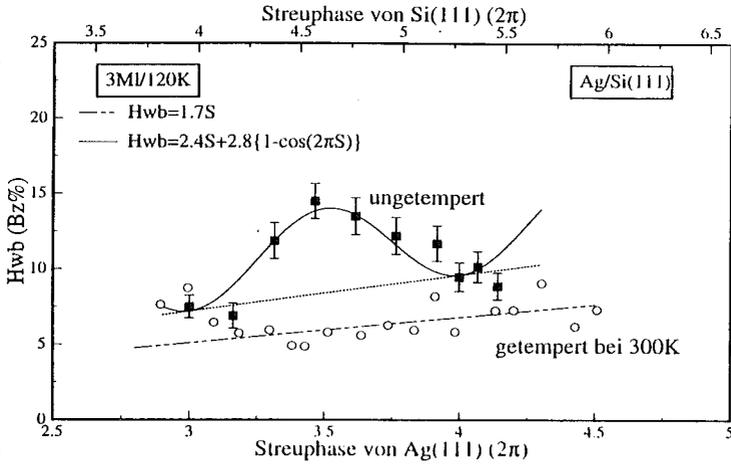


Abb.6.3.(a).Variation der Halbwertsbreite der diffusen Schulter mit der Streuphase. (bei 120 K gewachsene 3 MI Silberschicht , anschließend bis 300 K getempert)

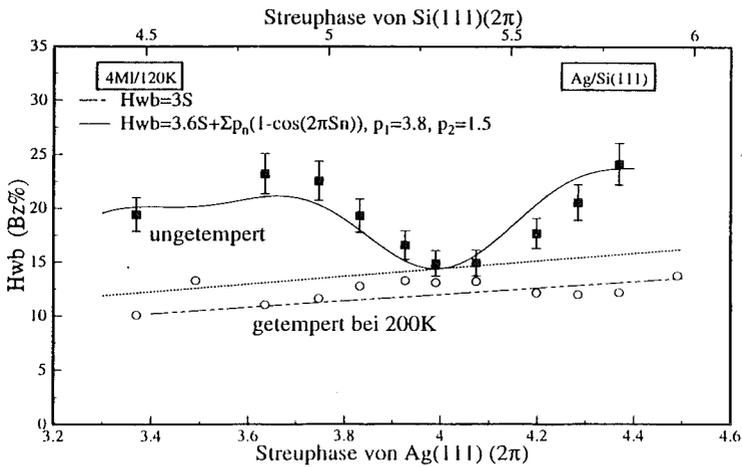


Abb.6.3.(b).Variation der Halbwertsbreite der diffusen Schulter mit der Streuphase. (bei 120K gewachsene 4 MI Silberschicht , anschließend bis 200 K getempert)

6.2.1 Inhomogenitäten

Die diffuse Schulter bei In-Phase Bedingungen kann nicht durch atomare Stufen an der Oberfläche hervorgerufen werden. Stattdessen werden sie durch Inhomogenitäten verursacht. [Wollschläger 1989, 1990]. In dem hier untersuchten System spielen mehrere Effekte eine Rolle.

1) *Korngrenzen*: Wie im §6.1. diskutiert wurde, wächst Silber auf der Si(111) Oberfläche im Inselwachstumsmodus. Die kristallografischen Richtungen der Inseln sind i.A. gegen das Substrat und natürlich auch gegeneinander verdreht. Wenn zwei nicht gleich ausgerichtete Inseln durch Wachstum zusammenstoßen, muß es in ihrem Kontaktgebiet "Störstellen" (Korngrenzen) geben. Solche "Störstellen" kann man i.A. als die Stellen bezeichnen, an denen die Atome nicht auf richtigen Plätzen sitzen, so daß sie eine andere Streuamplitude besitzen (andere Elektronendichte als im ungestörten Fall).

2) *Der Einfluß des Substrats*: Das Substrat der Si(111) - 7×7 wird durch das DAS (dimer adatom stacking-fault) Modell beschrieben [Takayanagi 1985]. Die ideale stufenfreie Si(111) - 7×7 Oberfläche ist "sehr rau". Bei 120 K existiert nicht genügend thermische Energie, um die Stapelfehler der 7×7 auszuheilen und dadurch genügend glatte Flächen für die wachsenden Ag-Inseln zu erzeugen. Daher wächst die Ag-Schicht auf einer stark strukturierten Unterlage, wodurch gerade bei geringen Bedeckungen das Wachstum entscheidend beeinflusst wird. Andererseits ist das Substrat niemals ideal glatt, sondern es liegen immer auch atomare Stufen vor. Diese Stufen des Substrats können Mosaiken verursachen (der Effekt wird im Kapitel 7 diskutiert).

3) *chemische Inhomogenitäten*: Bei nicht vollständig geschlossenen Silberschichten gibt es an der Oberfläche "unbedeckte" Bereiche. Die unterschiedlichen Streuamplituden von Ag und Si allein können schon die Verbreiterung durch Inhomogenitäten hervorrufen. Es ist durchaus denkbar, daß es sowohl große Bereiche mit geschlossenen Ag-Schichten (inkl. Korngrenzen) gibt und daneben fast Ag-freie Substratbereiche, auf denen sich keine 2D-Ag-Inseln gebildet haben. In diesem Fall tragen sowohl Korngrenzen als auch chemische Inhomogenitäten zur Verbreiterung des Reflexprofils bei.

4) *endliche Größe der Inseln (finite size effect)*: Die Silberinseln oder die Silberkörner sind gut geordnete Bereiche endlicher Größe. Die Größe aller Inseln ist nicht gleich, sondern folgen einer Verteilung, die eine Profilverbreiterung bewirkt. (vgl. Gl.(2.1)). Für den (00) Reflex muß man neben der Inselgrößenverteilung auch die Korrelation der Inseln

berücksichtigen! [Thielking 1992, Lu 1982]. In dem hier betrachteten System tragen im wesentlichen drei Effekte zu einer endlichen Größe der korreliert streuenden Bereiche bei. Die endliche Größe von Inseln (durch Inselabstands- und -größenverteilung beschrieben), Rotationsmosaiken mit Drehachse senkrecht zur Oberfläche (dieser Effekt wird durch Mosaikrotationswinkel beschrieben) und Kippmosaiken mit Drehachse in der Oberfläche (charakterisiert durch den Mosaikkippwinkel). Diese drei Effekte bewirken allerdings eine unterschiedliche Abhängigkeit der Reflexhalbwertsbreite von der Streubedingung. Während Inseln eine streuphasenunabhängige Verbreiterung hervorrufen, bewirken Rotationsmosaiken lediglich eine azimutale Verbreiterung der Reflexprofile und Kippmosaiken eine linear mit der Streuphase steigende Halbwertsbreite. Die Auswirkung der drei Effekte auf das Profil hängt sehr stark von der mittleren Größe der kohärenten Bereiche ab. Gibt es z.B. große Inseln, aber kleine Mosaikbereiche, so wird das Profil im wesentlichen durch den Mosaikkippwinkel beeinflusst (Gl.(2.43)). Sind aber Inseln klein, so spielt auch deren endliche Größe eine wesentliche Rolle in der Verbreiterung des Profils. Rotationsmosaiken haben keinen Einfluß auf den (00) Reflex, sondern können nur Reflexe höherer Ordnung verbreitern.

Die Theorie von Wollschläger [Wollschläger 1989] zeigt, daß die Halbwertsbreite der Schulter bei In-Phase Bedingungen umgekehrt proportional zur lateralen Korrelationslänge ξ_{inh} der Inhomogenitäten ist. Wie oben diskutiert wurde, kann man alle oben erwähnten Effekte mit einer effektiven Korrelationslänge ξ_{inh} summarisch zusammen fassen.

Wenn die endliche Größe der Inseln im wesentlichen die diffuse Schulter verursacht, ist die effektive Korrelationslänge ξ_{inh} der Inhomogenitäten durch den mittleren Inseldurchmesser $\langle R \rangle$ gegeben. Im Prinzip kann man die verschiedenen Inhomogenitäten (Inseln, Kippmosaiken, Rotationsmosaiken) experimentell trennen, wenn man über einen sehr großen Streuphasenbereich die Reflexprofile mißt. Im Abb.6.3 kennzeichnen die geraden Linien die Verbreiterung, die allein durch Kippmosaiken verursacht werden. Die vorliegenden Daten reichen nicht aus, eine zusätzliche Verbreiterung durch Inseln abzutrennen. Um zusätzlich noch die Verteilung von Rotationsmosaiken zu bestimmen, müssen Reflexprofile höherer Ordnung nach der Theorie von Thielking analysiert werden [Thielking 1992].

¹Thielking [Thielking 1992] hat diesen Effekt ausführlich und quantitativ berechnet. Hier wird nur eine qualitative Diskussion gegeben.

6.2.2 Atomare Stufen auf den Silberschichten

Die zusätzliche Oszillation der Halbwertsbreite der diffusen Schulter mit der Ag(111)-Streuphase in Abb. 6.3 weist darauf hin, daß auf der Silberschicht atomare Stufen vorhanden sind. Wie in §2.2.1.2 diskutiert wurde, weisen die Halbwertsbreiteoszillationen darauf hin, daß die Oberfläche nur durch das Mehr-Schichten-Modell beschrieben werden kann. Im folgenden soll das oszillatorische Verhalten der Halbwertsbreite genauer diskutiert werden.

Liegen Inhomogenitäten bei einer gestuften Oberfläche vor, so wird das Profil nach der Theorie von Wollschläger [Wollschläger 1989, 1990] durch drei Teile beschrieben: eine zentrale Spitze I_{peak} , eine Schulter I_{step} aufgrund atomarer Stufen und eine Schulter I_{inh} aufgrund von Inhomogenitäten. Die Form der Inhomogenitätenschulter I_{inh} hängt nicht von der Streuphase ab, wenn Inhomogenitäten und atomare Stufen nicht korreliert sind. Im hier untersuchten System ist diese Bedingung nicht unbedingt erfüllt, wie die folgenden qualitative Diskussion zeigt.

Es gibt zwei Stufenarten, die auf das Profil wirken: Zum einem die Stufen auf Inseln ("raue" Inseln) und zum anderem die Ränder von "glatten" Inseln mit unterschiedlicher Höhe. Daher haben für "glatte Inseln" die Korngrenzen zwei Auswirkungen auf das Profil: als Stufenkanten und als Inhomogenitäten (Störstellen an der Korngrenze). Für die "rauen" Inseln ist die Korrelationslänge der Stufen ξ_{step} durch die Korngrenzen ξ_{inh} begrenzt:

$$\xi_{\text{step}} \leq \xi_{\text{inh}} \quad (6.2)$$

Ist ξ_{inh} sehr groß, ist die Korrelation zwischen Stufen und Inhomogenitäten schwach. Wenn dagegen ξ_{inh} klein ist, also der Inseldurchmesser $\langle R \rangle$ vergleichbar mit der Terrassenlänge $\langle L \rangle$ ist, müssen die beiden Defekte korreliert sein. Das bedeutet, daß das Profil der Schulter durch die Faltung beider Verbreiterungen beschrieben werden muß, so daß beide Verbreiterungen verschmiert und nicht mehr direkt trennbar sind. Wegen der Faltung beider Schultern hat die resultierende Verbreiterung für eine isotrope Oberfläche die Form:

$$I_s(K_{\parallel}, K_{\perp}, d) = I_{\text{step}} \otimes I_{\text{inh}} \propto \frac{1}{(K_{\text{Hwb}}^2 + K_{\parallel}^2)^{3/2}} \quad (6.3)$$

$$\text{mit } K_{\text{Hwb}} \propto \frac{1}{\xi_{\text{inh}}} + \frac{1 - H(K_{\perp}, d)}{\xi_{\text{step}}}$$

wobei \otimes die Faltung bezeichnet und $H(K_{\perp}d)=H(2\pi S)$ in Gl.(6.3) die Fouriertransformierte der Stufenhöhenverteilung ist (vgl. Gl.(2.38)). Gl.(6.3) gilt zunächst für ein eindimensionales Modell. Um dieses Modell auf zwei Dimensionen zu erweitern, wird eine isotrope Phasenkorrelationsfunktion [Wollschläger 1987, 1990]:

$$\vartheta(r) \propto \exp\left(-\frac{r}{\xi}\right) \quad (6.4)$$

angenommen, wodurch das Lorentzprofile der diffusen Schulter durch die Potenz 3/2 modifiziert wird.

Nach diesem Modell kann man aus den Halbwertsbreiteszillationen die mittlere Terrassenlänge quantitativ bestimmen (siehe §2.2.). Für die 3 MI dicke Silberschicht ergibt die Analyse des Oszillationsanteil der Halbwertsbreite der Schulter, daß an der Oberfläche im wesentlichen nur Einfachstufen existieren [Wollschläger 1990], da die Fouriertransformierte der Stufenhöhenverteilung durch:

$$H(K_{\perp}) = \cos(K_{\perp}d_{\text{Ag}}) = \cos(2\pi S_{\text{Ag}}) \quad (6.5)$$

beschrieben wird. Aus Gl.(2.38) ergibt eine mittlere Terrassenlänge $\langle L \rangle = 8.75 a_{\text{Ag}} = 2.5 \text{ nm}$

Die Oszillation der Halbwertsbreite für die 4 MI dicke Silberschicht zeigt, daß hier auch Doppelstufen oder mehrere Lagen vorliegen, da die Fouriertransformierte der Stufenhöhenverteilung durch:

$$H(K_{\perp}) = (1-\sigma)\cos(2\pi S_{\text{Ag}}) + \sigma\cos(4\pi S_{\text{Ag}}) \quad (6.6)$$

beschrieben wird, wobei der Anteil der Doppelstufen mit σ bezeichnet wird. Bei der hier erzeugten 4 MI dicken Ag-Schicht liegt der Anteil an Doppelstufen bei 26%. Die mittlere Terrassenlänge läßt sich aus der Verbreiterung bei gegen-Phase gemäß [Wollschläger 1990]:

$$\frac{a \text{Hwb}_{\text{gegen-Phase}}}{2\pi} = 2 \frac{(1-\sigma)}{\langle L \rangle} \quad (6.7)$$

bestimmen. Aus Gl.(6.6) und Gl.(6.7) ergibt die mittlere Terrassenlänge $\langle L \rangle = 4.2 a_{\text{Ag}} = 1.2 \text{ nm}$.

Um die vertikale Rauigkeit der Ag-Schicht zu analysieren, ist es notwendig, die Schulter durch Stufen von der durch Inhomogenitäten zu trennen. Dieses ist hier nicht möglich, da die Halbwertsbreite beider Schultern ähnlich ist.

6.3 Diskussion

Das Wachstum von Ag auf Si(111)-7x7 und die Struktur der Schicht wurden mit verschiedenen Methoden, wie SPA-LEED [Thielking 1993], RHEED [Jalochowski 1988, Tringides 1992], RBS [Smith 1990], SEM [Hanbücken 1984], TEM [Takayanagi 1985] und STM [Tosch 1988] intensiv untersucht. In diesen Arbeiten wurde vor allem die Größenverteilung von Inseln untersucht. Hier dagegen wurde zusätzlich der Einfluß der atomaren Stufen auf die Ag-Schichten studiert.

Im §6.2 wurde gezeigt, daß auf den ultradünnen Silberschichten atomare Stufen vorliegen, die von SPA-LEED nachgewiesen werden können. Die mittlere Terrassenlänge $\langle L \rangle$ der 3ML dicken Schicht ist ungefähr $9 a_{\text{Ag}}$. Thielking hat gezeigt [Thielking 1992], daß der mittlere Inseldurchmesser $\langle R \rangle$ bei 120 K gewachsenen 2-5 ML dicke Silberschichten unabhängig von der Bedeckung ungefähr $10 a_{\text{Ag}}$ beträgt, d.h. bei der 3ML dicken Schicht ist:

$$\langle R \rangle \approx \langle L \rangle \approx 10 \quad (6.8)$$

Diese Analyse bedeutet, daß die 3ML dicke Schicht im wesentlichen aus vielen Inseln besteht, die einzelnen Inseln glatt, aber unterschiedlich hoch sind. Wird die Bedeckung erhöht, verringert sich die mittlere Terrassenlänge auf $\langle L \rangle \approx 4 a_{\text{Ag}}$ und ist daher kleiner als $\langle R \rangle \approx 10 a_{\text{Ag}}$. Das weist deutlich darauf hin, daß auf einer Insel atomare Stufen vorliegen, die Insel also rauh ist.

Im Kapitel 4 wurde diskutiert, daß die Leitfähigkeit dünner Schichten wegen der diffusen Grenzstreuung von der Grenzflächenrauigkeit abhängt. Die Silberschicht auf der Si(111)-Oberfläche hat zwei Grenzflächen (zum Vakuum und zum Substrat Si(111)). Wenn eine bei tiefer Temperatur hergestellte Schicht getempert wird, werden die Defekte in der Schicht und an den Grenzflächen ausgeheilt, so daß sich die Leitfähigkeit der Schicht bis zu einer Ausheiltemperatur verbessert, bei der die Schicht zerstört wird. Dieses Verhalten wurde von Schad [Schad 1991] bei einer 5 ML dicken Silberschicht beobachtet, die bei 90 K hergestellt und anschließend sie getempert wurde. Durch Tempern stieg die Leitfähigkeit monoton mit der Tempertemperatur bis 220 K an. Nach Tempern über 220 K sank die Leitfähigkeit wieder, da die Schicht aufbrach. Die SPA-LEED Ergebnisse bestätigen diesen Einfluß der Morphologie auf die Leitfähigkeit. Die 4ML dicke Schicht ist nach dem Aufdampfen bei 120 K rauh. Durch Tempern bis 200 K verringert sich das Oszillationsverhalten der diffusen Schulter (Abb. 6.3.b.), bis es vollständig verschwindet. Bis zu dieser Temperatur sind die Reflexe des Substrats noch nicht sichtbar. Daher ist die Oberfläche der Ag-Schicht (Grenzfläche der Schicht zum Vakuum) glatter geworden, und die Schicht blieb noch vollständig geschlossen.

Nach Tempern bei höheren Temperaturen tauchen die Substratreflexe wieder auf (Abb.6.1.d). Die Schicht reißt also auf. Zur Steigerung der Leitfähigkeit trägt nicht nur das Ausheilen der Grenzfläche zum Vakuum bei, sondern auch das Ausheilen von Volumendefekten und Defekten an der Grenzfläche zum Substrat, die mit SPA-LEED nicht erfaßt werden können.

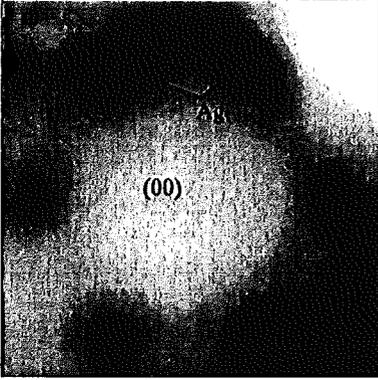
7.1 Herstellung der Basisschicht

7.1.1 "Optimale" Bedingung für Herstellung

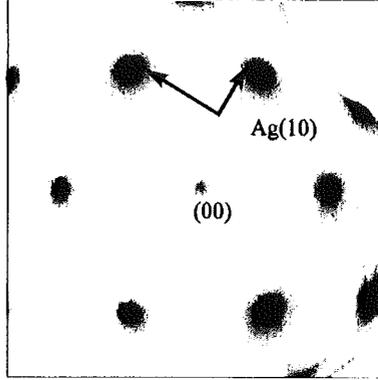
Die Basisschicht wurde auf einem Si(111)-7x7 Substrat aufgedampft. Um eine möglichst optimale Basisschicht herzustellen, wurden die Basisschichten bei verschiedenen Substrattemperaturen und mit unterschiedlichen Aufdampfpraten präpariert. Abb.7.2 zeigt einige zweidimensionale Beugungsbilder von Basisschichten, die bei verschiedenen Wachstumsbedingungen hergestellt wurden. Aus der Symmetrie der Beugungsbilder ist sofort ersichtlich, daß sämtliche Basisschichten bei Wachstumstemperaturen von 130 K - 700 K eine Ag(111) Oberfläche aufweisen. Eine genaue Analyse der LEED-Bilder zeigt, daß die Qualität der Oberflächen stark von der Herstellungsbedingungen und sogar auch von der Schichtdicke abhängt. Das LEED-Bild einer 100 Ml dicken, bei 130 K gewachsenen Schicht ist viel diffuser als das von einer bei 300 K gewachsenen Schicht (vgl. Abb.7.2 (a) und (b)). Das bedeutet, daß die laterale Ordnung der bei 130 K aufgedampften Schicht viel schlechter ist als die der bei 300 K aufgedampften Schicht. Wird die Wachstumstemperatur auf 700 K erhöht, ändert sich das Wachstumverhalten vollkommen. In Abb. 7.2(c) erkennt man neben den Silberreflexen zusätzlich Reflexe des Si(111)-Substrats und weitere Facettenreflexe. Silber wächst also bei 700 K im Stranski-Krastanow-Mode (siehe §3.1). Dieses wird auch in der Literatur berichtet [Lelay 1983, Venables 1980, Katayama 1991]. Beim Aufdampfen bei dieser Substrattemperatur bildet die erste Monolage eine $\sqrt{3} \times \sqrt{3} R30^\circ$ Überstruktur aus. Bietet man mehr als eine Monolage an, so wächst das zusätzliche Silber in dreidimensionalen Ag(111) Inseln auf der rekonstruierten Oberfläche. Wegner hat das Wachstum von Ag-Schichten im Monolagenbereich auf der $\sqrt{3} \times \sqrt{3} R30^\circ$ rekonstruierten Si(111) Oberfläche untersucht [Wegner 1993]. Er hat gezeigt, daß Ag-Schichten, die bei 130 K auf der $\sqrt{3} \times \sqrt{3} R30^\circ$ Fläche aufgedampft werden, ab einer Schichtdicke von 4 Ml geschlossen. sind. Dagegen ist hier die 100 Ml dicke Schicht bei 700 K immer noch nicht vollständig geschlossen. Das Wachstum bei höheren Temperaturen ist daher im wesentlichen durch thermodynamische Effekte, das bei tiefen Temperaturen durch kinetische Effekte bestimmt. (vgl. Abb. 3.1). Aus Gl.(3.1) erkennt man, daß für die Freien Oberflächenenergien die Ungleichung

$$\mu_{\text{Ag}(111)} + \mu_{\text{Ag}(111)-\sqrt{3} \times \sqrt{3}} > \mu_{\sqrt{3} \times \sqrt{3}} \quad (7.1)$$

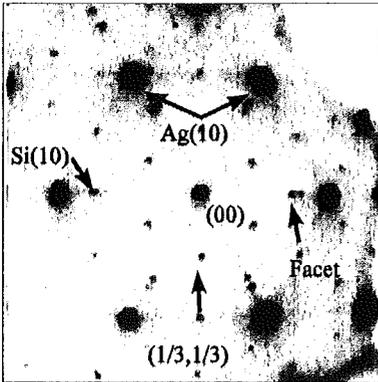
gelten muß, wobei $\mu_{\text{Ag}(111)}$, $\mu_{\sqrt{3} \times \sqrt{3}}$ und $\mu_{\text{Ag}(111)-\sqrt{3} \times \sqrt{3}}$ die Freien Oberflächenenergien der Ag(111), der $\sqrt{3} \times \sqrt{3} R30^\circ$ Unterlage und der Grenzfläche zwischen ihnen bezeichnen. Da sowohl die Substrat- als auch die Silberreflexe sehr scharf sind, müssen sowohl die



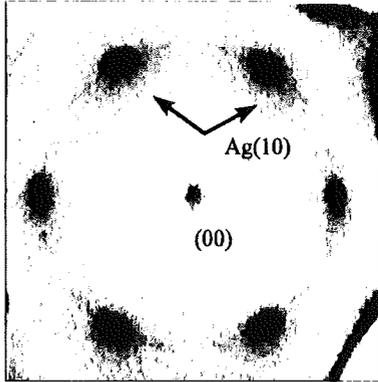
a) 100MI / 130K



b) 100MI / 300K



c) 100MI / 700K



d) 50MI / 300K

Abb. 7.2 2D LEED-Bilder von dicken Ag-Schichten, die bei verschiedenen Wachstumstemperaturen hergestellt wurden. ($E=84$ eV)

Silberinseln als auch die unbedeckte Unterlagenbereiche sehr groß sein. Berücksichtigt man die Mengen des aufgedampften Silbers, so ist offensichtlich, daß die Silberinseln sehr hoch und steil sind. Da die Silberschichten nicht geschlossen sind, werden in dieser Arbeit Schichten benutzt, die bei geringeren Substrattemperaturen hergestellt wurden.

Abb. 7.2.d zeigt das LEED Bild einer 50 MI dicken, bei 300 K gewachsenen Silberschicht. Aus der azimutalen Verbreiterung der Ag(10) Reflexe ist ersichtlich, daß die Ag-Schicht Rotationsmosaik aufweist (siehe §6.1 und vgl Abb. 6.1). Aus diesen Untersuchungen ergibt sich, daß die optimale Wachstumstemperatur für eine geschlossene Ag(111)- Schicht zwischen 300 K und 700 K liegt, und die Schicht dicker als 50 MI sein soll. Abb. 6.3.(b) zeigt, daß eine 100 MI dicke, bei 300 K gewachsene Silberschicht schon ein sehr gutes LEED-Bild aufweist. Die Qualität dieser Basisschichten konnten weiter gesteigert werden, indem diese Schichten bei 450 K getempert wurden. Wurden die Schichten bei noch höheren Temperaturen getempert, so traten wieder Substratreflexe auf. Die geschlossene Ag-Schicht riß also auf.

7.1.2 Quantitative Charakterisierung der Basisschichten

Um die Basisschichten quantitativ zu charakterisieren, ist die Analyse der LEED-Profile notwendig. Dazu werden Schnitte durch die Profile bei unterschiedlichen Streubedingungen im Hinblick auf ihr Anteile analysiert. Abb 7.3 zeigt die Halbwertsbreite des (00) Reflexes in Abhängigkeit von der Streuphase bei den 100 MI dicken Schichten, bei 130 K und 300 K aufgedampften Schichten. Es zeigt sich, daß, abgesehen von schwachen Oszillationen, die Halbwertsbreite monoton mit der Streuphase S ansteigt. Dieser monotone Anstieg der Halbwertsbreite ist auf Kippmosaik der Ag-Schicht zurückzuführen [Henzler 1990]. (§2.2.3.).

Die zusätzlichen Oszillationen der Halbwertsbreite werden durch atomare Stufen an der Oberflächen hervorgerufen. Da diese Oszillationen der Halbwertsbreite vergleichsweise schwach sind (insbesondere bei getemperten Schichten), wird die Oberflächenmorphologie der Silberbasisschichten im wesentlichen durch Kippmosaik dominiert. Da die Verbreiterung aller Profile symmetrisch ist, ist auch der Mosaikwinkel symmetrisch um die Oberflächennormale des Substrats verteilt. Wie in §2.2.3 diskutiert wurde, werden Oberflächen mit Mosaikstruktur durch den mittleren Mosaikwinkel (genauer die Standardabweichung θ_m der Mosaikwinkelverteilung) charakterisiert. Aus Gl.(2.43) kann man aus der mittleren Steigung der Halbwertsbreite mit der Streuphase den mittleren Mosaikwinkel θ_m quantitativ bestimmen. Aus Abb. 7.3 sieht man, daß der mittlere

Mosaikwinkel θ_m von der Wachstumstemperatur abhängt und sich durch Tempern verringert. Die Mosaikstruktur wird durch die Stufen des Siliziumsubstrats und durch die unterschiedlichen Gitterkonstanten von Silizium und Silber verursacht. In Tabelle 7.1 ist exemplarische die Abhängigkeit des Mosaikwinkels von unterschiedlichen Präparationsbedingungen aufgeführt. Solche Mosaikstrukturen sind auch mit LEEM nachgewiesen worden [Tromp 1993]. Andere chemische Verunreinigungen konnten nicht mit Augerelektrospektrometrie nachgewiesen werden. Die besten so hergestellten Silberbasisschichten weisen eine sehr gute einkristalline Qualität mit einem nur geringern Mosaikwinkel auf, so daß sie gute Wachstumsbedingungen für das Aufdampfen zusätzlicher Deckschichten gewährleisten.

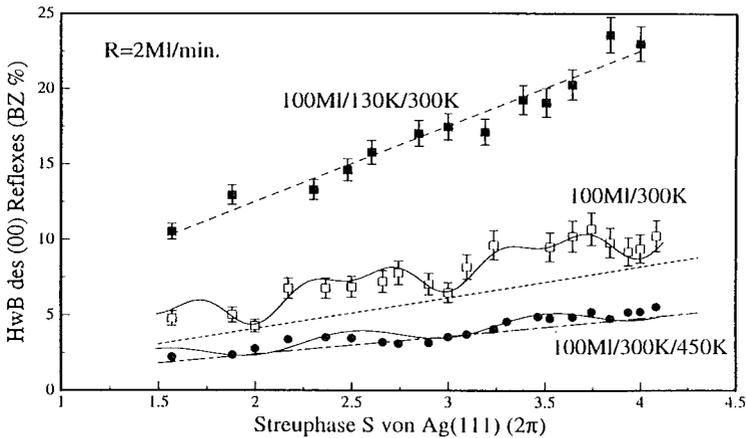


Abb. 7.3. Halbwidthbreite der (00) Reflexe gegen die Streuphase. Die monoton wachsende Verbreiterung der Reflexe mit der Streuphase ist auf Mosaik zurückzuführen und die zusätzliche schwachen Oszillationen auf atomaren Stufen.

Tabelle 7.1. Zusammenstellung der Mosaikwinkel und der Wachstumsbedingungen. T_s bezeichnet die Substrattemperatur, T_a die Tempertemperatur und R die Aufdampftrate. Sofern nicht anders angegeben, sind alle Schichten 100 MI dick.

T_s (K)	T_a (K)	R (Ml/min.)	θ_m (Grad)
130	300	2	0.96
300	ohne	2	0.36
300	450	2	0.22
300	ohne	0.8	0.24
300	450	0.8	0.11 ¹
300	450	0.8	0.15 ¹
300	ohne	0.8	$\approx 0^2$

7.2 Wachstum von Ag auf Ag(111) bei 130K

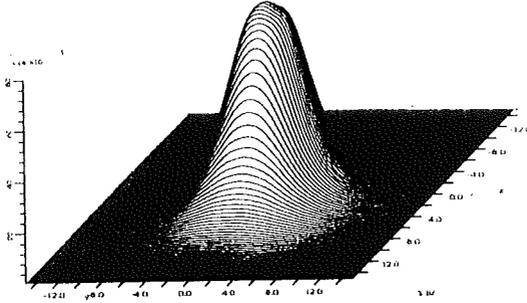
In dieser Arbeit wird das homoepitaktische Wachstum von Silberdeckschichten auf Ag(111) Basisschichten untersucht. Für homoepitaktische Systeme sind im wesentlichen atomare Stufen die Oberflächendefekte. Die Morphologie der Oberfläche wird durch die vertikale und die laterale Rauigkeit charakterisiert. Die theoretische Grundlage für die Analyse gestufter Oberflächen mit SPA-LEED wurde schon in §2.2.1 vorgestellt.

Abb. 7.4 zeigt einige zweidimensionale LEED-Bilder (00 Reflex) bei Gegen-Phase $S=2.5$ für Silberschichten, bei denen verschieden dicke zusätzlichen Silberdeckschichten auf Basisschichten bei 130 K aufgedampft wurden. Man sieht, daß der (00) Reflex mit zunehmender Bedeckung stärker verbreitert und die diffuse Schulter in Nebenmaxima (Satelliten) aufspalten. Im folgenden wird die Oberflächenrauigkeit der Deckschichten in Abhängigkeit von den Aufdampfbedingungen detailliert aus der Profilanalyse ermittelt.

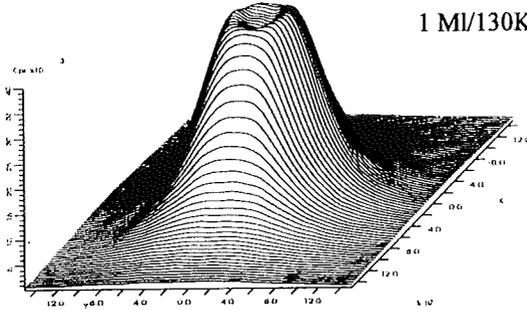
¹ Die Untersuchungen des weiteres Wachstums von Silber wurden auf diesen Basisschichten durchgeführt.

² Diese Schicht ist 50 Ml dick. Sie weist viele Rotationsmosaik auf (siehe Abb. 7.2.d)

0.75 ML/130K



1 ML/130K



2.5 ML/130K

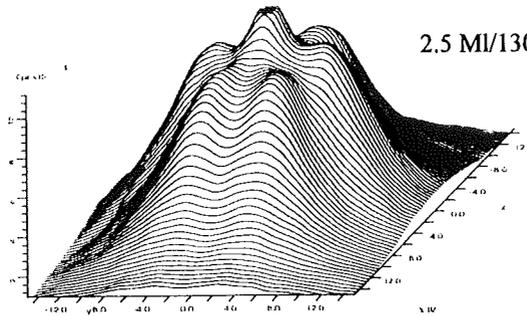


Abb.7.4. 2D LEED-Bilder von unterschiedlichen dicken Silberdeckschichten, die bei 130K aufgedampft wurden. All LEED-Bilder wurden bei Gegen-phase $S=2.5$ ($E=42.5\text{eV}$) aufgenommen.

7.2.1 Die vertikale Rauigkeit

Um die Oberflächenrauigkeit quantitativ zu erfassen, ist es notwendig, Reflexprofile bei unterschiedlichen Streubedingungen eingehend zu analysieren. Bei atomar gestuften Oberflächen variieren die Profile periodisch mit der Streuphase S (in diesem Kapitel wird die Streuphase auf $\text{Ag}(111)$ -Stufen bezogen, d.h. $2\pi S = K_{\perp} d_{\text{Ag}(111)}$). Abb.7.5. zeigt die bei verschiedenen Streuphasen S gemessenen eindimensionalen Profile einer bei 130 K aufgedampften 3 MI dicken Silberdeckschicht. Das Profil ist bei der In-Phase Bedingung $S=3$ scharf. Weicht die Streuphase zunehmend von dieser In-Phase Bedingung ab, so wird das Profil immer diffuser bis zur Gegen-Phase $S=2.5$. Da die Profile bei geringeren Streuphasen wieder schärfer werden, liegen auf der Oberfläche atomare Stufen vor.

Die gemessenen Profile lassen sich sehr gut in eine zentrale Spitze und eine diffuse Schulter (aufgrund atomarer Stufen auf der Oberfläche) aufteilen:

$$G(K_{\parallel}, K_{\perp}) = G_0(K_{\perp})G_{\text{In-Phase}}(K_{\parallel}) + [1 - G_0(K_{\perp})] \phi_{\text{step}}(K_{\parallel}, K_{\perp}) \quad (7.2)$$

Hierbei ist zubeachten, daß die Form der zentralen Spitze ($G_{\text{In-Phase}}(K_{\parallel})$ in Gl.(7.2)) bei einem idealen Substrat allein durch die Instrumentenfunktion hervorgerufen wird und ihre Halbwertsbreite durch die Transferwerte des Instruments bestimmt wird. Dagegen ist aber hier die Halbwertsbreite der zentralen Spitze zusätzlich durch die Mosaikstruktur der Basisschicht beeinflusst. Daher nimmt die Halbwertsbreite der zentralen Spitze linear mit der Streuphasen zu, so daß in diesem Fall die "Transferweite" oder die Auflösung des "Instruments" wesentlich durch den Mosaikwinkel θ_m beeinflusst ist. Dadurch kann man die Oberflächenrauigkeit analysieren, sofern die mittleren Terrassenlänge kleiner als die mittlere Mosaikgröße ist.

Berücksichtigt man die zusätzliche Profilverbreiterung durch die Mosaikstruktur der Basisschicht, so können alle gemessenen Profile sehr gut mit Gl.(7.2) beschrieben werden. Wie in §2.2.1 diskutiert wurde, variiert der Zentralreflex $G_0(K_{\perp})$ mit der Streuphase stärker mit steigender vertikaler Oberflächenrauigkeit. Abb.7.6 zeigt die Variation $G_0(K_{\perp})$ des Zentralreflexes mit der Streuphase S für verschieden dicke Silberdeckschichten, die bei 130 K aufgedampft wurden. Folgt man Gl.(2.20), so kann man aus der Variation $G_0(K_{\perp})$ des Zentralreflexes mit der Streuphase S die vertikale Oberflächenrauigkeit Δ bestimmen. Für verschiedene Deckschichtdicken wurde diese Analyse angewendet. Abb.7.7. zeigt die quadratische Oberflächenrauigkeit Δ^2 in Abhängigkeit von der zusätzlichen Silberbedeckung, das bei 130 K aufgedampft wurde. Man sieht deutlich, daß die Oberflächenrauigkeit mit der Bedeckung monoton ansteigt, die Oberfläche also durch zusätzliches Aufdampfen rauher wird. Der lineare Anstieg der quadratischen

Oberflächenrauigkeit Δ^2 mit der Bedeckung zeigt, daß das zusätzliche Silber auf den Ag(111)-Basisschichten bei dieser Temperatur ($T_s=130$ K) statistisch wächst (vgl.Gl.(3.5)). Wie in §3.3 diskutiert wurde, ist hierbei zubeachten, daß statistisches Wachstum nur bedeutet, daß die Atome nicht vertikal diffundieren können, also die Atome während des Wachstums nicht über atomare Stufen in andere Schichten wechseln können. Die laterale Diffusion der Atome kann nicht durch diese vertikale Oberflächenrauigkeitsanalyse ausgeschlossen werden. Daher ist eine laterale Rauigkeitsanalyse notwendig, um diese Prozesse während des Wachstums genauer zu erfassen.

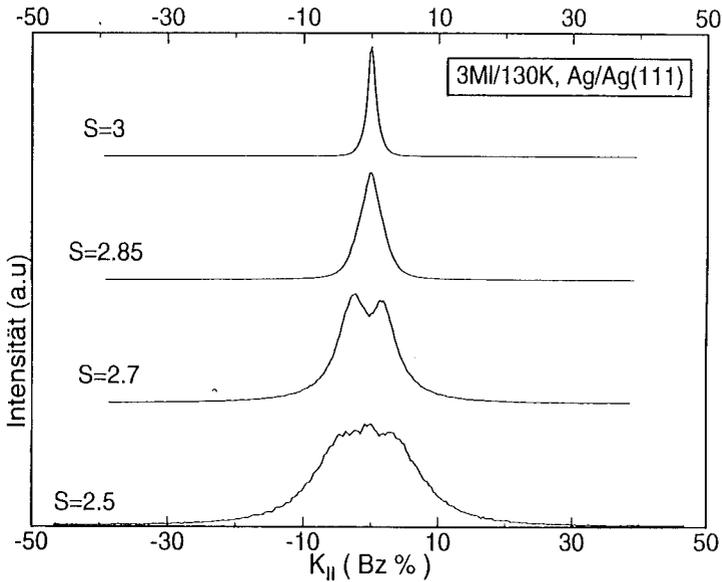
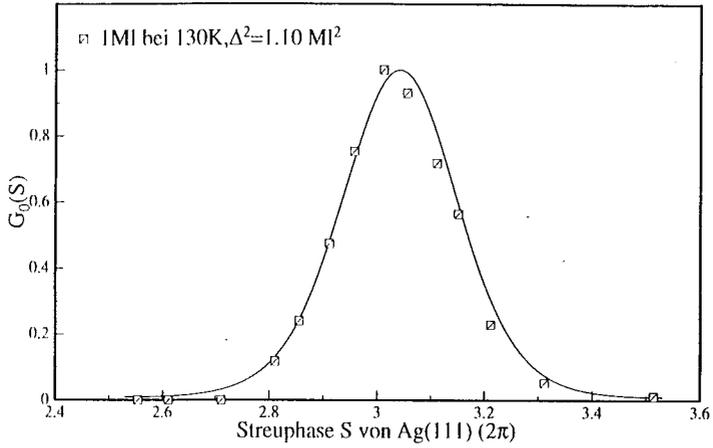
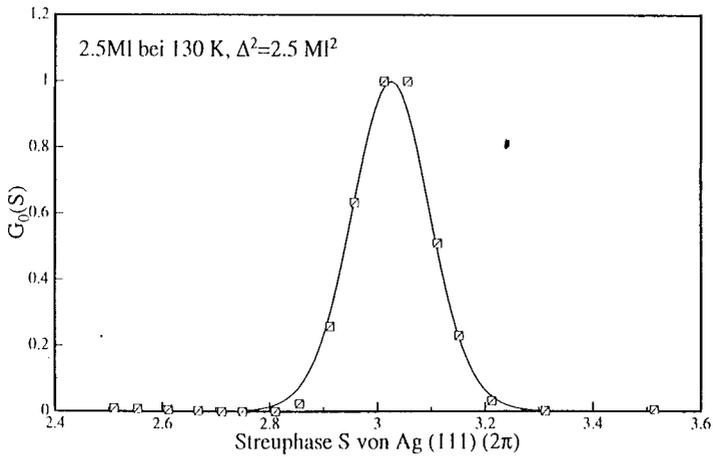


Abb.7.5. Bei verschiedenen Streubedingungen gemessene 1D LEED Profile für eine bei 130 K aufgedampfte 3ML dicke Silberschicht.



(a)



(b)

Abb.7.6. Variation von $G_0(K_1)$ mit der Streuphase. Es wurde (a) 1 MI bei 130 K. b) 2.5 MI bei 130 K aufgedampft.

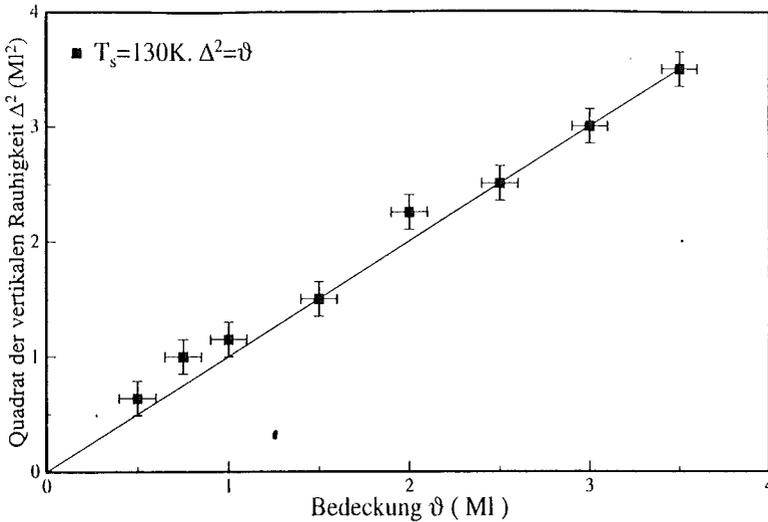


Abb.7.7 Die Abhängigkeit der quadratischen Oberflächenrauhigkeit Δ^2 von der zusätzlichen Silberbedeckung. Das zusätzliche Silber wurden bei 130 K aufgedampft.

7.2.2 Die laterale Rauigkeit

Wie im §2.2.1.2 diskutiert wurde, erhält man aus der diffusen Schulter (vgl. Gl.(7.2)) Informationen über laterale Defektabstände, bei atomar gestuften Oberflächen also Terrassenlängenverteilung, die im wesentlichen durch die mittlere Terrassenlänge charakterisiert wird. Darum soll im folgenden die diffuse Schulter in Abhängigkeit von der Schichtpräparation genau analysiert werden.

Die Form der diffusen Schulter hängt deutlich von der Bedeckung ab (vgl. Abb.7.4). Für Schichten der Dicke $\theta \leq 0.5$ MI läßt sich die Schulter durch ein einfaches lorentzförmiges Profil sehr gut beschreiben (vgl. Gl.(2.24)), dessen Halbwertsbreite näherungsweise nicht von der Streuphase abhängt. Wie in §2.2.1 gezeigt wurde, wird die Oberfläche in diesem Fall sehr gut durch das Zwei-Schichten-Modell beschrieben. Die Terrassenlängenverteilung ist geometrisch und die mittlere Terrassenlänge bei einer 0.5 MI dicken Schicht beträgt $23 a_{Ag}$.

Wird die Bedeckung erhöht, tauchen Nebenmaxima im Profil auf (siehe Abb. 7.4 und Abb.7.5): die diffuse Schulter spaltet in zwei gegen $K_{||}=0$ lateral verschobene lorentzförmige Profile auf (vgl.Gl.(2.28)). Aber hier variieren periodisch mit der Streuphase S sowohl die

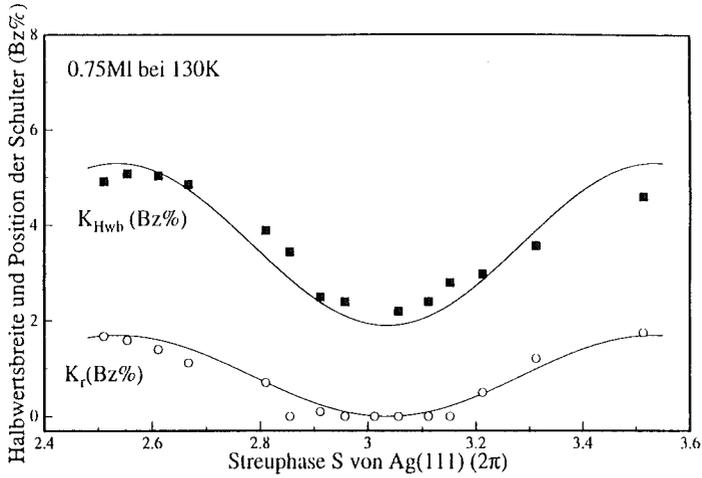
Halbwertsbreiten K_{Hwb} als auch die Positionen K_r der verschobenen lorentzförmigen Profile. Dieses Verhalten wird in Abb.7.8 anhand von zwei verschiedenen dicken, bei 130 K aufgedampften Deckschichten illustriert. Aufgrund der Diskussion in §2.2.1.2 kann man daraus folgendes schließen:

1) Die Variation der Halbwertsbreite und der Position der diffusen Schulter zeigt, daß die Oberfläche über mehre Schichten rauh sein muß. Aus dem kosinusförmigen Verhalten der Halbwertsbreite der diffusen Schulter kann man schließen, daß im wesentlichen an der Oberfläche Einfachstufen vorliegen (vgl.Gl.(2.37)).

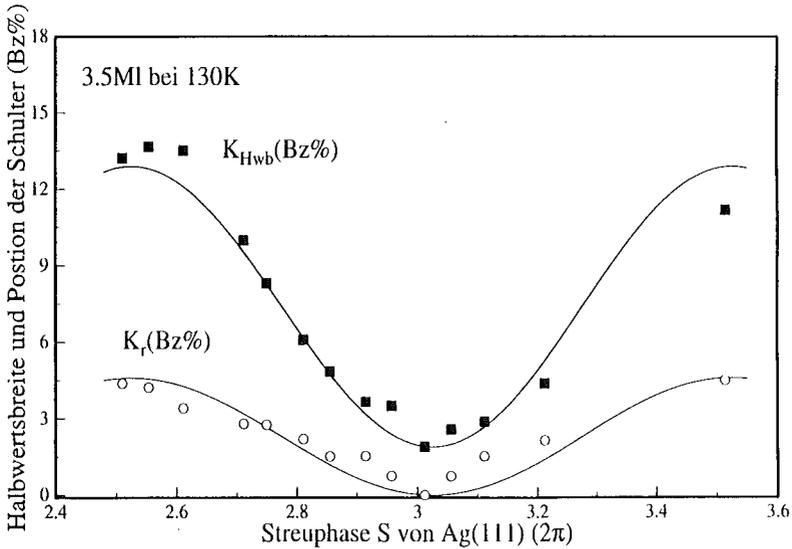
2) Da die Schulter in zwei lateral versetzte Anteile (Satelliten) aufspaltet, muß die Terrassenlängenverteilung ein Maximum bei einer charakteristischen Terrassenlänge besitzen. Eine geometrische Terrassenlängenverteilung würde dagegen ein einfaches lorentzförmiges Profil der Schulter hervorrufen.

Obwohl sowohl die Halbwertsbreite K_{Hwb} als auch die Position K_r der Schulter (bei gleicher Streuphase) mit der Bedeckung ansteigt, bleibt das Verhältnis beider $\eta = K_r / K_{Hwb}$ (bei gleicher Streuphase) im Bedeckungsbereich von 0.75 MI bis 3.5 MI annähernd konstant.

Gl.(2.31) folgend kann man aus diesem Verhältnis die skalierte Standardabweichung x der Terrassenlängenverteilung berechnen. Abb.7.9 zeigt, daß die skalierte Standardabweichung x nahe zu bedeckungsunabhängig ist, da auch das Verhältnis von Aufspaltung zu Verbreiterung der Satelliten nicht mit der Bedeckung variiert. Dieses Verhalten weist darauf hin, daß die Terrassenlängenverteilung einem Skalengesetz folgt.



a)



b)

Abb. 7.8. Die Variation der Halbwertsbreite und der Position der diffusen Schulter mit der Streuphase: (a) 0.75 ML, (b) 3.5 ML, Beide wurden Schichten bei 130 K aufgedampft und nicht getempert.

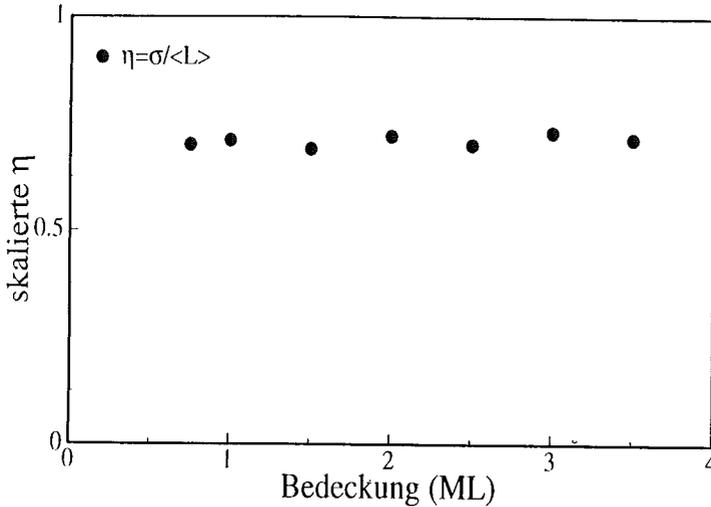


Abb.7.9 Bedeckungsabhängigkeit der skalierten Standardabweichung η der Terrassenlängenverteilung für Schichten, die bei 130 K aufgedampft wurden.

Gl.(2.32) folgend kann man die mittlere Terrassenlänge $\langle L \rangle$ mit Hilfe der skalierten Standardabweichung η aus der Halbwertsbreite der Satelliten bei Gegen-Phase Bedingung bestimmen. Die Standardabweichung $\sigma = \eta \langle L \rangle$ ergibt sich zwanglos aus der Beziehung. Die Abhängigkeit der mittleren Terrassenlänge $\langle L \rangle$ und der Standardabweichung σ von der Bedeckung ist in Abb. 7.10 (a) dargestellt. Man sieht deutlich, daß sowohl die mittlere Terrassenlänge als auch die Standardabweichung mit steigender Bedeckung abnehmen. Beide folgen einem Potenz-Gesetz (Power-Law). Da die beiden charakteristischen Größen $\langle L \rangle$ und σ skalieren, ist die Potenz beider Verläufe gleich. Aus einem log-log-Plot wurde hier einem Potenz von ca. $2/3$ bestimmt, d.h.

$$\langle L \rangle, \sigma \propto \theta^{-2/3}$$

Abb. 7. 10 (b) zeigt, wie die mittlere Terrassenlänge und die Standardabweichung der Terrassenlängenverteilung für ein rein statistisches Wachstum von der Bedeckung abhängt, bei dem sowohl keine vertikale als auch keine laterale Diffusion stattfindet. Die beobachteten mittleren Terrassenlängen sind im Vergleich deutlich länger. Daher müssen bei der hier benutzten Substrattemperatur die aufgedampften Adatome noch deutlich lateral diffundieren können, während die vertikale Diffusion gehindert ist, wie im vorangegangenen Abschnitt dargestellt wurde.

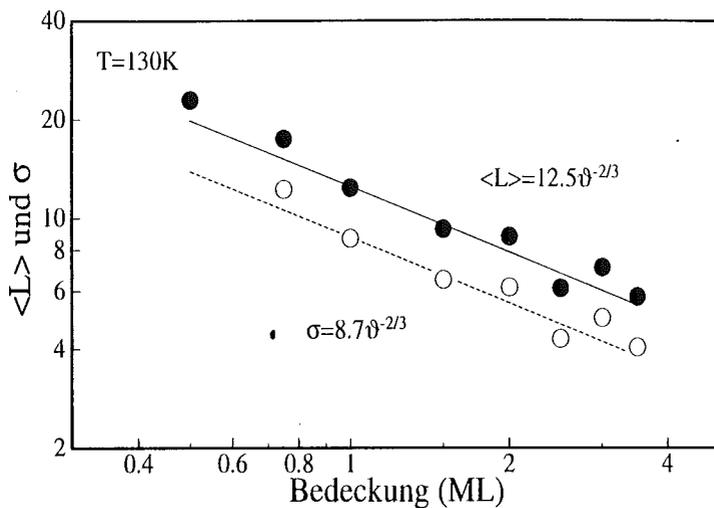


Abb.7.10 (a) Die Bedeckungsbhängigkeit der mittleren Terrassenlänge $\langle L \rangle$ und der Standardabweichung σ der Terrassenlängenverteilung.

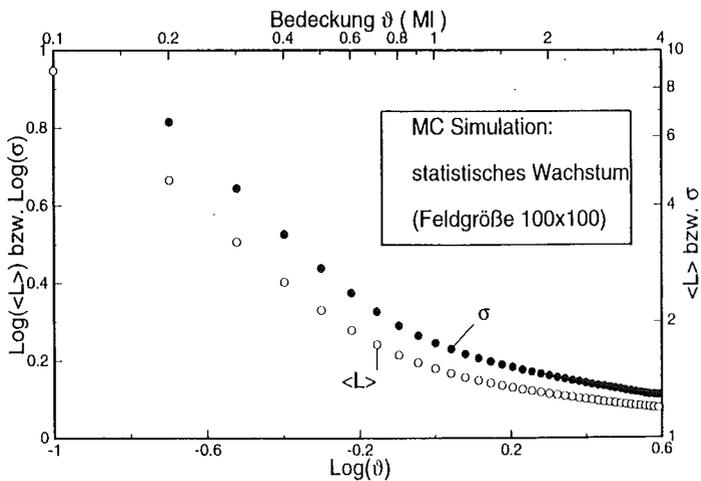


Abb.7.10(b) Die Bedeckungsbhängigkeit der mittleren Terrassenlänge $\langle L \rangle$ und der Standardabweichung σ der Terrassenlängenverteilung bei einem reinen statistischen Wachstum. (Monte-Carlo Simulation)

Nimmt man an, daß die Terrassenlängen einer Gammaverteilung folgen, so hat man mit der gemessenen mittleren Terrassenlänge $\langle L \rangle$ und der Standardabweichung σ sämtliche notwendigen Parameter bestimmt (vgl. Gl.(2.27)). In Abb.7.11. sind diese Terrassenlängenverteilungen $P(L)$ für verschiedene Bedeckungen dargestellt. Skaliert man die Terrassenverteilungen $P(L)$ mit mittleren Terrassenlänge $\langle L \rangle$, so sind alle Terrassenlängenverteilungen trotz verschiedener Bedeckungen identisch. Die skalierten Terrassenverteilungen:

$$P'(y) = \langle L \rangle P\left(\frac{L}{\langle L \rangle}\right) \quad (7.3)$$

sind im Inset von Abb.7.11 ebenfalls dargestellt.

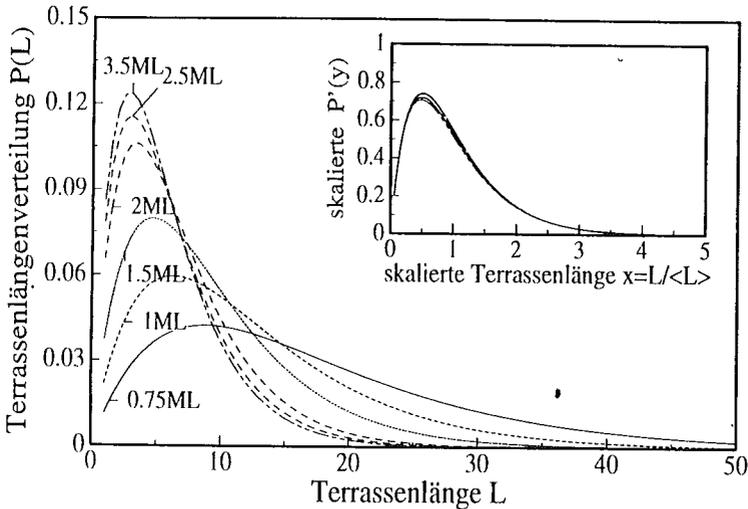


Abb.7.11 Die Terrassenlängenverteilung $P(L)$ für verschiedenen Bedeckungen θ . Im Inset ist die skalierte Terrassenlängenverteilung $P'(y) = \langle L \rangle P\left(\frac{L}{\langle L \rangle}\right)$ zu sehen.

Dieses Skalenverhalten bedeutet, daß die Terrassenverteilungen für verschiedene Bedeckungen ($\theta = 0.75 - 3.5$ ML) selbstähnlich sind und nur die mittlere Skala $\langle L \rangle$ sich mit zunehmender Bedeckung verringert.

Daß die mittlere Terrassenlänge mit steigender Bedeckung monoton abnimmt, kann man qualitativ verstehen, da andererseits die vertikale Rauigkeit mit der Bedeckung monoton

ansteigt (siehe §7.2.1). Allerdings können das Skalenverhalten der Terrassenlängenverteilung und das Potenzgesetz für die Abhängigkeit der mittleren Terrassenlänge und der Standardabweichung von der Bedeckung nicht durch vorliegende Theorien erklärt werden. Vielleicht verursacht diese anisotrope Diffusion das Potenz-Gesetz bzw. das Skalenverhalten.

7.3 Die Diffusionsenergien von Ag auf Ag(111)

Wie im Kapitel 3 diskutiert wurde, ist das homoepitaktische Wachstum von Metallen bei tiefen Temperaturen im wesentlichen durch kinetische Prozesse, wie z.B. die Aufdampfrate und Oberflächendiffusion, bestimmt, die wiederum von der Wachstumstemperatur abhängen. Die Oberflächendiffusion wird neben der Substrattemperatur vor allen durch die Diffusionsbarriereenergien bestimmt. Wie im letzten Abschnitt gezeigt wurde, erfolgt die Diffusion von Ag auf Ag(111) bei 130 K anisotrop (in lateraler und vertikaler Richtung). Dieses Verhalten kann man auf unterschiedliche Diffusionsbarrieren für die Diffusion auf einer glatten Terrasse und eine über atomare Stufe zurückführen. Es ist wünschenswert, diese atomistische Prozesse während des Wachstums genau zu erfassen. Unter bestimmten Bedingungen ist es möglich beide Diffusionsbarrieren aus der Bedeckungsabhängigkeiten der lateralen und vertikalen Rauhhigkeit zurückzuführen. Da beide Rauhhigkeit, wie im letzten Abschnitt gezeigt wurde, detailliert mit SPA-LEED untersucht werden, soll hier versucht werden, aus diesen Untersuchungen die Diffusionsbarrieren von Ag/Ag(111) zu bestimmen.

7.3.1 Die laterale Diffusionsbarrier

Um die laterale Oberflächendiffusionsbarriere zu bestimmen, wurde 0.5 ML Silber bei verschiedenen Temperaturen (130 K - 240 K) mit einer Aufdampfrate von 0.15 ± 0.05 ML/min aufgedampft. In diesem Bedeckungsbereich bilden sich im wesentlichen nur zweidimensionale Inseln, drei dimensionale Inseln können dagegen vernachlässigt werden. Diese Aussage wird auch durch die Profilanalyse bestätigt. Die Beugungsprofile lassen sich sehr gut in eine zentrale Spitze und ein diffuse Schulter aufteilen, deren Halbwertsbreite unabhängig von der Streuphase ist (vgl. Gl.(7.2)). Daher kann man die Oberfläche sehr gut durch ein Zwei-Schichten-Modell beschreiben. Darüber hinaus beträgt die vertikale Rauhhigkeit der bei verschiedenen Wachstumstemperaturen hergestellten Schichten $\Delta=(0.7 \pm$

0.07 d_{ag} , Diese Rauigkeit unterscheidet sich kaum von dem Wert $\Delta=0.5 d_{ag}$, der für ein ideales Schichtwachstum erreicht wird.

Aus der Halbwertsbreite der diffusen Schulter kann man die mittlere Terrassenlänge bestimmen, die stark von der Wachstumstemperatur abhängt. Die Abhängigkeit der mittlere Terrassenlänge von der Wachstumstemperatur ist in Abb.7.12 dargestellt. Dieses Verhalten läßt sich sehr gut durch einen Arrheniusplot mit einer charakteristische Energie von 30 meV beschreiben:

$$\langle L \rangle = \langle L \rangle_0 \exp\left(-\frac{\Delta E}{kT}\right) \quad \text{mit } \Delta E = 30 \text{ meV} \quad (7.4)$$

Wie in §3.2 diskutiert wurde, ist für geringe Bedeckungen die Inseldichte N_x proportional zum Quadrat der Stufendichte [Meyer 1987]. Da die Aufdampfrate für alle Wachstumstemperatur gleich ist (0.15 Ml/min.), erhält man aus Gl.(3.2) und Gl.(7.4) ebenfalls ein Arrheniusverhalten der Inseldichte:

$$N_x \propto \left(\frac{1}{\langle L \rangle}\right)^2 \propto \exp\left(-\frac{2\Delta E}{kT}\right) \quad (7.5)$$

Vergleicht man Gl.(7.5) mit Gl.(3.2) und berücksichtigt man, daß bei tiefen Temperaturen die kritische Keimgröße i^* sehr klein [Ernst 1992] ist, ergibt sich unter der Annahme einer kritischen Keimgröße von $i^*=1$ aus Gl.(7.4), Gl.(7.5) und Gl.(3.3) die laterale Diffusionsenergie aus

$$2\Delta E = E_n = \frac{E_d}{3} \quad (7.6)$$

Für Ag/Ag(111) beträgt daher die Diffusionsenergie $E_d = 6\Delta E = 0.18 \text{ eV}$. Da sich hier im wesentlichen nur zweidimensionale Inseln gebildet haben, ist E_d mit der lateralen Oberflächendiffusionsbarriere $E_{d\text{-ebene}} = 0.18 \text{ eV}$ identisch. Diese experimentell bestimmte Oberflächendiffusionsbarriere $E_{d\text{-ebene}}$ ist nahezu dem Wert der aus theoretischen Untersuchungen von Jones stammt [Jones 1990].

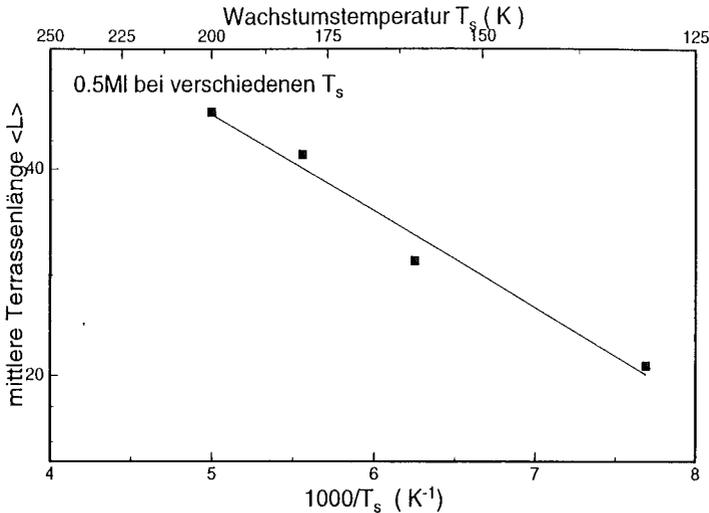


Abb.7.12. Abhängigkeit der mittleren Terrassenlänge $\langle L \rangle$ von der Wachstumstemperatur. Die Bedeckung war bei allen Messungen identisch ($\theta=0.5$ MI).

7.3.2 Die vertikale Diffusionsbarriere

Die Bestimmung der vertikalen Diffusionsbarriere E_{d-edge} (Diffusionsbarriere über die Stufenkanten) kann nicht so leicht durchgeführt werden, wie die eben durchgeführte Bestimmung der lateralen Diffusionsbarriere, da zur Zeit für diese Problemstellung keine ausführliche Theorie vorliegt. Kariotis hat jedoch ein Model entwickelt [Kariotis 1989], das vorhersagt, daß die Oberflächenrauigkeit Δ über ein Potenzgesetz von der Bedeckung θ abhängt:

$$\Delta = \theta^\gamma \quad (7.7)$$

Während im Fall des statistischen Wachstums die Rauftief mit der Potenz $\gamma=0.5$ wächst, wird das Schichtwachstum durch die Potenz $\gamma=0$ beschrieben. Im allgemeinen ist die Potenz γ temperaturabhängig. Daher sollte man im Prinzip aus dieser Temperaturabhängigkeit der Potenz die Diffusionsenergie über Stufenkanten erhalten können. Jedoch liegen bisher keine theoretischen Untersuchungen vor, die benötigt werden, um diese Analyse durchzuführen.

Daher wird in dieser Arbeit die vertikale Diffusionsbarriere durch Vergleich der experimentell gemessenen vertikalen Rauhhigkeit Δ mit Monte-Carlo Simulationen bestimmt.

Im Experiment wurden 2 Ml Silber bei verschiedenen Temperaturen (130 K - 200 K) aufgedampft. Die vertikalen Rauhhigkeiten für die unterschiedlichen Aufdampftemperaturen wurden durch die Analyse des Variation der zentralen Spitze gewonnen.

Der von Vvedensky et.al entwickelte Arrhenius-Hopping-Rate-Formalismus [Clarke 1987] wurde für die hier durchgeführten Monte-Carlo Simulation benutzt. Bei diesem Formalismus ist die Sprungrate eines aufgedampften Atoms auf der Oberfläche durch:

$$R_n = R_0 \exp\left(-\frac{E_A(n)}{kT}\right) \quad (7.8)$$

mit

$$E_A(n) = E_0 + n E_b \quad (7.9)$$

gegeben. Hier bezeichnet R_n die Sprungrate für ein Atom mit n lateralen Nachbaratomen, E_b die laterale Bindungsenergie zweier benachbarter Atome, $E_0 = E_A(n=0)$ die Diffusionsbarriere für ein Atom ohne laterale Nachbaratome (*monomer*), R_0 den Vorfaktor der Sprungversuchsfrequenz. Daher hängt die Sprungrate der Atome stark von der lokalen Konfiguration ab.

Die Simulation wurde auf einem quadratischen 50x50 Gitter durchgeführt. Die Diffusionsbarriere für ein *monomer* auf der glatten Terrasse wurde dem theoretischen Wert von Jones et.al ($E_0 = 0.12$ eV) gleich gesetzt (laterale Diffusion). Bei der Diffusion über atomare Stufenkanten erhöht sich die Barriere auf $E'_0 = E_0 + \Delta E_s$ (vertikale Diffusion), wobei ΔE_s die zusätzliche Energiebarriere an der Stufe bezeichnet. Theoretische Untersuchungen von Jones sagen eine Bindungsenergie $E_b = 0.29$ voraus. Erste SEM Experimente scheinen diesen Wert zu bestätigen [Jones 1990]. Für die Monte-Carlo-Simulation wurden die Aufdampfplätze der aufgedampften Atome per Zufallsverfahren ausgewählt. Anschließend wurde die Sprungwahrscheinlichkeit nach den Arrhenius-Hopping-Rate-Verfahren bestimmt (vgl. Gl.(7.8) und Gl.(7.9)). Wenn ein Atom eine stabile Konfiguration von vier lateralen Nachbaratomen erreicht hatte, konnte es nicht weiter diffundieren. Ein neu auf die Oberfläche gebrachtes Atom besaß 1000 Versuche, einen Platz zu wechseln. Anschließend wurde es nicht weiter bewegt. Hatte es allerdings schon zuvor eine stabile Konfiguration erreicht, so wurden weitere Sprungversuche nicht durchgeführt. Schon zuvor aufgedampfte Atome konnten während des Aufdampfens nicht weiter relaxieren. Dieses Verfahren verkürzte die Simulation im Vergleich zu einer vollständigen Monte-Carlo-Simulation wesentlich. Bei einer festgelegten Temperatur wurden jeweils 2Ml aufgedampft, und anschließend die vertikale

Rauhigkeit bestimmt. Die laterale Diffusionsbarriere $E_0 = 0.12$ eV und die Bindungsenergie $E_b = 0.29$ eV wurden unabhängig von der lokalen Konfiguration festgelegt. Für eine festgelegte Temperatur wurde die zusätzliche Diffusionsbarriere an der Stufenkante ΔE_s variiert. Die Abhängigkeit der Rauigkeit Δ von der zusätzlichen Barriere ΔE_s bei festgelegter Temperatur ist in Abb.7.13 (Inset) dargestellt. Die gemessene Rauigkeit der bei verschiedenen Temperaturen 2ML dicken Schichten ist auch in Abb.7.13 dargestellt. Vergleicht man die simulierten und gemessenen Rauigkeiten, so ergibt sich eine zusätzliche Diffusionsbarriere an Stufenkanten von $\Delta E_s \approx 0.05$ eV.

Jones et.al [Jones 1990] haben aus SEM Untersuchungen eine Diffusionsbarriere von $E_d = 0.15$ eV gefunden. Sie konnten mit dieser Method nicht die unterschiedliche Barrierenergie für die Diffusion auf flachen Terrassen und über Kanten ermitteln, wie das mit den hier vorgestellten SPA-LEED Untersuchungen möglich ist.

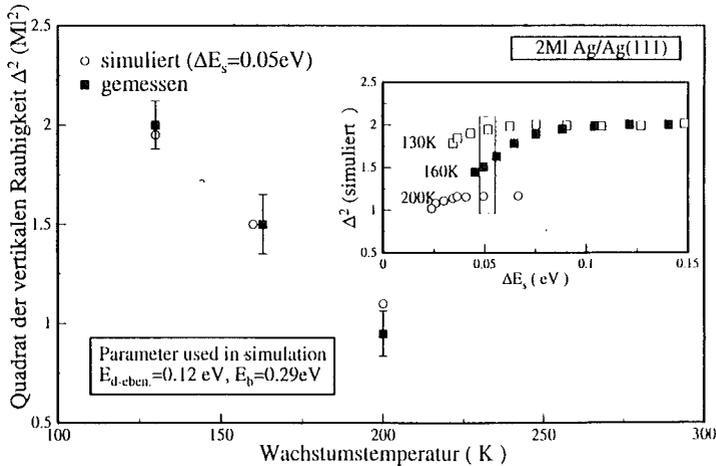


Abb.7.13. Die Abhängigkeit der vertikalen Rauigkeit von der Wachstumstemperatur. Inset: Abhängigkeit der Rauigkeit von der zusätzlichen Barrierenhöhe an Stufen, wie sie aus Monte-Carlo-Simulationen ermittelt wurden.

Weil in der Monte-Carlo Simulation eine weitere Relaxation schon vorhandener Atome nicht zugelassen wurde, ist die hier bestimmte zusätzliche Stufenbarriere ΔE , nur eine untere Grenze. Doch ergibt sich allein schon aus dieser Abschätzung, daß die Sprungrate über Kanten bei 130 K um den Faktor $\exp(\frac{\Delta E_s}{kT}) \approx 100$ geringer als die Diffusion auf einer flachen Terrasse ist.

7.4 Tempern der Ag Schichten

Die bei tiefen Temperaturen aufgedampften Ag-Schichten befinden sich in einem langlebigen metastabilen Zustand großer Rauigkeit. Durch Tempern kann man die Defektdichte dieser Schichten drastisch verringern. Mit SPA-LEED kann man diesen Ausheilprozeß in situ untersuchen.

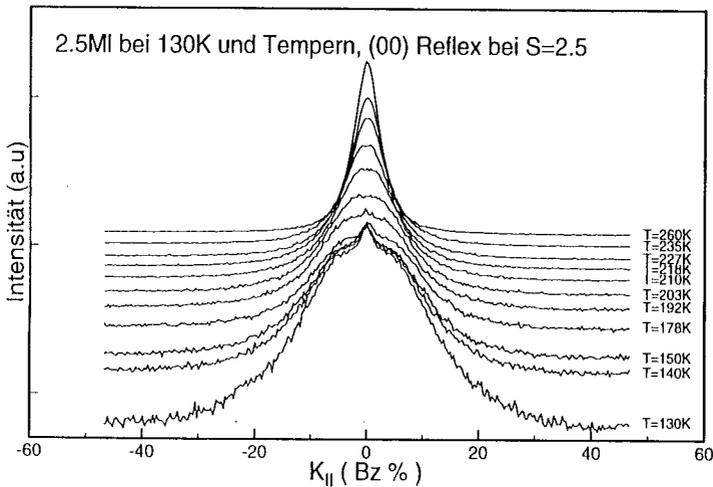


Abb.7.14 (a) Bei S=2.5 gemessene LEED-Profile während des Temperns einer bei 130 K aufgedampften 2.5 ML dicken Deckschicht.

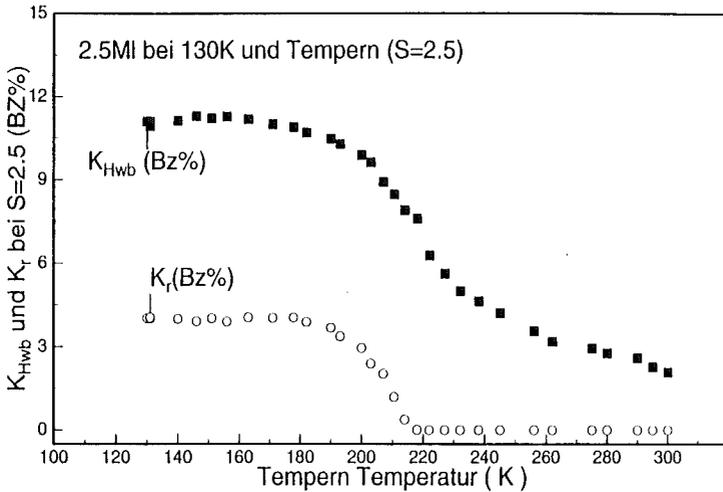


Abb.7.14. (b) Die Abhängigkeit der Halbwertsbreite und die Position der Schulter-Satelliten bei der Gegen-Phase $S=2.5$ von der Temperntemperatur. Es wurde 2.5 ML aufgedampft bei 130 K Substrattemperatur und anschließend getempert.

Da das Beugungsexperiment bei Gegen-Phase am stärksten auf die atomaren Stufen empfindlich ist, wird das Profil bei dieser Streubedingung während des Ausheilens der Schichten aufgenommen. Abb. 7.14.a zeigt einige während des Temperns gemessene Beugungsprofile für eine 2.5 ML dicke Schicht, die bei 130 K aufgedampft wurde. In Abb.7.14.b sind die Halbwertsbreiten K_{Hwb} und die Positionen K_r der Schulter-Satelliten dieser Profile dargestellt. Wie in §2.2. diskutiert wurde, kann man aus der Halbwertsbreite K_{Hwb} und der Positon K_r der Schulter-Satelliten die mittlere Terrassenlänge und die Standardabweichung der Terrassenlängenverteilung bestimmen. Insbesondere bedeutet die Abnahme der Halbwertsbreite, daß die mittlere Terrassenlänge zunimmt. Dieses Verhalten ist darauf zurückzuführen, daß sich kleinere Inseln beim Tempern auflösen. Das frei werdende Material lagert sich an größere Inseln an, so daß diese Inseln noch weiterwachsen (Ostwald reifung). Abb.7.15 zeigt das Temperverhalten für 0.5 ML bzw. 10 ML dicke Deckschichten,

die beide bei 130 K aufgedampft wurden. Aus diesen Untersuchungen kann man folgende charakteristischen Eigenschaften für das Tempern entnehmen:

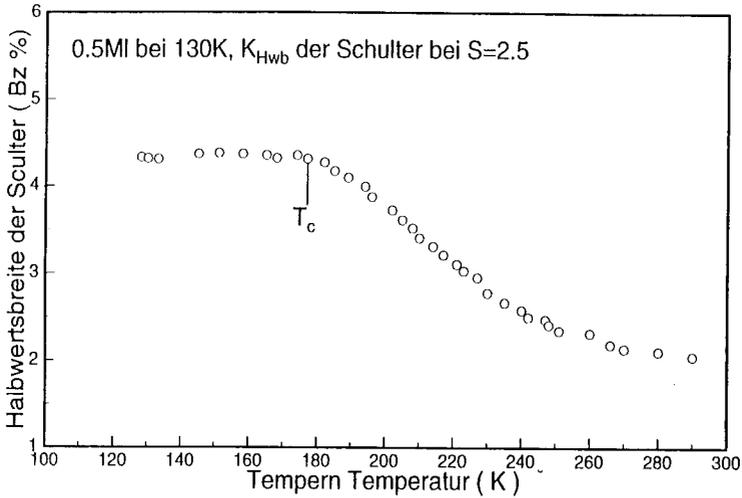


Abb.7.15.a.

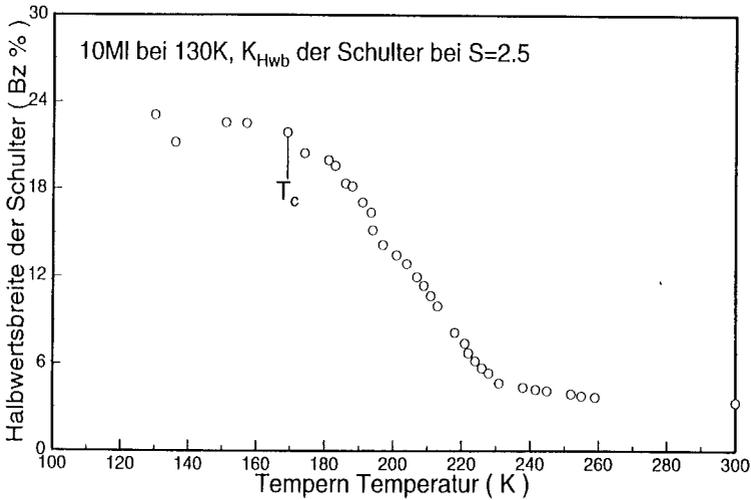


Abb.7.15.b.

Die Abhängigkeit der Halbwertsbreite bei der Gegen-Phase Bedingung $S=2.5$ von der Temperntemperatur. (a) 0.5 MI, (b) 10 MI. Beide Schichten wurden bei 130 K aufgedampft.

1) Es gibt während des Temperns eine Einsatztemperatur T_c für das Ausheilen der Schichten. Unterhalb von T_c verändert sich das Profil bzw. die mittlere Terrassenlänge $\langle L \rangle$ nicht wesentlich. Oberhalb T_c dagegen verringert sich die Halbwertsbreite bzw. wächst die mittlere Terrassenlänge $\langle L \rangle$ drastisch mit der Ausheiltemperatur.

2) Wie man aus Abb.7.15 entnehmen kann, ist die Einsatztemperatur T_c fast unabhängig von der Größe der Strukturen. Obwohl die mittlere Terrassenlänge $\langle L \rangle$ bei der 0.5 MI dicken Deckschicht viel größer als bei der 10 MI dicken Deckschicht ist, ist die Einsatztemperatur T_c bei beiden Schichten fast gleich ($T_c \approx 175 \pm 5$ K). Das Ausheilverhalten weist auch für die vertikale Rauigkeit einen solchen Einsatzpunkt auf.

Diesen sprunghaften Einsatz des Ausheilprozesses kann man nicht allein dadurch erklären, daß größere Inseln zu Ungunsten von kleineren wachsen. Wäre dieses allein der Fall, müßte sich die mittlere Terrassenlänge kontinuierlich verringern. Diese Voraussage steht im Widerspruch zu dem gemessenen Ausheilverhalten, da die wesentlich rauhere 10 MI-Schicht die gleiche Einsatztemperatur wie die relativ glatte 0.5 MI dicke Schicht hat. Daher kann man vermuten, daß das Ausheilen der Schichten wesentlich von der erhöhten Diffusionsbarriere an Stufen behindert wird, denn diese Barriere ist für alle Schichten die gleich.

7.5 Der Einfluß der Oberflächenrauigkeit auf die Leitfähigkeit dünner Silberschichten

Wie im Kapitel 4 diskutiert wurde, hängt die Leitfähigkeit dünner Schicht aufgrund des klassischen Size-Effekts von der Oberflächenrauigkeit ab. Daneben tragen auch noch viele weitere Effekte zur Leitfähigkeit dünner Schicht bei. Dennoch ist es experimentell gelungen [Kennedy 1993], den Anteil des elektronischen Widerstands durch diffuse Streuung der Leitungselektronen an der Grenzfläche Metallschicht / Vakuum für dünne Silberschichten auf Si(111) Substrat vom Gesamtwiderstand zu separieren.

Diese Leitfähigkeitsmessungen wurden an ähnlich experimentell präparierten Schichten durchgeführt, wie sie hier bei den berichteten SPA-LEED Experimenten benutzt wurden. Eine Silberbasisschicht wurde bei 90 K auf einer Si(111)-7x7 Oberfläche aufgedampft und anschließend bei $T_a=450\text{K}$ getempert. Dadurch wurden die Volumen- und Grenzflächendefekte (zum Substrat und zum Vakuum) ausgeheilt. Zusätzliches Silber wurden bei tieferen Temperaturen ($T_s < T_a = 450\text{ K}$) aufgedampft. Während des Aufdampfprozesses wurde die Leitfähigkeit in situ gemessen. Die Defekte der Basisschicht werden bei diesen Wachstumstemperaturen nicht weiter beeinflußt, da die Basisschicht schon zuvor bei 450 K getempert wurde. Daher wurde die Änderung des gemessenen Widerstands nur durch die zusätzlich aufgedampfte Silberschicht verursacht. Die bei tiefen Temperaturen zusätzlich aufgedampfte Silberschicht hat zwei entgegengesetzte Einflüsse auf den Gesamtwiderstand:

- a) Die zusätzliche Schicht wirkt wie ein zur Basisschicht parallel geschalteter Widerstand [Fischer 1980]. Dadurch wird der Gesamtwiderstand verringert, denn die Gesamtschichtdicke wird während des Wachstums vergrößert.
- b) Wie schon zuvor in diesem Kapitel dargestellt wurde, ist die bei tiefen Temperaturen gewachsene Deckschicht rau. Dadurch erhöht sich der Gesamtwiderstand, da die diffuse Streuung der Leitungselektronen an der Grenzfläche zum Vakuum stärker wird.

Aus Gl.(4.11) erkennt man, daß der zusätzliche spezifische Widerstand $\Delta\rho$ wegen diffuser Oberflächenstreuung durch zwei Parameter, die vertikale Rauigkeit Δ und die Korrelationslänge ξ , beschrieben wird.

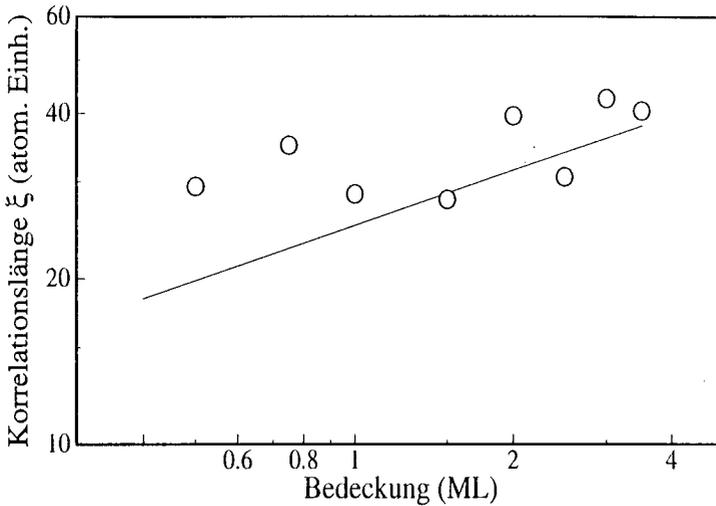


Abb.7.17 Die Variation der Korrelationslänge ξ mit der Bedeckung.

Mit SPA-LEED Messung ist zwar die Bestimmung der Rauigkeit direkt zugänglich. Allerdings wird dort die laterale Verbreiterung der Reflexprofile durch die mittlere Terrassenlänge $\langle L \rangle$ bestimmt und nicht durch die für die Auswertung der Leitfähigkeitsmessungen benötigte Korrelationslänge ξ . Man kann jedoch zeigen, daß man die Korrelationslänge ξ aus den SPA-LEED Messungen über die Beziehung:

$$\xi = 2\Delta^2 \langle L \rangle \quad (7.10)$$

bestimmen kann [Luo 1993]. Abb.7.17 zeigt die Variation der so bestimmte Korrelationslänge ξ mit der Bedeckung. Die Kreise im Bild sind die durch Gl.(7.10) bestimmte ξ aus den Messpunkten in Abb.7.7 ($\Delta(\theta)$) und in Abb.7.10(a) ($\langle L(\theta) \rangle$). Die Linie ist berechnet aus den Mittelwerten $\Delta(\theta)$ ($\Delta(\theta) = \theta^{1/2}$, Linie in Abb. 7.7) und $\langle L(\theta) \rangle$ ($\langle L(\theta) \rangle = 12.5\theta^{-2/3}$, Linie in Abb.7.10(a))

Ist die zusätzlich aufgedampfte Schicht sehr dünn, kann die Leitfähigkeitsverbesserung durch wachsende Schichtdicke vernachlässigt werden. Daher ist die Änderung des gemessenen Gesamtwidestands fast ausschließlich durch die diffuse Streuung an der Oberfläche

verursacht. Dadurch ist es möglich, die diffuse Oberflächenstreuung der Leitungselektronen von anderen Streuprozessen abzutrennen.

Wie im Kapitel 4 diskutiert wurde, ist die diffuse Oberflächenstreuung der Leitungselektronen an einer rauen Oberfläche ebenfalls durch die vertikale und laterale Oberflächenrauigkeit charakterisiert. Im Kapitel 7 wurde dargestellt, wie diese beiden Parameter durch die LEED Profilanalyse quantitativ bestimmt werden können. Daher kann man durch vergleichende Messungen der Oberflächenrauigkeit und der Leitfähigkeit gezielt kontrollieren, ob der Einfluß der Oberflächenmorphologie auf die Leitfähigkeit dünner Schichten von der Theorie richtig vorhergesagt wird.

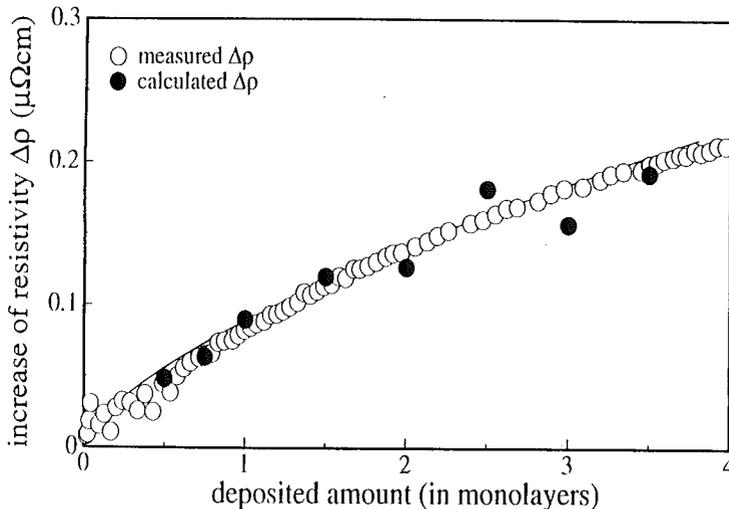


Abb.7.18 Änderung des spezifischen Widerstands als Funktion der zusätzlichen Bedeckung bei 130K (offene Kreise). Die gefüllte Kreise stellen die theoretisch berechneten spezifischen Widerstandänderung dar, wobei die vertikale Rauigkeit Δ (Punkt in Abb. 7.7) und die Korrelationslänge ξ (Punkt in Abb. 7.17) zugrunde gelegt wurde. Die Linie im Bild ist die berechnete spezifische Widerstandänderung mit der ausgewerten Δ ($\Delta=\theta^{1/2}$, Linere im Abb.7.7) und ξ ($\xi=25\theta^{1/3}$, Linie im Abb.7.17). Für die Berechnung wurde Gl.(4.11) benutzt.

Abb.7.18 zeigt die gemessene spezifische Widerstandsänderung in Abhängigkeit von der zusätzlichen Aufdampfmenge θ (offene Kreise im Bild). Das zusätzliche Silber wurde bei 126 K auf einer 112 Ml (27 nm) dicken Basisschicht aufgebracht. Die gemessenen Daten wurden mit dem in §4.2 diskutierten theoretischen Modell ausgewertet. Die gefüllte Kreise und die Linine in Abb.7.18 stellen die quantitativ berechnete spezifische Widerstandsänderung ($\Delta\rho=\rho_{sr}$) dar, wobei die aus den SPA-LEED Messungen gewonnenen Morphologiedaten benutzt wurden. Die Oberflächenrauigkeit Δ (Abb.7.7) und die Korrelationslänge ξ (Abb.7.17) in Gl.(4.11) werden direkt durch die Wachstumsuntersuchungen mit SPA-LEED bestimmt. Für die Berechnung wurde der Volumenwert des Fermi-Vektors k_F benutzt, da die Schicht dick genug ist, kann der Quantum-Size-Effekt vernachlässigt werden. Kein anderer freier Parameter ist bei der theoretischen Berechnung benutzt worden. Die in Abb. 7.18 dargestellte Auswertung zeigt deutlich, daß die Messung und Theorie exakt übereinstimmen. Es ist zum ersten Mal seit der Entdeckung des Klassischen-Size-Effekt von Fuchs 1938 gelungen, die Änderung des spezifischen Widerstands, aufgrund der diffusen Oberflächenstreuung der Leitungselektronen an einer rauhen Oberfläche, deren Morphologie (Δ und ξ) mit SPA-LEED quantitativ bestimmt wurde, ohne freie Parameter exakt zu bestimmen.

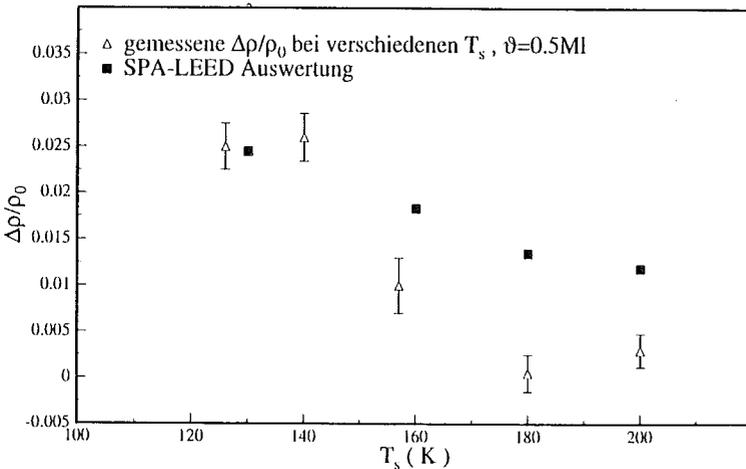


Abb. 7.19. Relativ Änderung des spezifischen Widerstands als Funktion der Wachstumstemperatur ($\theta=0.5 \text{ Ml}$).

Abb.7.19 zeigt den Vergleich von Widerstands- und SPA-LEED- Messung für eine 0.5 ML dicke Deckschicht. Auch hier ist die Übereinstimmung von gemessener und vorhergesagter Widerstandsänderung qualitativ gut.

Man kann durch zusätzliches Aufdampfen bei tiefen Temperaturen eine raue Oberfläche mit vielen Wachstumsdefekten erzeugen. Durch Tempern dieser Schichten wird die Defektkonzentration verringert. Wie in §7.4 berichtet wurde, kann dieser Ausheilprozeß mit SPA-LEED eingehend studiert wurden. Der äquivalente Effekt, daß sich die Leitfähigkeit durch Ausheilen der Schichten erhöht, wird ebenfalls beobachtet. Der Vergleich beider Messungen soll hier beschrieben werden.

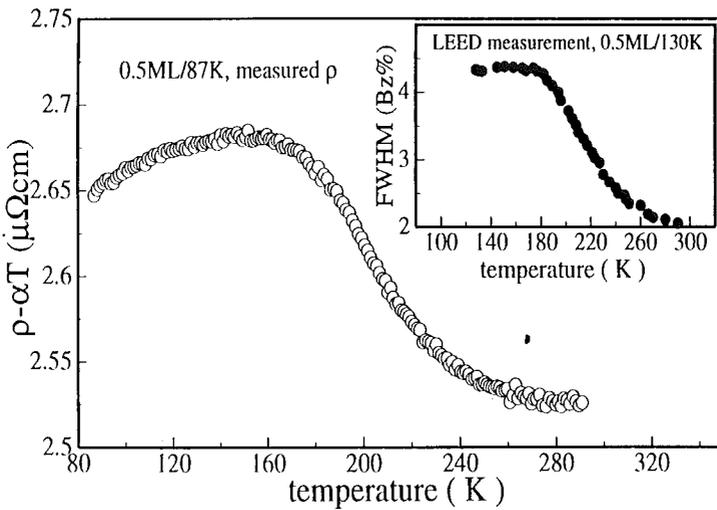


Abb.7.20(a)

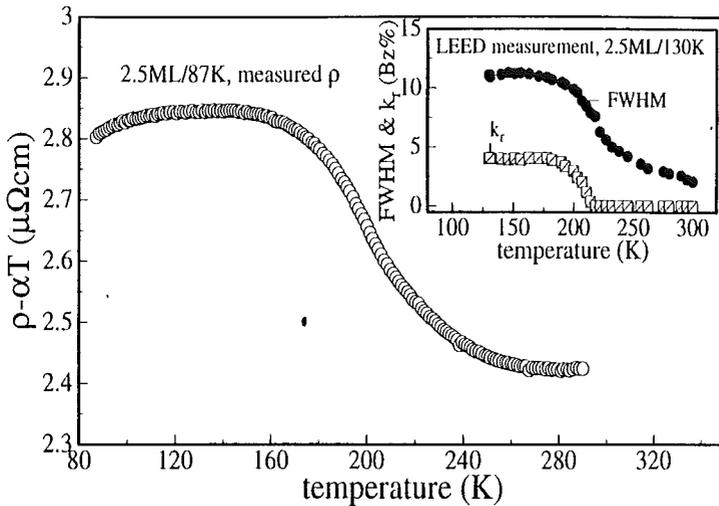


Abb.7.20(b)

Abb.7.20 Änderung des spezifischen Widerstands während des Temperns, nachdem Phononeneffekte eliminiert wurden. Die Schicht für die Widerstandsmessung wurde bei 87 K aufgedampft. Inset: Änderung der Halbwertsbreite des (00) Reflexes bei gegen-Phase Bedingung ($E=42.5\text{eV}$, $S=2.5$) während des Temperns. Die Schicht für die SPA-LEED Messung bei 130 K aufgedampft. (a) $\theta=0.5$ ML, (b) $\theta=2.5$ ML, die Änderung von k_r ist ebenfalls dargestellt.

Zusätzliches Silber wurden bei tiefer Temperatur (130 K) aufgedampft, um eine raue Oberfläche mit erhöhtem spezifischen Widerstand zu erzeugen. Tempert man diese Schicht unterhalb einer kritischen Temperatur T_c , so erhöht sich der Widerstand während des Temperns aufgrund der stärkeren Phononenstreuung. Jedoch kann man reversibel den Widerstand auf den vorher gemessenen Werte verringern, wenn man den Widerstand der Schicht bei der ursprünglich Aufdampftemperatur mißt. Der Schichtwiderstand sinkt allerdings, wenn man die Schicht oberhalb der kritischen Temperatur T_c getempert hat. Daher zeigt auch die Leitfähigkeitmessung in Übereinstimmung mit den zuvor durchgeführten SPA-LEED Messungen, daß die Silberschicht erst oberhalb dieser Temperatur ausheilt. In Abb.7.20 wird dieser Tempereffekt anhand von zwei Beispielen dargestellt. Abb.7.20.(a) zeigt die

Widerstandsänderung durch Tempern einer zusätzlich erzeugten 0.5 MI dicken, bei 87 K aufgedampften Deckschicht (offene Kreise). Im Inset des Bildes ist die Temperaturabhängigkeit der Halbwertsbreiten des (00) Reflexes bei Gegen-Phase Bedingung ($E=42.5\text{eV}$, $S=2.5$) dargestellt, die während des Temporns mit SPA-LEED in situ gemessen wurde. Wie im Kapitel 2 diskutiert wurde, ist die Halbwertsbreite des Reflexes bei gegen-Phase umgekehrt proportional zu der mittleren Terrassenlänge $\langle L \rangle$. Aus Gl.(7.10) und Gl.(4.11) hat man: $K_{\text{Hwb}} \propto 1/\langle L \rangle = 2\Delta^2/\xi \propto \rho_{\text{sr}} (\Delta\rho)$. Abb.7.20.(b) zeigt, daß eine 2.5 MI dicke Deckschicht sich ganz ähnlich verhält. Bei beiden Messungen stimmen Messung und Modell qualitativ sehr gut überein.

Sowohl die Untersuchungen des Wachstums als auch des Temporns von Ag-Schichten zeigen, daß es möglich ist, charakteristische Eigenschaften der Schichten aus SPA-LEED und Leitfähigkeitsmessungen miteinander zu vergleichen. Dieser Vergleich beider Messungen beweist, daß die theoretischen Modelle, den Einfluß der Oberflächenrauigkeit auf die Streuung von Leitungselektronen gute vorhersagen.

Kapitel 8 Diskussion und Ausblick

8.1 Diskussion

Die Untersuchungen dieser Arbeit wurden im Hinblick auf zwei Problemstellungen durchgeführt. Zum einen sollte das Wachstum von Ag auf Ag(111) Basisschichten an sich studiert werden. Zum anderen sollte der Einfluß der gemessenen Oberflächenmorphologie auf die elektrische Leitfähigkeit dünner Schichten untersucht werden. Die Untersuchungen haben gezeigt, daß die Oberflächendefekte während des Wachstums qualitativ und quantitativ mit SPA-LEED erfaßt werden können und die Aktivierungsenergie des Systems bestimmt werden können. Zusammen mit den Leitfähigkeitmessungen von Kennedy [Kennedy 1993] ist es gelungen, die diffuse Streuung der Leitungselektronen an rauen Oberflächen zu erfassen und quantitativ zu beschreiben.

Die in dieser Arbeit dargestellten Ergebnisse zum Wachstum ultradünner Silberschichten auf Si(111)-7x7 bei tiefen Temperaturen zeigen, daß bei dünnen Schichten eine große Anzahl von Defekten vorliegt (Rotationsmosaike, Korngrenzen; Inseln und atomare Stufen). Thielking [Thielking 1992] ist es gelungen, die Inselgrößen-, Abstands- und Rotationwinkelverteilung zu bestimmen. In dieser Arbeit wurde dagegen besonderer Wert darauf gelegt, den Einfluß der Wachstumsbedingungen auf die atomaren Stufen zu studieren. Im Kapitel 6 wurde gezeigt, daß die 3 ML dicke Silberschicht im wesentlichen aus vielen Inseln besteht. Die einzelnen Insel sind glatt, aber unterschiedlich hoch. Das weist darauf hin, daß das Wachstum während der ersten 3 ML im wesentlichen durch Keimbildungsprozesse beschrieben wird. Der mittlere Inseldurchmesser für diese beträgt ca. $10 a_{\text{Ag}} \approx 7 a_{\text{Si}}$. Daher wird die Anordnung der Keime sehr stark durch die Periodizität des Si(111)-7x7 Substrats geprägt. Eine ausführliche Diskussion über das Wachstum von Ag auf Si(111)-7x7 findet man in der Arbeit von Thielking [Thielking 1992].

Wie im Kapitel 7 diskutiert wurde, ist die Morphologie der Oberfläche während des Wachstums bei dem System Ag auf Ag(111) bei tiefer Temperatur relativ klar. Vergleicht man mit anderen Arbeiten [Rosenfeld 1993, Vegt 1992], hat diese Arbeit mehr und quantitative Informationen geliefert. Hier werden die physikalischen Gründe qualitativ diskutiert.

Das Wachstum von Ag auf Ag(111) wurde mit Röntgenbeugung [Vegt 1992] und Helium-Streuung [Rosenfeld 1993] untersucht. Dort wurde gezeigt, daß das Wachstum von Ag/Ag(111) keine "*reentrant layer-by-layer-growth*" aufweist, sondern Silber bei tiefen Temperaturen statistisch wächst. Davon behaupten sie, daß es an der Stufenkante eine sehr große Diffusionsbarriere gibt, wodurch die vertikale Diffusion bei tiefen Temperaturen stark verhindert wird. Die Oberflächenrauigkeit nimmt mit steigender Wachstumstemperatur ab. Bei ca. 500 K läuft das Wachstum im "*step-flow*" mode ab. Die Untersuchungen in dieser Arbeit zeigen ähnliches Verhalten [siehe Kapitel 7]. Die Rauhtiefe Δ einer 2 Ml dicken Ag-Schicht, die bei 243 K aufgedampft wurde, beträgt nur ca. 0.7 Ml. Abb.8.1. zeigt die Abhängigkeit der gemessenen Halbwertsbreite des (00)-Reflexes von der Streuphase bei den 2 Ml dicken Schichten, die bei verschiedenen Temperaturen aufgedampft wurden. Aus Abb.8.1 sieht man deutlich, daß sich bei der Schicht, die bei 243 K aufgedampft wurde, die Stufendichte nicht wesentlich von der der Basisschicht unterscheidet. Daraus erkennt man die Tendenz, daß für Ag/Ag(111) das "*step-flow*" Wachstum schon bei Temperaturen unter 500 K erfolgt. Die beobachteten Unterschiede zwischen dieser und anderen Arbeiten kann auf folgenden Gründen beruhen:

1) Es wurden unterschiedliche Untersuchungsmethoden verwendet. Bei Untersuchungen mit Röntgenbeugung und Helium-Streuung wurde nur die Peakintensität während des Wachstums bei der Gegen-Phase Bedingung gemessen. Dagegen wurden in dieser Arbeit, nachdem die Schichten hergestellt worden waren, die Reflexprofile bei vielen Streubedingungen analysiert, so daß die Oberflächenrauigkeit sehr genau und detailliert bestimmt wurde (Terrassenlängenverteilung und Rauhtiefe). Dieses ist nicht möglich, wenn man nur eine einzige Streubedingung für die Messung benutzt.

2) Die Qualität der Basisschichten waren unterschiedlich. Als Substrat wurde in anderen Arbeiten Silbereinkristalle benutzt, die bessere einkristalline Eigenschaften aufweisen. In dieser Arbeit wurden dagegen Silberbasisschichten benutzt, die auf einem Si(111)-Substrat erzeugt wurden. Durch Reflexverbreiterungen durch Mosaik der Basisschicht wurde die Auflösung stark beschränkt (siehe §7.1). Ist die mittlere Terrassenlänge größer als die Transferweite, die durch Mosaikwinkel bestimmt wird, können sie nicht mehr erfaßt werden. Daher konnte man bei hohen Substrattemperaturen das Wachstum der Deckschichten nicht mehr verfolgen. So ist die gemessene mittlere Terrassenlänge von 14 nm bei einer Wachstumstemperatur von 243 K nur eine untere Grenze. Sicherlich beeinflußt auch die Morphologie der Basisschicht das Wachstum der Deckschichten.

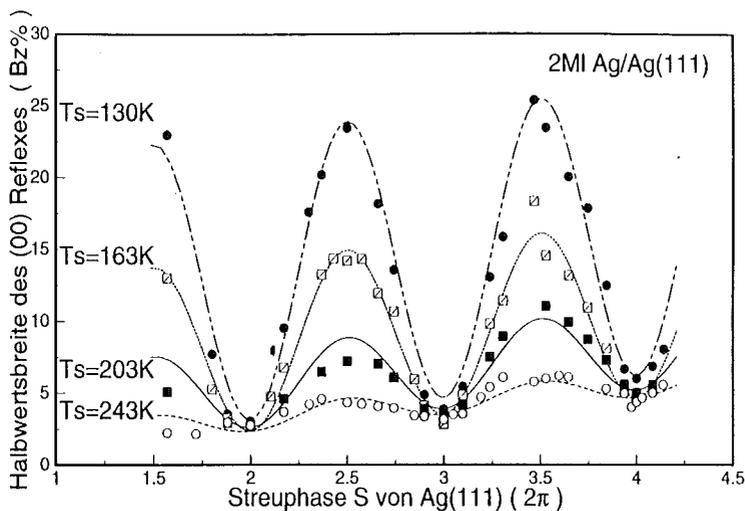


Abb.8.1 Die Abhängigkeit der gemessenen Halbwertsbreite der (00) Reflexes der 2 ML dicken Schichten, die bei verschiedenen Temperaturen aufgedampft wurden.

Die laterale Diffusionsbarriere von E_d -ebene = 0.18 eV ist relativ klein, so daß ein freies Atom (*monomer*) auch bei niedrigen Temperaturen leicht auf einer Terrassen diffundieren kann. Dadurch können sich einerseits leicht Keime bilden, andererseits können sich die Monomere leicht an schon vorhandene Inseln anlagern. Hat sich ein Atom an eine Insel erst einmal angelagert, löst es sich nun schwer wieder von der Insel, da die Bindungsenergie zweier Atome $E_b = 0.29$ eV [Jones 1990] relativ größer ist. Daher sind die beobachteten Terrassen länger als im Fall des reinen statistischen Wachstums, bei dem weder laterale noch vertikale Diffusion stattfindet. Bei tiefen Temperaturen können die auf großen Terrassen auftreffenden Atome neue Silberinseln bilden, da die zusätzliche Diffusionsbarriere an den Stufenkanten verhindert, daß Atome in andere Lagen wechseln. Dennoch ist Dichte der freien Atome (*monomere*) auf einer Terrasse sehr gering, da sich neu auftreffende Atome an schon vorhandene Inseln anlagern, sich aber nicht mehr von ihnen lösen können, da die Bindungsenergie verglichen mit der Diffusionsbarriere hoch ist. Verringert man die Wachstumstemperatur, so kann nur ein sinkender Anteil der Atome die zusätzliche Barriere an Stufenkanten überwinden und in andere Lagen wechseln, bevor sie sich an Inseln anlagern. Dadurch wächst die Oberflächenrauhigkeit mit sinkender Wachstumstemperatur, wie diese Arbeit und andere Untersuchungen gezeigt haben. Diese Eigenschaft ist ein rein kinetischer

Effekt, da bei geringeren Temperaturen die Beweglichkeit der Adatome sinkt. Jedoch läßt sich das "Einfrieren" der Atomediffusion manchmal umgehen. Wenn z.B. die Stufenbarriere bei kleinen Inseln kleiner wird, kann es zum "reentrant layer-by-layer growth" kommen, wie es z.B. beim Wachstum von Pt/Pt(111) beobachtet wurde [Poelsema 1991].

Wie im Kapitel 7 diskutiert wurde, ist es nicht verstanden, warum die Terrassenlängenverteilung einem Skalenverhalten folgt. Die *Dynamic scaling hypothesis* während des epitaktischen Wachstums wurden theoretisch sehr intensiv untersucht [Family 1990]. Dort wurde gezeigt, daß ein System weit entfernt vom thermodynamischen Gleichgewicht durch Fluktuation bei sehr dicken Schichten asymptotisch einem *dynamic scaling law* folgt [Family 1990, Villain 1991, Tan 1991]. Solches *dynamic scaling* Verhalten wurde im System Fe/Fe(001) nachgewiesen [He 1992]. Bei den hier durchgeführten Untersuchungen ist noch nicht geklärt, ob allgemein das Wachstum von Ag/Ag(111) einem Skalenverhalten unterworfen ist. Dazu müssen weitere Untersuchungen bei anderer Temperaturen und größeren Bedeckungen durchgeführt werden.

Im Kapitel 7 wurde ebenfalls gezeigt, daß es eine kritische Temperatur T_c gibt, oberhalb der Ausheileneffekte für die Ag-Deckschichten unabhängig von ihrer ursprünglichen, sehr unterschiedlichen Präparation zu beobachtet sind. Daher kann diese Ausheilbarriere nicht von der Größe der Struktur abhängen. Was ist der physikalische Grund für diese Unabhängigkeit? Ist es wegen der kinetischen oder thermodynamischen Effekte? Diese Frage kann man zur Zeit nicht beantworten.

Der in §7.4 dargestellte Vergleich von Leitfähigkeit mit SPA-LEED Messungen hat gezeigt, daß das hier verwendete theoretische Modell die Messungen quantitativ exakt beschreibt. Andererseits kann die Messungen auch mit dem Modell von Wißmann [Wißmann 1975] beschrieben werden. Der Grund hierfür liegt darin, daß alle gemessenen Korrelationslängen ξ (die kleinste Korrelationslänge ist $\xi \approx 6$ nm, siehe Abb.7.17) viel größer als die Fermiwellenlänge λ_F ($\lambda_F \approx 0.35$ nm) der Leitungselektronen in der Silberschicht sind. Daher gilt die Grundannahme im Modell von Wißmann: die atomare Stufen wirken als separate Streuzentren. Um die unterschiedlichen Auswirkungen beider Modelle zu studieren, ist es notwendig, Oberflächen mit Korrelationslängen ξ kleiner oder vergleichbar λ_F zu erzeugen. Solche Schichten konnten in dieser Arbeit trotz der verwendeten tiefen Temperaturen nicht erzeugt werden. Es müssen also noch niedrigere Wachstumstemperaturen erzeugt werden, um auch die laterale Diffusion der Silberatome weiter zu vermindern.

8.2 Ausblick

Wie im §8.1 diskutiert wurde, sind für das Wachstum von Ag/Ag(111) noch viele Fragen unbeantwortet geblieben. Das betrifft besonders das Wachstum ultradünner Ag-Schicht auf Si(111)-7x7 Substrat. Für das Wachstum von Ag auf Ag(111) gibt es ebenfalls auch noch viele interessante Fragestellungen, die durch weitere Untersuchungen geklärt werden sollten. So zeigt die Arbeit von Vegt et.al [Vegt 1992], daß das Wachstum von Ag auf Ag(111) durch surfactants stark beeinflußt wird. So erfolgt das Wachstum von Ag bei tiefen Temperatur nach Vorbedampfen mit Sb im Schichtwachstumsmode. Um zu erklären, warum sich durch Surfactant das Wachstum von Ag so stark ändert, ist es notwendig, die laterale und die vertikale Oberflächenrauigkeit mit SPA-LEED detailliert zu analysieren.

Die Untersuchung der Leitfähigkeit dünner Silberschichten wurde in dieser Arbeit an vergleichbar präparierten Schichten durchgeführt. Allerdings wurden dazu unterschiedliche Apparaturen benutzt. Hier wurde beispielhaft demonstriert, daß es durch vergleichende Messungen der Leitfähigkeit und der Morphologie durch SPA-LEED möglich ist, die Streuprozesse der Leitungselektronen an einer rauhen Oberfläche detailliert zu verstehen. Es ist wünschenswert, daß diesen Untersuchungen weitere an Schichten folgen, die unter anderen Herstellungsbedingungen präpariert werden. Dazu ist es sinnvoll, die Messungen der Leitfähigkeit und der Morphologie in der gleichen Apparatur durchzuführen, wodurch die Vergleichbarkeit beider Messungen noch besser gewährleistet ist.

Der in dieser Arbeit diskutierte klassische Size-Effekt wurde in vertikale Richtung beschränkt, d.h. die Schicht ist parallel zum Substrat vollständig geschlossen und ist sie unendlich groß. Man kann eine interessante Frage stellen: Ist ein "lateraler" Size-Effekte oder die Leitfähigkeit einer Insel experimentell messbar? Zu dieser Frage wird hier ein "phantastisches" Experiment vorgestellt:

Wie in §7.1 dargestellt wurde, ist eine 100 Ml dicke bei 700 K erzeugten Ag-Schicht nicht vollständig geschlossen: die Silberinseln sind groß und steil. Die Oberfläche besteht aus vielen isolierten Silberinseln und unbedecktem Substrat (vgl. Abb.8.2). Der mittlere Inseldurchmesser $\langle R \rangle$ und der mittlere Inselabstand $\langle \Gamma \rangle$ können durch SPA-LEED Messungen quantitativ bestimmt werden. Berücksichtigt man die Massenerhaltung, kann man die mittlere Höhe $\langle H \rangle$ der Inseln, die durch Silberinseln bedeckte Fläche A_M bzw. die unbedeckte Fläche A_U bestimmen ($A_M + A_U = 1$). In erster Näherung kann man annehmen, daß die Leitfähigkeit aller Silberinseln σ_m gleich sei. Die Leitfähigkeit der unbedeckten Fläche wird mit σ_u bezeichnet. Da die Inseln nicht zusammenhängend sind, dominiert die Schicht

Leitfähigkeit des Substrats ($\sigma_m \gg \sigma_u$) das Widerstandverhalten. Daher ist die effektive Leitfähigkeit σ_e sehr klein, und besitzt isolierenden Charakter. Wird auf diese Oberfläche bei tiefen Temperaturen weiteres Silber (oder ein anderes Metall wie Blei) aufgebracht, bildet das zusätzliche Material auf der zuvor unbedeckten Fläche neue Silberinseln [Wegner 1993]. Die neu gebildeten Silberinseln besitzen eine andere Leitfähigkeit σ_n . Bringt man genügend neues Material auf, so wird oberhalb einer kritischen Bedeckung θ_c (Perkulationsgrenze) ein Strompfad geschlossen. Es ist nun interessant zu beobachten, wie die Leitfähigkeit σ_e dieser Silberschicht in Abhängigkeit von der Menge des Zusatzmaterials zunimmt.

$$\sigma_e = \Psi(\sigma_m, \sigma_n, \theta) \quad (8.1)$$

Die Leitfähigkeit des zusätzlichen Silbers kann vor diesem Experiment schon dadurch bestimmt werden, in dem das Silber bei der gleichen Temperaturen auf das reine Si(111)- $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ Substrat aufgedampft wird. Es stellt sich die Frage, ob sich die Leitwerte der großen Silberinseln und der Zusatzschicht klassisch addieren. Es ist aber auch denkbar, daß quantenmechanische Interferenzeffekte zu einem völlig anderen Verhalten der Leitfähigkeit führen.

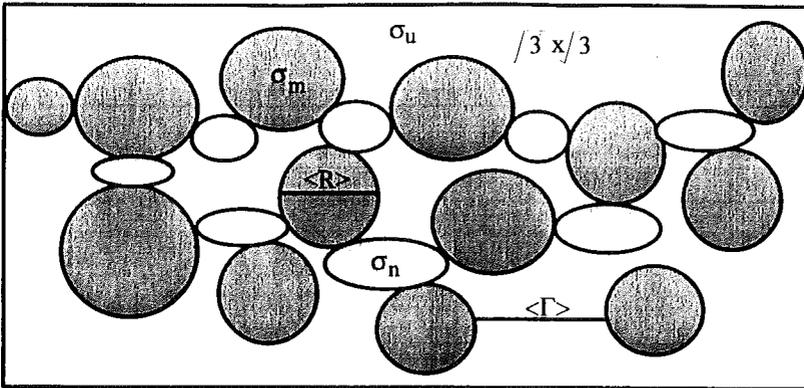
Wie schon erwähnt, gibt es während des Wachstums eine kritische Bedeckung θ_c , bei der die vorliegenden Inseln perkolieren. Da die Silber Schichten besser leiten als das Substrat [Heun 1992], folgt aus der Perkulationstheorie, daß die Gesamtleitfähigkeit σ_e in der Nähe der kritischen Bedeckung θ_c die allgemeine Form [Bergman 1993]:

$$\sigma_e = \Pi \cdot (\theta - \theta_c)^\kappa \quad (8.2)$$

hat.

Jedoch muß die hier auftretende kritische Bedeckung nicht die gleiche wie bei einem Perkulationsexperiment auf dem reinen Si(111)-Substrat sein. Sowohl der kritische Exponent κ als auch die Amplitude Π können von der Vorbehandlung der Probe abhängen. Da sowohl der Ausgangszustand als auch der Endzustand der Morphologie, nachdem die Silberschichten aufgedampft wurden, sehr genau mit dem SPA-LEED Messungen erfaßt werden kann, kann gerade der Einfluß dieser Vorbehandlung auf die Perkulationsexperiment sehr detailliert untersucht werden.

Ist ein solches Experiment machbar? Ein Versuch sollte die Frage klären.



 vorliegende Ag-Inseln  unbedeckte Unterlage $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$

 neue gebildete Ag-Inseln durch zusätzliche Wachstum bei tiefer Temperatur

Abb.8.2 Schematische Darstellung eines "phantastischen" Experiments.

Literaturverzeichnis

- [Ando 1982] Ando T., Fowler A.B. und Stern F., Rev. Mod. Phys. 54, 437 (1982)
- [Bauer 1958] Bauer E., Z. Krist. 110, 372 (1958)
- [Bergman 1993] Bergman D. und Stroud D. Solid State Phys. vol. 46, 148 (1993)
- [Busch 1990] Busch H und Henzler M. Phys. Rev. B, 41, 4891 (1990)
- [Clarke 1987] Clarke S. und Vvedensky D.D, Phys. Rev. Lett. 58, 2235 (1987)
- [Egelhoff 1989] Egelhoff, W. und Jacob I., Phys. Rev. Lett. 62, 921 (1989)
- [Ernst 1992] Ernst H.J., Fabre F. und Lapujoulade J., Phys. Rev. B 46, 1929, (1992)
- [Evans 1990] Evans J.W., Sanders D.E., Thiel P.A. und DePristo A.E., Phys. Rev. B 41, 5410 (1990)
- [Falta 1990] Falta J. Imbühl R. und Henzler M., Phys. Rev. Lett. 64, 1409 (1990)
- [Falta 1991] Falta J. Promotion, Universität Hannover 1991
- [Family 1990] Family F., Physica (Amsterdam) 168A, 561 (1990)
- [Fischer 1981] Fischer B. et.al, Z. Phys. B. 42, 349, (1981)
- [Fuchs 1938] Fuchs K. Proc. Cambridge Phil. Soc. 34, 100, (1938)
- [Gold 1985] Gold A., Phys. Rev. B 32, 4014 (1985)
- [Goodnick 1985] Goodnick S.M., Ferry D.K., Wilmesn C.W., Liliental Z., Fathy D. und Krivanek O.L., Phys. Rev. B, 32, 8171 (1985)
- [Hahn 1982] Hahn P.O, Promotion, Universität Hannover 1982
- [Hahn 1984] Hahn P.O., und Henzler M. J. Vac. Sci. Techn. A2, 574 (1984)
- [He 1992] He Y.L, Yang H.N., Lu T.M. und Wang G.C., Phys. Rev.Lett. 69, 3770 (1992)
- [Henzler 1977] Hrnzler M. in "Electron Spectroscopy of Surface Analysis" Ed. H. Ibach, Topics in Current Physics 4, Springer 1977
- [Henzler 1982] Henzler M. Appl. Surface Sci. 11/12, 450 (1982)
- [Henzler 1986] Henzler M. in " Dynamical Phenomena at Surfaces, Interfaces und Superlattices, Springer Series in Surface Sci." Vol. 3 Eds F.Nizzoli, K.H. Rieder und R.F. Wills (Springer Berlin 1986)
- [Henzler 1990] Henzler M. Busch H. und Friese G., "Kinetics of Ordering und Growth at Surface" Eds by M.G. Lagally, Plenum Press, 1990
- [Henzler 1991] Henzler M. und Göpel M. Oberflächenphysik des Festkörpers Treubner Studienbücher (1991)
- [Heun 1992] Heun S. Promotion, Universität Hannover (1992)
- [Horn 1987] Horn M. und Henzler M. J. Cristal Growth, 81, 428 (1987)
- [Horn 1993] Horn M., Pook M., Al Falou. A., Müller B.H. und Henzler M. Surface Sci 284, 53 (1993)

- [Kariotis 1989] Kariotis R. und Lagally M.G. Surf. Sci. 216, 557 (1989)
- [Kaser 1993] Kaser A. und Gerlach E. wird veröffentlicht
- [Kennedy 1993] Kennedy M. Dipl. Arbeit, Universität Hannover 1993
- [Kern 1979] Kern R., Le Lay G. und Metois J.J., in "Current topics in Materials Science" Vol. 3, Ed. E. Kaldis (1979)
- [Köhler 1989] Köhler U., Demuth J.E., und Hamers R.J. J. Vac. Sci. Tech. A7 2860 (1989)
- [Krumbhaar 1978] Müller-Krumbhaar H. in "Kinetics of Cristal Growth, Current Topics in Materials Science" Vol.1 Ed. E. Kaldis, (1978)
- [Kunkel 1990] Kunkel R., Poelsma B., Verheij L.K. und Comsa G., Phys. Rev. Lett. 65, 733 (1990)
- [Jalochowski 1988] Jalochowski M. und Bauer E., Phys. Rev. B 38, 5272 (1982)
- [Jalochowski 1992] Jalochowski, M. Seminar Vortrag, Clausthal, 1992
- [Jones 1990] Jones G.W., Marcano J.M., Norskov J.K. und Venables J.A. Phys. Rev. Lett. 65, 3317 (1990)
- [Joyce 1986] Joyce B.A, Dobson P.J., Neave J.H. und Zhang J. Surf. Sci. 174, 1 (1986)
- [Lagally 1988] Lagally M.G. Savage D.E. und Tringides M.C. in "Reflection High-Energy Electron Diffraction und Reflection Electron Imaging of Surfaces" Eds. P.K.Larsen und P.J. Dobson, Plenum Press (1988)
- [Le Lay 1983] Le Lay G. Surf. Sci. 132, 169 (1983)
- [Lent 1984] Lent C.S. und Cohen P.I. Surface Sci. 139, 121 (1984)
- [Leung 1984] Leung K.M., Phys. Rev. B 30, 647 (1984)
- [Lu 1982] Lu T.M. und Lagally M. G., Surface Sci. 120, 47 (1982)
- [Luo 1993] Luo E.Z., Heun S., Kennedy M, Wollschläger J. und Henzler M, Phys. Rev. B, im Druck
- [Meyer 1988] Meyer G., Michailov M. und Henzler M., Surf. Sci. 202 125 (1988)
- [Meyer 1990] Meyer G., Wollschläger J. und Henzler M. Surface Sci 231, 64 (1990)
- [Müller 1992] Müller B. Diplomarbeit, Universität Hannover (1992)
- [Pfnür 1990] Pfnür H. und Piercy P. Phys. Rev. B 41, 582 (1990)
- [Poelsema 1991] Poelsema B., Kunkel R., Nagel N., Becker A.F., Rosenfeld G., Verheij L.K. und Comsa G., Appl. Phys. A 53, 369 (1991)
- [Pukite 1985] Pukite P.U., Lent C.S. und Cohen P.I. Surf. Sci. 161, 39 (1985)
- [Rosenfeld 1993] Rosenfeld et.al. submitted to Phys. Rev. Lett. (1993)
- [Saloner 1985] Saloner D. und Lagally M.G., in "Springer series in Surf. Sci." Vol. 2, Ed. M.A. van Hove, S.Y. Tong, (1985)
- [Seah 1979] Seah N.P.und Dench W.A., Surf. Interface Anal. 1, 2 (1979)
- [Schad 1991] Schad R. Promotion, Universität Hannover, (1991)
- [Scheithauer 1986] Scheithauer U. und Henzler M., Surf. Sci. 178, 4419 (1986)

- [Schmidt 1990] Schmidt Th. Dipl. Arbeit Universität Hannover 1990
- [Schmidt 1993] Schmidt Th. und Henzler M., wird veröffentlicht
- [Schumacher 1982] Schumacher D. und Stark D. Surf. Sci. 123, 384 (1982)
- [Stowell 1971] Stowell M.J. und Hutchinson T.E., Thin Solid Films 8, 41 (1971)
- [Takayanagi 1985] Takayanagi K., Tanishiro Y., Takahashi M. und Takahashi S., J. Vac. Sci. Tech. A3, 1502 (1985)
- [Tang 1991] Tang L.H. und Nattermann T. Phys. Rev. Lett. 66, 2899 (1991)
- [Thielking 1992] Thielking D., Promotion, Universität Hannover (1992)
- [Tringides 1987] Tringides M.C., Wu P.K. und Lagally M.G. Phys. Rev. Lett. 59,315 (1987)
- [Tringides 1992] Tringides M.C., in "Proceedings of Symposium on Surface Diffusion", Mat. Res. Soc. Proc. (1992)
- [Vegt 1992] van der Vegt H.A., van Pinxteren H.M., Lohmeier M., Vlieg E. und Thornton J.M.C., Phys. Rev. Lett. 68, 3345, (1992)
- [Venables 1984] Venables J. A. Spiller G. D. T. und Hanbücken M, Rep. Prog Phys. 47, 339 (1984)
- [Villain 1991] Villain J. J.Phys. I 1, 19 (1991)
- [Wang 1985] Wang G.C. und Lu T.M. Phys. Rev. B 31, 5918 (1985)
- [Wegner 1993] Wegner F. Dipl. Arbeit, Universität Hannover (1993)
- [Welberry 1985] Welberry T.J., Rep. Prog. Phys. 48, 1543 (1985)
- [Wischhöfer 1992] Wischhöfer J., Diplomarbeit, Universität Hannover (1992)
- [Wißmann 1975] Wißmann P., Springer Tracts Mod. Phys. 77, 1 (1975)
- [Wollschläger 1987] Wollschläger J. Dipl. Arbeit, 1987
- [Wollschläger 1989] Wollschläger J. und Henzler M., Phys. Rev. B, 39, 6052 (1989)
- [Wollschläger 1990] Wollschläger J., Promotion, Universität Hannover (1990)
- [Wollschläger 1990] Wollschläger J, Falta J. und Henzler M. Appl. Phys. A 50, 57 (1990)
- [Wollschläger 1991] Wollschläger J., Luo E.Z. und Henzler M., Phys. Rev. B 44, 13031 (1991)
- [Wollschläger 1991] Wollschläger J., Luo E.Z. und Henzler M., Surf. Sci. 257, 274 (1991)
- [Wollschläger 1993] Wollschläger J. und Henzler M. wird veröffentlicht
- [Zangwill 1988] Zangwill A., Physics at Surfaces, Cambridge University Press (1988)
- [Zinke-Allmang 1992] Zinke-Allmang M. Feldman L.C. und Grabow M. H., Surface Sci. Rep. 16, 377 (1992)
- [Zou 1988] Zou J.K. Wang G.C. und Lu. T.M., Phys. Rev. Lett. 60, 1053 (1988)
- [Zou 1991] Zou J.K. und Wendelken J.F., Phys. Rev. Lett. 66, 2227 (1991)

Danksagungen

Herrn Prof. Dr. M. Henzler danke ich ganz herzlich, daß er diese Arbeit ermöglichte, sowie für die zahlreichen Diskussionen und Hilfestellung, die mir als neue Denkanstöße sehr hilfreich waren.

Herrn Dr. J. Wollschläger danke ganz herzlich für sein ständiges Interesse an dieser Arbeit, sowie für die zahlreichen Diskussionen und Anregungen zur Analyse der durchgeführten Experimente. Ihm danke ich auch ganz herzlich für seiner unzähligen sprachlichen Korrekturen an dieser Arbeit.

Bei allen Mitgliedern des Institutes für Festkörperphysik der Universität Hannover möchte ich mich für die zahlreichen Diskussionen über physikalische und technische Probleme bedanken. Mein besonderer Dank gilt dabei Herrn Dr. D. Thielking für die gut Zusammenarbeit bei der Durchführung und Analyse der Experimente, die zum Kapitel 6 dieser Arbeit geführt haben. Bei Herrn Dr. S. Heun und Herrn Dipl. Phys. M. Kennedy bedanke mich herzlich für die zahlreichen Diskussionen zur Leitfähigkeit und die ausführliche Erläuterung ihrer Leitfähigkeit- Messungen. Herrn F. Wegner danke ich sehr für die gut Zusammenarbeit bei Durchführung der Experimente in der letzten Phase dieser Arbeit. Herrn Prof. E. Gerlach und Herrn Dipl. Phys. A. Kaser (RWTH, Aachen) danke ich sehr dafür, daß ich in dieser Arbeit ihre unveröffentlichten theoretischen Ergebnisse benutzen darf.

Den Mitarbeitern der mechanischen Werkstatt danke ich für ihre Bemühungen um die Lösung technischer Probleme, die im Laufe dieser Arbeit auftraten.

Sämtlichen Mitgliedern der Familien Henzler, Günter, Köhler, Willerding und Schuaman danke ich , auch im Namen meiner Familie, ganz herzlich dafür, daß sie so oft mich und meine Familie zu Besuchen und zu gemeinsamen Exkursionen eingeladen haben. Dadurch haben meine Familie und ich eine schöne und angenehme Zeit während unseres Aufenthalts hier verbracht.

Ich danke für die finanzielle Unterstützung von seiten der *World Bank* durch "*Chineses University development project II*", der Graduiertenförderung der Universität Hannover und der Volkswagen Stiftung.

Meine Frau Dongya und meine Tochter Sixian danke ich besonders für ihre Vollunterstützung und Verständnis während dieser Arbeit.

Lebenslauf

En-Zhou Luo

24. 09. 1959 geboren in Stadt Shaodong in der Provinz Hunan, V.R. China
- 1966 - 1972 Grundschule Tiantang in Shaodong
1972 - 1978 Mittelschule Nr. 2 in Shaodong
- 10.1978 - 7.1982 Studium der Physik an der Universität Hunan, V.R. China
Abschluß B.sc.
- 9.1982 - 6.1985 Aufbaustudium der Metallphysik am Institut für
Metallforschung der chinesischen Wissenschaftsakademie
Abschluß M.sc.
- 7.1985 - 8.1989 Wissenschaftlicher Mitarbeiter im Fachbereich Physik und Zentrum
für Materialforschung der Universität Hunan, V.R. China
- 9.1989 - 9.1990 Gastwissenschaftler im Institut für Festkörperphysik der Universität
Hannover
- seit 10.1990 Stipendiat im Institut für Festkörperphysik der Universität Hannover
- seit 05.02. 1985 verheiratet mit Dongya Zhang
01.02. 1986 Geburt unserer Tochter Sixian

