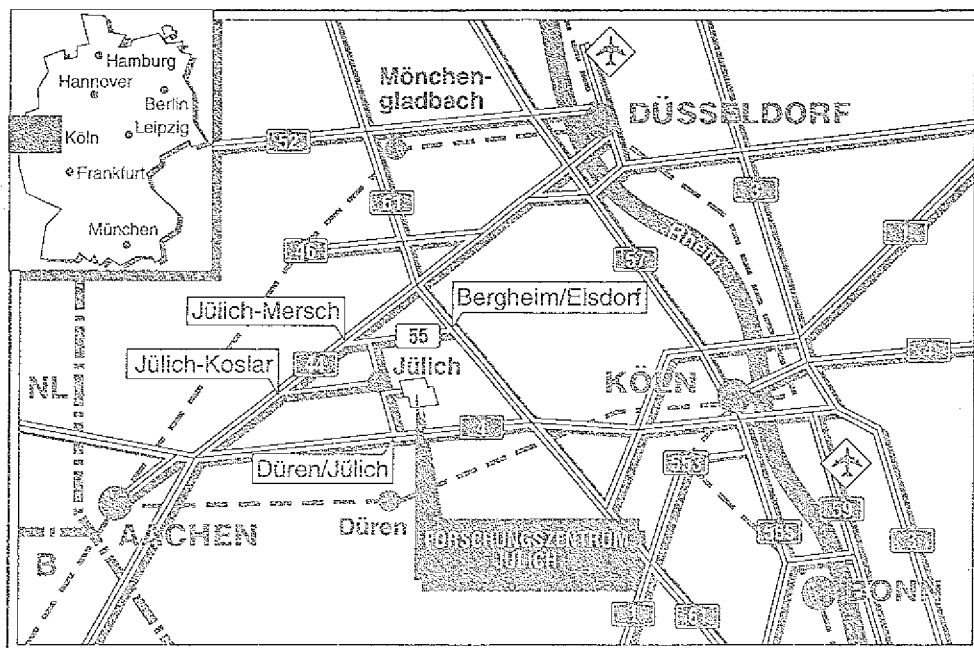


*Institut für Grenzflächenforschung
und Vakuumphysik*

**Die Untersuchung der Morphologie
einer wachsenden Pt(111)-Fläche
mittels der Streuung thermischer
He-Atome**

Ralf Kunkel



Berichte des Forschungszentrums Jülich ; 2526

ISSN 0366-0885

Institut für Grenzflächenforschung und Vakuumphysik Jülich-2526

D-5 (Diss. Universität Bonn)

Zu beziehen durch: Forschungszentrum Jülich GmbH · Zentralbibliothek

Postfach 1913 · D-5170 Jülich · Bundesrepublik Deutschland

Telefon: 02461/61-6102 · Telefax: 02461/61-6103 · Telex: 833556-70 kfa d

**Die Untersuchung der Morphologie
einer wachsenden Pt(111)-Fläche
mittels der Streuung thermischer
He-Atome**

Ralf Kunkel

Handwritten text, likely a signature or name, appearing in the center of the page.

Small handwritten text or mark located below the main signature.

Extensive handwritten text at the bottom of the page, possibly a letter or document body.

Abstract

The homoepitaxial growth of Pt(111) has been studied using He-diffraction as a function of surface temperature and deposition rate. At a constant deposition rate of $R \simeq 1$ ML/min different growth modes are observed: step-flow ($T_s \gtrsim 850$ K), layer-by-layer ($2D_h$ -) growth at $460 \text{ K} \lesssim T_s \lesssim 800 \text{ K}$, multilayer ($3D$ -) growth at $340 \text{ K} \lesssim T_s \lesssim 460 \text{ K}$, and, surprisingly, reentrant layer-by-layer ($2D_r$ -) growth at $T_s \lesssim 340 \text{ K}$.

During deposition at very high temperatures an approximately constant He-reflectivity was observed. This behavior is attributed to growth via step-flow, which corresponds to the ideal layer-by-layer growth of the **real** surface. Here, all adatoms are incorporated into pre-existing atomic steps which prevent nucleation on the terraces. The surface is growing simply by propagation of the pre-existing steps.

At surface temperatures between $T_s \simeq 460 \text{ K}$ and $T_s \simeq 800 \text{ K}$ damped oscillations of the reflected He-signal are observed. The oscillation period corresponds to the monolayer deposition time. In this temperature range the Pt(111) surface shows a nearly perfect layer-by-layer growth caused by a massive mass transport between layers. Due to finite adatom mobility, nucleation takes place on the terraces. In this mode, basically one layer is growing at a time, except for a small time interval close to monolayer completion where nucleation in the next layer already starts. It has been shown that most of the damping of the oscillations at high temperatures is caused by minute inhomogeneities of the Pt deposition rate over the macroscopic spot area of the probing He-beam. Under certain circumstances more than 150 oscillations can be observed. Upon decreasing the surface temperature the damping of the oscillations is increased due to accumulation of surface roughness.

At intermediate temperatures ($340 \text{ K} \lesssim T_s \lesssim 460 \text{ K}$) 3D-structures develop, i.e. several (two dimensional) layers grow simultaneously. This growth mode is evidenced by a monotonic decay of the specular peak height with deposition. In agreement with previous FIM-results, the 3D-growth is attributed to the existence of an activation barrier, which suppresses the descent of adatoms from the top of the growing adatom islands onto the lower terraces. This barrier can be overcome at $T_s \gtrsim 460 \text{ K}$ enabling interlayer mass transport which is a prerequisite to $2D$ -growth. The transition from 3D- to $2D_h$ -growth takes place in spite of the still substantial thermal mobility of adatoms. This is in contrast to the conventional picture of homoepitaxial growth in which 3D-growth is attributed to a lack of adatom mobility.

Surprisingly, at $T_s \lesssim 340$ K and a deposition rate of $R \simeq 1$ ML/min the reentrance of a layer-by-layer ($2D_e$) growth was observed. Careful experiments have been performed to prove that this growth mode is characteristic of the **clean** Pt(111)-surface rather than caused by minute amounts of contaminations. Upon reduction of the deposition rate a transition to 3D-growth occurs, which implies that the activation barrier can be overcome only in the presence of small and/or irregularly shaped islands enabling interlayer mass transport.

The main result of our investigations is the observation of the reentrant layer-by-layer growth mode. Comparing the experimental data to Monte-Carlo simulations shows that $2D_e$ -growth cannot be explained by transient mobility arguments. It must rather be attributed to a break down of the activation barrier for the descent of mobile adatoms from the top of small and/or irregularly shaped islands onto the lower terrace. This finding is in line with previous FIM-results.

Inhaltsverzeichnis

1.0	Einleitung	1
2.0	Die Untersuchung der Struktur von Oberflächen mittels He-Streuung	5
2.1	Die Streuung thermischer He-Atome an defektfreien Oberflächen	7
2.2	Die diffuse Streuung an isolierten Defekten	9
2.3	Die Streuung von He-Atomen an geordneten Defektstrukturen	11
2.3.1	Die Beugung von He-Atomen an gestuften Oberflächen	12
2.3.2	Die Verteilung sichtbarer Terrassen auf unterschiedlichen Niveaus	19
2.3.3	Die diffuse Streuung an Stufen	21
2.4	Der Einfluß instrumenteller Effekte auf die Beobachtung von Beugungspeaks	23
2.4.1	Die Transferbreite	24
2.4.2	Instrumentelle Effekte bei der Beugung an einer gestuften Oberfläche	26
3.0	Aufbau und Charakterisierung des Oberflächenexperimentes	31
3.1	Die Molekularstrahlapparatur	32
3.2	Präparation und Charakterisierung der Proben	36
3.3	Die Wellenlänge der He-Atome	39
3.4	Die Monochromasie des He-Düsenstrahles	41
3.5	Die Erzeugung epitaktischer Schichten	46
3.5.1	Die Intensitätsverteilung der auf die Probe auftreffenden Pt-Atome	48
3.5.2	Die Inhomogenität des Teilchenflusses im beobachteten Teil der Probe	50
3.5.3	Die Verdampferquelle	54
3.5.4	Reinigung und Charakterisierung der Verdampferquelle	55
4.0	Das Wachstum dünner Schichten	59
4.1	Wachstumsmodelle: Thermodynamik und Kinetik	60
4.2	Die ersten Stadien des Wachstums von Schichten	66
4.3	Die Wachstumsmodi homoepitaktischer Systeme	68
4.4	He-Streuung und Wachstumsmodi einer realen Fläche	70
4.5	Die Modellierung des Wachstums von Schichten durch Monte-Carlo Simulationen	75
5.0	Die Struktur der Pt(111)-Fläche während ihres Wachstums	79
5.1	Das Wachstum durch Stufenwanderung	82

5.2	Das $2D_h$ -Wachstum bei hohen Temperaturen	85
5.2.1	Die Oszillationen der He-Reflektivität während des $2D_h$ -Wachstums	85
5.2.2	Die Form und Dämpfung der Oszillationen	88
5.2.2.1	Instrumentelle Effekte bei der Dämpfung der Oszillationen	91
5.2.2.2	Der Einfluß von Mehrschichteffekten auf die Dämpfung	95
5.2.3	Die Asymmetrie der In-Phase Oszillationen	99
5.3	Das 3D-Wachstum im mittleren Temperaturbereich	104
5.3.1	Der Übergang vom $2D_h$ -Wachstum zum 3D-Wachstum	105
5.3.2	Der Einfluß der Potentialbarriere auf das 3D-Wachstum der Pt(111)-Fläche	109
5.4	Das Wiedereinsetzende 2D-Wachstum bei tiefen Temperaturen	112
5.4.1	Der Einfluß von Verunreinigungen auf das $2D_e$ -Wachstum	115
5.4.2	Der Einfluß der Inselgröße auf das $2D_e$ -Wachstum	119
5.4.3	Die Durchlässigkeit der Potentialbarriere	122
5.4.3.1	Der Einfluß von Akkommodationssprüngen der Adatome auf das $2D_e$ -Wachstum	124
5.4.3.2	Das Verschwinden der Aktivierungsbarriere an den Stufenkanten von Inseln kleiner lateraler Dimensionen	130
6.0	Zusammenfassung	133
7.0	Literaturverzeichnis	137

Verzeichnis der Abbildungen

Abb. 1. Schematische Darstellung der Elementarprozesse während des Wachstums von Schichten	2
Abb. 2. Streuung von He-Atomen an einer defektfreien Oberfläche	8
Abb. 3. Streuung von He-Atomen an isolierten Defekten	10
Abb. 4. Experimentell beobachtetes Peakprofil nach der Streuung von He-Atomen an einer unregelmäßig gestuften Oberfläche	13
Abb. 5. Die Streuung von He-Atomen an einer gestuften Oberfläche	15
Abb. 6. Amplitudenfunktion und resultierende Intensität bei der Beugung an einer regelmäßig gestuften Oberfläche	16
Abb. 7. Diffuse Streuung an Stufen bei unterschiedlichen Terrassenbreiten ...	22
Abb. 8. Geometrie zur Berechnung der Transferbreite	25
Abb. 9. Die Tiefenauflösung w_T des hier verwendeten Instrumentes als Funktion des Spiegelwinkels ϑ_i	28
Abb. 10. Schematische Darstellung der Molekularstrahlapparatur	33
Abb. 11. Aufsicht auf die Strahlebene der Molekularstrahlapparatur	34
Abb. 12. Rocking-Kurve für die reine Pt(111)-Fläche	38
Abb. 13. Bestimmung der mittleren de-Broglie Wellenlänge der He-Atome	40
Abb. 14. Reales und reziprokes Gitter einer Pt(111)-Fläche	42
Abb. 15. Geometrische Verhältnisse bei der Beugung von He-Atomen	44
Abb. 16. Positionen der Beugungspeaks nach Streuung an einer p(2x2)-Überstruktur von O/Pt(111)	44
Abb. 17. Experimentell beobachteter (1/2,0)-Beugungspeak der p(2x2)-Überstruktur von O/Pt(111)	45
Abb. 18. Geometrie zur Bestimmung der Intensitätsverteilung des Pt-Flusses ..	49
Abb. 19. Die Intensitätsverteilung der auf die Probe treffenden Pt-Atome	49
Abb. 20. Geometrische Verhältnisse bei der Bestimmung der Inhomogenität des Pt-Flusses	52
Abb. 21. Inhomogenität des Pt-Flusses am Probenort als Funktion des Spiegelwinkels	52
Abb. 22. Aufbau der Verdampferquelle	54
Abb. 23. Aufdampfkurven während der Reinigung des Dampfgutes	56
Abb. 24. Die Wachstumsmodi eines Kristalls unter Gleichgewichtsbedingungen	61
Abb. 25. Das TLK-Modell einer gestuften Oberfläche	63
Abb. 26. Die Oberflächenmorphologie während eines idealen 2D- und	

3D-Wachstums von Schichten	69
Abb. 27. Die Anti-Phase Peakhöhe während eines idealen 2D-Wachstums von Schichten	72
Abb. 28. Die Anti-Phase Peakhöhe während eines idealen 3D-Wachstums von Schichten	73
Abb. 29. Beispiele für simulierte geometrische Streuquerschnitte	77
Abb. 30. Die Wachstumsmodi einer Pt(111)-Fläche	81
Abb. 31. Der Übergang vom Wachstum durch Stufenwanderung zum $2D_h$ -Wachstum bei einer Variation der Depositionsrate	84
Abb. 32. He-Reflektivität während des Wachstums einer Pt(111)-Fläche unter In- und Anti-Phase Bedingungen	86
Abb. 33. Anti-Phase Oszillationen während des $2D_h$ -Wachstums einer Pt(111)-Fläche bei unterschiedlichen Oberflächentemperaturen	89
Abb. 34. He-Reflektivität während des Wachstums von Pt(111) für verschiedene Spiegelwinkel	92
Abb. 35. Die Dämpfung der Oszillationen bei unterschiedlichen Spiegelwinkeln	92
Abb. 36. He-Reflektivität während des Wachstums der Pt(111)-Fläche bei kleinen Spiegelwinkeln	94
Abb. 37. Simulierte Temperaturabhängigkeit des $2D_h$ -Wachstums	96
Abb. 38. Symmetrische und asymmetrische Oszillationen der He-Reflektivität	100
Abb. 39. Definition der Asymmetrie ε der In-Phase Oszillationen	100
Abb. 40. Asymmetrie der In-Phase Oszillationen als Funktion der Depositionsrate	102
Abb. 41. Asymmetrie der In-Phase Oszillationen als Funktion der Oberflächentemperatur	102
Abb. 42. Symmetrische In-Phase Oszillationen	103
Abb. 43. Zeitlicher Verlauf der In- und Anti-Phase Peakhöhe bei $T_s = 453$ K	105
Abb. 44. Anti-Phase Peakhöhe während des Wachstums bei immobilisierten Adatomen	106
Abb. 45. Die Simulation eines idealen 3D-Wachstums	108
Abb. 46. Der Einfluß der Aktivierungsbarriere auf das 3D-Wachstum	110
Abb. 47. Experimentelle Beobachtung des idealen 3D-Wachstums	110
Abb. 48. He-Reflektivität während des Wiedereinsetzenden 2D-Wachstums der Pt(111)-Fläche	113
Abb. 49. Zeitliche Entwicklung der Anti-Phase Peakhöhe während des Übergangs vom 3D- zum $2D_h$ -Wachstum	114

Abb. 50. Der Einfluß koadsorbierten Sauerstoffs auf das Wachstum einer Pt(111)-Fläche	117
Abb. 51. Der Einfluß koadsorbierten Wasserstoffs auf das $2D_z$ -Wachstum einer Pt(111)-Fläche	117
Abb. 52. Der Übergang vom $2D_z$ -Wachstum zum 3D-Wachstum durch die Ernie- drigung der Depositionsrate	120
Abb. 53. Der Übergang vom 3D- zum $2D_z$ -Wachstum durch die Variation von T_s bei niedrigen Depositionsraten	121
Abb. 54. Oszillationen der He-Reflektivität bei $T_s = 100$ K	125
Abb. 55. Simulierte Oszillationen bei thermisch immobilisierten Adatomen	125
Abb. 56. Experimentell beobachtete Änderung der Anti-Phase Kurven mit stei- gender Temperatur	127
Abb. 57. Der Einfluß der Adatombeweglichkeit auf die Amplitude der Anti-Phase Oszillationen	128
Abb. 58. Der Einfluß der Wahrscheinlichkeit zum Brechen einer Bindung auf die Amplitude der Anti-Phase Oszillationen	128

1. The first part of the document is a letter from the

author to the editor.

2. The second part is a letter from the

editor to the author.

3. The third part is a letter from the

author to the editor.

4. The fourth part is a letter from the

editor to the author.

5.

1.0 Einleitung

Struktur und Eigenschaften dünner Filme wurden gerade in letzter Zeit mit großer Aufmerksamkeit untersucht. Der Grund hierfür liegt nicht zuletzt in der Vielzahl praktischer und technologischer Anwendungen, die mit der Entwicklung der Dünnschicht-Technologie verbunden sind. Dies betrifft zum einen alltägliche Dinge, wie zum Beispiel Sonnenbrillen, Reflektions- und Antireflektionsbeschichtungen von Gläsern, dekorative Filme auf Kunststoffolien oder die Beschichtung von Bildröhren. Auf der anderen Seite konnte diese Technologie wichtige innovative Beiträge bei der Herstellung elektronischer und optoelektronischer Bauelemente (Halbleiterlaser oder Mikrochips) liefern; genau genommen hat sie die rasante Entwicklung der Mikroelektronik der letzten Jahre erst möglich gemacht. Heute ist man in der Lage, Oberflächen mit speziellen mechanischen, chemischen oder elektronischen Eigenschaften, wie zum Beispiel supraleitende oder diamantartige Filme, zu erzeugen. Auch die Herstellung kommerzieller Systeme zur heterogenen Katalyse an Oberflächen (Katalysator oder Rußfilter bei PKW's) ist durch die Entwicklung der Dünnschicht-Technologie beeinflusst worden.

Das Wachstum von Kristallen und dünnen Schichten wird schon seit Ende des letzten Jahrhunderts untersucht. Die ersten Arbeiten beschäftigten sich mit dem Wachstum unter Gleichgewichtsbedingungen und dessen thermodynamischer Beschreibung. Abhängig von den betrachteten Systemen treten verschiedene Wachstumsformen auf: Lagen- oder Frank-van-der-Merve Wachstum, Insel- oder Volmer-Weber Wachstum sowie Stranski-Krastanov Wachstum als eine Kombination der beiden Erstgenannten. Obwohl die Mechanismen, die das Auftreten der einzelnen Wachstumsformen bestimmen, sehr unterschiedlich sein können, wurde schon Ende der 20er Jahre deutlich, daß die für die Bildung von Schichten verantwortlichen Prozesse auf atomarer Skala identisch sind [1.-8.]:

- Kondensation der wachsenden Spezies aus der Gasphase
- Migration der Adatome entlang der Oberfläche
- Bildung von Nukleationskeimen
- Anlagerung der Adatome an Stufen und Adatominseln

Die Entwicklung neuer experimenteller Methoden zur Beobachtung und Präparation von Oberflächen führte zu einem erneuten Anwachsen des Interesses an der Untersuchung des Wachstums von Schichten. Von besonderer Bedeutung ist hierbei die

Frage, welche Elementarprozesse für das Wachstum unter Bedingungen verantwortlich sind, die weit vom thermodynamischen Gleichgewicht entfernt sind. In diesem Fall wird die Struktur und die Eigenschaften der Filme durch die Kinetik der auf der Oberfläche ablaufenden Wachstumsmechanismen, d.h. durch das komplexe Zusammenspiel zwischen Deposition und Ausheilung bestimmt. Daher entspricht die Morphologie der Filme im allgemeinen nicht der thermodynamisch stabilsten Form. Aus diesem Grunde ist es, insbesondere bei heteroepitaktischen Systemen, recht schwierig, detaillierte Vorhersagen über die auftretenden Wachstumsmodi und die Eigenschaften der Filme zu treffen.

In dem einfacheren Fall homoepitaktischer Systeme, der im folgenden betrachtet werden soll, sagen thermodynamische Betrachtungen ausschließlich ein Frank-van-der-Merve Wachstum voraus. Aufgrund der extremen Adatomübersättigungen, bei denen die Wachstumsexperimente üblicherweise durchgeführt werden, treten jedoch andere Wachstumsmodi auf, deren Ursachen nicht vollständig verstanden sind. So beobachteten beispielsweise de Miguel und Mitarbeiter bei der Untersuchung des Wachstums einer Cu(100)-Fläche als Funktion der Oberflächentemperatur T_s mittels He-Streuung drei qualitativ unterschiedliche Wachstumsmodi [9.-11.]: Stufenwanderung ($T_s \geq 415$ K), 2D-Wachstum ($227 \text{ K} \leq T_s \leq 415 \text{ K}$) sowie 3D-Wachstum bei Temperaturen unterhalb von $T_s \approx 227$ K. Dem steht eine Studie mittels Elektronenstreuung (RHEED) gegenüber, in der bei diesem System selbst bei einer Oberflächen-

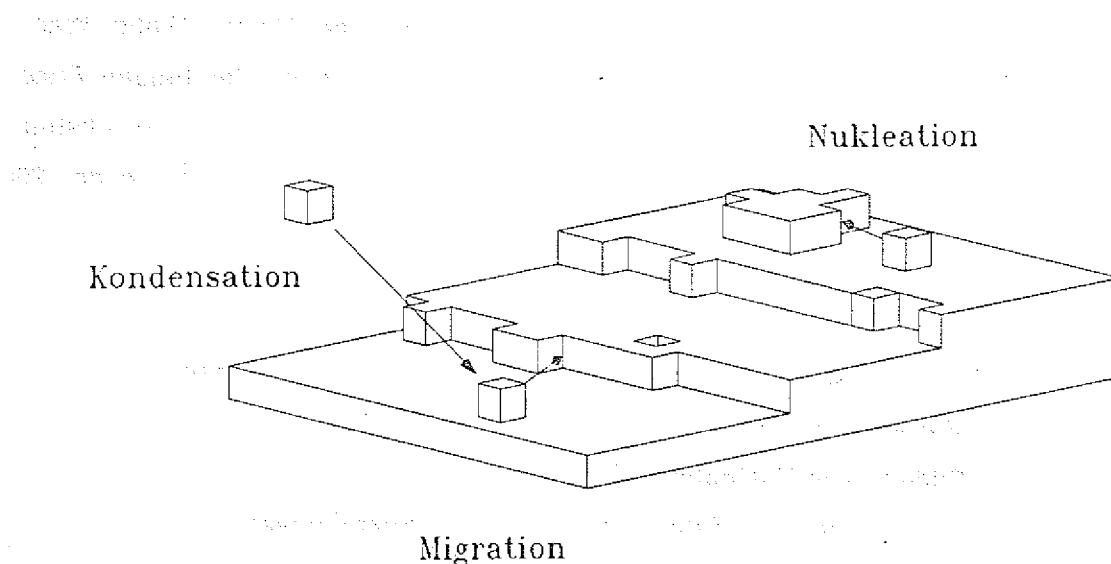


Abb. 1. Schematische Darstellung der Elementarprozesse während des Wachstums von Schichten

temperatur von $T_s = 77$ K noch ein 2D-Wachstum festgestellt wurde /12./. Die Ursachen für diese unterschiedlichen Beobachtungen blieben dabei völlig unklar; sie konnten erst durch die dieser Arbeit zugrunde liegenden Ergebnisse aufgeklärt werden /13.,14./.

Die Untersuchung von Wachstumsprozessen erfordert experimentelle Methoden, die in-situ anwendbar sind und im Idealfall eine direkte Beobachtung der Eigenschaften von Oberflächen während des Wachstums erlauben. Leider ist letzteres bei einer Vielzahl oberflächenempfindlicher Methoden nicht möglich, so daß die experimentellen Ergebnisse nur durch ein abruptes Unterbrechen des Wachstumsprozesses, gefolgt von dem „Einfrieren“ der erzeugten Strukturen gewonnen werden können. Dies erschwert jedoch die Interpretation der gewonnenen Daten, da sich die Eigenschaften der betrachteten Fläche (z.B. deren Morphologie) durch Ausheileffekte in dem Zeitraum zwischen dem Unterbrechen des Wachstums und der Charakterisierung der Fläche ändern können. Obwohl derartige Experimente in vielen Fällen wichtige Ergebnisse liefern können (man denke z.B. an die Rastertunnelmikroskopie /15./), sind sie für die Untersuchung der Kinetik der während des Wachstums ablaufenden Prozesse oftmals wenig geeignet. Hierzu werden vorzugsweise Methoden verwendet, mit denen die Eigenschaften von Oberflächen während des Wachstums beobachtet werden können.

Die wohl am meisten verbreitete Methode zur Untersuchung des Wachstums von Schichten ist die Beugung hochenergetischer Elektronen (RHEED: Reflection High Energy Electron Diffraction) /z.B. 16./. Mit dieser Technik werden unter bestimmten experimentellen Bedingungen bei vielen Systemen ausgeprägte zeitliche Oszillationen der gestreuten Elektronenintensität beobachtet /z.B. 17.-20./, die einem 2D-Wachstum der Fläche zugeordnet werden. Ein wesentlicher Nachteil dieser Methode liegt jedoch in dem Streumechanismus von Elektronen an Oberflächen, der im allgemeinen durch dynamische Effekte (Vielfachstreuung) bestimmt wird /21.-24./. Daher ist die quantitative Auswertung der durch Elektronenstreuung gewonnenen experimentellen Daten oftmals recht problematisch.

In den letzten Jahren hat sich die Streuung thermischer He-Atome (TEAS: Thermal Energy Atom Scattering) als eine effiziente Methode erwiesen, die Struktur von Oberflächen während des Wachstums /10.,13.,25.-29./, aber auch während des Zerstäubens von Schichten /30.-32./ zu untersuchen. Hier beobachtet man unter bestimmten experimentellen Bedingungen ebenfalls die für ein 2D-Wachstum typischen

Oszillationen der gespiegelten He-Peakhöhe. Im Gegensatz zur Elektronenbeugung ist die Beugung von He-Atomen an dichtgepackten Metalloberflächen ausschließlich durch kinematische Effekte bestimmt /33.,34./, was die Auswertung und Interpretation der experimentellen Ergebnisse erheblich erleichtert. Von besonderer Bedeutung ist die absolute Zerstörungsfreiheit der He-Streuung sowie deren extreme Empfindlichkeit auf die Anwesenheit von Defekten auf der Oberfläche. Darüber hinaus ist das Beugungsbild von He-Atomen, die an einer dichtgepackten Metalloberfläche gestreut werden, sehr strukturarm: es besteht im wesentlichen nur aus einem intensitätsstarken gespiegelten Peak. Dadurch wird es möglich, die Abschwächung der von diffuser Streuung und Interferenzeffekten bestimmten gespiegelten He-Intensität als Sonde für die Morphologie von Oberflächen während des Wachstums von Schichten zu verwenden.

In der hier vorgestellten Arbeit wurde die Morphologie einer Pt(111)-Fläche während ihres Wachstums mittels der Streuung thermischer He-Atome untersucht. Die Pt-Adatome wurden durch die thermische Evaporation einer Pt-Folie erzeugt. Dabei wurde besonderer Wert auf das Erreichen eines gut definierten sowie möglichst homogenen Teilchenflusses auf die Probenoberfläche gelegt. Die Wahl dieses Systems bot sich an, da frühere Untersuchungen des Zerstäubens einer Pt(111)-Oberfläche /30.-32./ einen Vergleich der Prozesse während des Wachstums und des (komplementären) Zerstäubens erlauben. Ziel der Arbeiten ist es, durch die Untersuchung der Morphologie der wachsenden Pt(111)-Fläche in Abhängigkeit von den Wachstumsparametern detaillierte Aufschlüsse über die Prozesse zu erhalten, die auf atomarer Skala für das Wachstum von Schichten verantwortlich sind. In den beiden folgenden Kapiteln (2 und 3) werden zunächst die wesentlichen methodischen Grundlagen erläutert. Kapitel 2 gibt eine Übersicht der strukturellen Informationen, die mit der Streuung thermischer Helium-Atome gewonnen werden können. Der Aufbau und die Charakterisierung der Molekularstrahlapparatur bildet den Schwerpunkt von Kapitel 3. Die experimentellen Ergebnisse und ihre Interpretation werden in den Kapiteln 4 und 5 diskutiert. Kapitel 4 gibt zunächst eine Übersicht über die Wachstumsmodi homoepitaktischer Systeme sowie über die Verfahren zu ihrer Beschreibung. Kapitel 5 hat zum Ziel, eine möglichst umfassende Diskussion des Wachstums der Pt(111)-Fläche vorzunehmen. Dazu werden die experimentellen Resultate detailliert vorgestellt und durch plausible, auf atomarer Skala ablaufende Prozesse beschrieben.

2.0 Die Untersuchung der Struktur von Oberflächen mittels He-Streuung

Der wohl am häufigsten begangene Weg, um Aufschlüsse über die auf atomarer Skala für das Wachstum und Zerstäuben von Schichten verantwortlichen Prozesse zu gewinnen, ist die Untersuchung der Struktur der Oberfläche. Insbesondere für die Beobachtung der Kinetik der auf Oberflächen ablaufenden Diffusions- und Ausheilmechanismen bietet sich die Durchführung eines Beugungsexperimentes an. Hierbei wird die Oberfläche mit Sondeteilchen definierter Energie und Einfallsrichtung beschossen und die gestreute Intensität winkel- und im allgemeinen auch energieaufgelöst im gesamten Halbraum beobachtet. Für die Wahl der Sondeteilchen sind mehrere Faktoren entscheidend. Zum einen muß die Wellenlänge der Teilchen klein genug sein, um die zu untersuchenden Strukturen auflösen zu können. Dazu ist eine Wellenlänge in der Größenordnung des Gitterparameters des Kristalls ($1-10 \text{ \AA}$) erforderlich. Zum anderen muß der Streuquerschnitt genügend groß sein, um meßtechnisch erfaßt werden zu können. Das wesentliche Kriterium ist jedoch eine hohe Oberflächenempfindlichkeit. Aus diesen Gründen wird die Streuung von Elektronen (*LEED*, *RHEED*) /16.-20.,35.,36./ oder auch die Streuung von Röntgenstrahlen unter streifendem Einfall /z.B. 35.,37./ häufig zur Untersuchung der Struktur von Oberflächen herangezogen.

Aufgrund ihrer extremen Oberflächenempfindlichkeit und Zerstörungsfreiheit hat die Streuung thermischer He-Atome /34./ gerade in jüngerer Zeit immer mehr an Bedeutung gewonnen. Obwohl die ersten Streuexperimente mit He-Atomen von O. Stern und Mitarbeitern /38./ schon Ende der 20er Jahre durchgeführt wurden, ist diese Methode lange Zeit nur selten zur Untersuchung von Oberflächen verwendet worden. Der Grund hierfür ist sicherlich, daß mehr als 40 Jahre lang nach deren Entdeckung von Demoyer 1911 nur effusive Strahlquellen bekannt waren. Diese zeichnen sich durch eine Maxwellverteilung der Teilchengeschwindigkeiten, d.h. durch eine breite Energieverteilung von $\Delta E/\bar{E} \approx 1.9$ und aufgrund der verwendeten niedrigen Quellendrücke ($\sim 10^{-2} \text{ mbar}$) durch eine relativ niedrige Strahlintensität aus. Obwohl sich der Strahl durch mechanische Methoden (Fizeau) oder durch Beugung monochromatisieren läßt /z.B. 39.-41./, hat die damit verbundene zusätzliche Erniedrigung der Strahlintensität zur Folge, daß sich effusive Strahlquellen nur schlecht für die gezielte Untersuchung von Festkörperoberflächen eignen.

Die Einführung von Düsenstrahlquellen /42.-45./ beseitigte diese Nachteile vollständig. Die dadurch erreichte gleichzeitige substantielle Steigerung von Intensität und Monochromasie des Düsenstrahls revolutionierte die Atom- und Molekülstreuung und öffnete der He-Streuung ein weites Feld in der Untersuchung von Festkörperoberflächen.

Ein Düsenstrahl entsteht durch die adiabatische Expansion eines unter hohem Druck ($p_0 \approx 150$ bar) stehenden Gases durch eine kleine Öffnung ($d_0 \approx 10 \mu\text{m}$). Die dabei stattfindende Umwandlung von Rotations- und ungerichteter Translationsenergie in gerichtete kinetische Energie hat eine starke Abkühlung des Gases zur Folge. Durch das Abschälen des Kernbereiches des Strahls mittels eines Skimmers¹ erhält man einen Strahl gleichgerichteter, untereinander nicht mehr wechselwirkender Atome. Die Energieumwandlung während der Expansion führt zu einer Monochromatisierung des Strahls, so daß Energieverteilungen mit Halbwertsbreiten von $\Delta E/\bar{E}_{\text{He}} \lesssim 0.02$ erreicht werden können. Durch die hohen Primärdrücke und der nach vorne gerichteten Winkelverteilung des Düsenstrahls erhält man zudem erheblich höhere Intensitäten gegenüber effusiven Quellen.

Die He-Streuung bietet drei Anwendungen, mit deren Hilfe qualitativ unterschiedliche Informationen über Oberflächen gewonnen werden können /46./:

- 1) Die kohärent elastische Streuung, also die Beugung, eröffnet die Möglichkeit zur Untersuchung der Struktur und Ordnung der Oberfläche.
- 2) Die diffus elastische Streuung erschließt insbesondere die Unordnung der Oberfläche.
- 3) Die inelastische He-Streuung liefert Informationen über die Gitterdynamik von Oberflächen.

Bei den in dieser Arbeit diskutierten Experimenten, in denen speziell die Struktur der Pt(111)-Fläche während ihres Wachstums im Vordergrund steht, wurde die kohärent elastisch gestreute He-Intensität beobachtet. In diesem Kapitel sollen daher die Informationen näher betrachtet werden, die sich mit Hilfe der Beugung von He-Atomen an einer wachsenden Oberfläche erzielen lassen. Dazu wird zunächst die Wechsel-

¹ Der Skimmer ist eine speziell geformte Blende, die ein Abschälen des Kernbereiches des Düsenstrahls ermöglicht, ohne Störungen der Überschallströmung durch Verdichtungsstöße an der Skimmerwand zu erzeugen.

wirkung zwischen He-Atomen und der defektfreien Pt(111)-Fläche betrachtet. Die Streuung von He-Atomen an einer Oberfläche mit isolierten Defekten bzw. geordneten Defektstrukturen bildet den Schwerpunkt der darauf folgenden Abschnitte. Abschließend soll der Einfluß des Instrumentes auf die Beobachtbarkeit von Strukturen auf der Oberfläche untersucht werden.

2.1 Die Streuung thermischer He-Atome an defektfreien Oberflächen

In diesem Abschnitt werden die Grundzüge und wesentlichen Eigenschaften der He-Streuung an defektfreien Oberflächen dargestellt, soweit sie für das Verständnis der Experimente notwendig sind. Für eine umfassende Darstellung der theoretischen Gesichtspunkte der He-Substrat Wechselwirkung sei beispielsweise auf /47.,48./ verwiesen.

Die Wechselwirkung eines He-Atoms mit dem Substrat wird durch das ortsabhängige Wechselwirkungspotential $V(\vec{r})$ beschrieben. Dieses besteht aus einem langreichweitigen attraktiven und einem kurzreichweitigen repulsiven Teil:

$$V(\vec{r}) = V_{\text{Rep}}(\vec{r}) + V_{\text{Attr}}(\vec{r}) \quad , \quad [2.1]$$

Als Neutralteilchen wechselwirken die thermischen He-Atome bei deren Annäherung an die Oberfläche über attraktive Dispersionskräfte, d.h. über dipolinduzierte Van-der-Waals-Kräfte. Für große Abstände z von der Oberfläche hat der attraktive Teil des Potentials die asymptotische Form /49./:

$$V_{\text{Attr}}(z) = - \frac{C_3}{(z - z_0)^3} \quad . \quad [2.2]$$

C_3 und z_0 sind Konstanten, die durch die Energie und Polarisierbarkeit der He-Atome bestimmt werden. Man beachte, daß V_{Attr} nur vom Abstand der Atome von der Oberfläche abhängt, d.h. lateral als unstrukturiert behandelt wird. Beschreibt man die Wechselwirkung der He-Atome mit der Oberfläche durch Begriffe der geometrischen Optik, so bewirkt dieser Teil des Potentials eine „Brechung“ der Atome zur Oberfläche hin (Beeby-Korrektur /50./) analog dem Snelliusschen Gesetz der Optik. Der „Brechungsindex“ für He-Atome der Energie E_{He} wird durch $n = (1 + D/E_{\text{He}})^{1/2}$ gegeben. D bezeichnet die Tiefe des Wechselwirkungspotentials und entspricht der Bindungsenergie eines He-Atoms auf der Oberfläche. Aus theoretischen und expe-

rimentellen Untersuchungen wurde für die Tiefe des Wechselwirkungspotentials von He-Atomen mit der Pt(111)-Oberfläche ein Wert von $D \approx 4$ meV bestimmt /51.,52./.

Mit zunehmender Annäherung an die Oberfläche ($z \rightarrow z_0$) erfahren die He-Atome eine starke repulsive Wechselwirkung. Diese wird durch Pauli-Austauschkraften, d.h. durch die Überlappung der Elektronenhülle der He-Atome mit den äußeren Valenzelektronen der Oberfläche verursacht. Der repulsive Teil des Potentials läßt sich als proportional zur (ungestörten) Elektronendichteverteilung $\rho(\vec{r})$ der Oberfläche am Umkehrpunkt der He-Atome betrachten /53.,54./; er spiegelt also die laterale Korrugation der Elektronendichteverteilung der Oberfläche wieder. Im Gegensatz zum attraktiven Teil des Potentials existiert für den repulsiven Teil keine geschlossene Darstellung. Man erhält jedoch eine gute Beschreibung der gestreuten He-Intensität im Rahmen des „Exponential Corrugated Wall“-Modells /55.-57./:

$$V_{\text{Rep}}(\vec{r}) = V_0 \cdot e^{-\kappa[z - h(x,y)]} \quad [2.3]$$

κ bezeichnet hierbei die Steigung des Potentials und $h(x,y)$ die Korrugationsamplitude der Elektronendichteverteilung, also die Kontur gleicher Elektronendichte entlang der Oberfläche am Umkehrpunkt der He-Atome. Wegen der geringen Energie

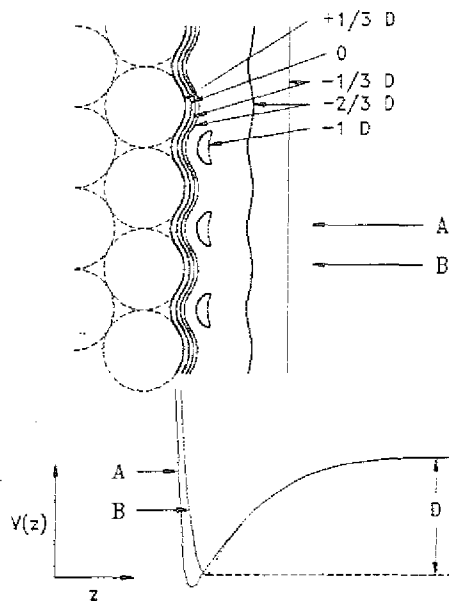


Abb. 2. Streuung von He-Atomen an einer defektfreien Oberfläche: In der oberen Figur sind die Äquipotentiallinien des repulsiven Teiles des He-Substrat Wechselwirkungspotentials in Einheiten der Potentialtiefe D gezeigt. Die untere Figur stellt schematisch den Verlauf des Wechselwirkungspotentials $V(z)$ als Funktion des Abstandes z der He-Atome von der Oberfläche für zwei Trajektorien dar (Nach R.E. Stickney /58./).

der He-Atome ($\bar{E}_{\text{He}} \lesssim 200$ meV) liegt deren klassischer Umkehrpunkt weit (3-4 Å) außerhalb der Oberfläche /53.,59.,60./. Die thermische He-Streuung ist also nur für die oberste Atomlage empfindlich und zudem absolut zerstörungsfrei.

Bei Metalloberflächen sind die Valenzelektronen sehr stark delokalisiert. Insbesondere bei dichtgepackten fcc(111)-Flächen ist die Korrugationsamplitude der Flächen gleicher Elektronendichte am Umkehrpunkt der He-Atome sehr klein ($\lesssim 0.02\text{Å}$). Aus diesem Grund besteht das Beugungsbild nur aus einem intensiven spekularen Peak; Beugungsordnungen höherer Ordnung weisen typischerweise eine 3-4 Größenordnungen niedrigere Intensität auf /61.-63./. Bei dem hier verwendeten Instrument (siehe Kapitel „Aufbau und Charakterisierung des Oberflächenexperimentes“ auf Seite 31) beträgt der dynamische Bereich des Detektors nur 3 Größenordnungen, so daß Beugungspeaks höherer Ordnungen nahezu vollkommen im Untergrund verschwinden. Die Pt(111)-Fläche läßt sich daher als ein fast perfekter Spiegel für He-Atome betrachten, bei dem nur ein intensiver spekulärer Peak auftritt. Gerade diese Strukturarmut des Beugungsbildes erleichtert die Interpretation der experimentellen Daten erheblich. Im folgenden soll betrachtet werden, wie sich die Anwesenheit isolierter Defekte auf die Spiegeleigenschaften der Oberfläche auswirkt.

2.2 Die diffuse Streuung an isolierten Defekten

Es ist zu erwarten, daß die Anwesenheit von Defekten auf der Oberfläche die He-Substrat Wechselwirkung nachhaltig beeinflußt. Erzeugt man einen isolierten Defekt (z.B. ein adsorbiertes Atom oder eine Fehlstelle) auf der ansonsten glatten Oberfläche, so entsteht eine lokale Störung der Elektronendichteverteilung $\rho(\vec{r})$ der Oberfläche. Diese Störung resultiert in einer Erhöhung der Korrugationsamplitude des Potentials am Bindungsplatz des Defektes. Es entsteht, anschaulich gesprochen, eine Aus- bzw. Einbuchtung des attraktiven und repulsiven Teils des Wechselwirkungspotentials. Die Existenz von Defekten in einer ungeordneten Verteilung führt also zu einem erhöhten Anteil diffuser Streuung und somit zu einer Reduktion der spiegelnd gestreuten He-Intensität. Die diffus gestreuten He-Atome werden über einen breiten Winkelbereich verteilt, so daß die Peakform in erster Näherung unbeeinflusst bleibt /64./. Da die Anwesenheit diffuser Streuer auf der Oberfläche lediglich eine Abschwächung der gespiegelten Intensität zur Folge hat, kann die Abnahme der normierten Höhe I/I_0 des Spiegelpeaks als Maß für die diffuse Streuung an Defekten eingeführt werden. I_0 bezeichnet hierbei die Peakhöhe für die ungestörte Oberfläche. Unter der Annahme, daß die diffusen Streuer isoliert vorliegen, also im Grenzfall

kleinster Defektkonzentrationen θ_D , läßt sich ein Wirkungsquerschnitt für diffuse Streuung Σ_D definieren /65.-67./:

$$\Sigma_D = -\frac{1}{n_s} \cdot \frac{d}{d\theta_D} \left(\frac{I}{I_0} \right) \Big|_{\theta_D=0} \quad [2.4]$$

mit n_s als der Flächendichte² der Oberflächenatome. So wurde beispielsweise im Fall immobiler Fehlstellen auf der Pt(111)-Fläche aus der Abnahme der He-Reflektivität als Funktion der Fehlstellenkonzentration ein Wirkungsquerschnitt für diffuse Streuung von $\Sigma_F = 150 \text{ \AA}^2$ ermittelt /31./. Ähnlich große Werte wurden auch für CO, Xe, H₂O, O₂ und NO auf unterschiedlichen Oberflächen beobachtet /65.,68.,69./. Die Fläche dieses „schwarzen Flecks“ auf der spiegelnden Oberfläche ist erheblich größer als die Störung des repulsiven Teils des Wechselwirkungspotentials von typischerweise einer Einheitszelle ($\approx 10 \text{ \AA}^2$). Das bedeutet, daß mit Hilfe der He-Streuung schon sehr kleine Defektkonzentrationen nachgewiesen werden können.

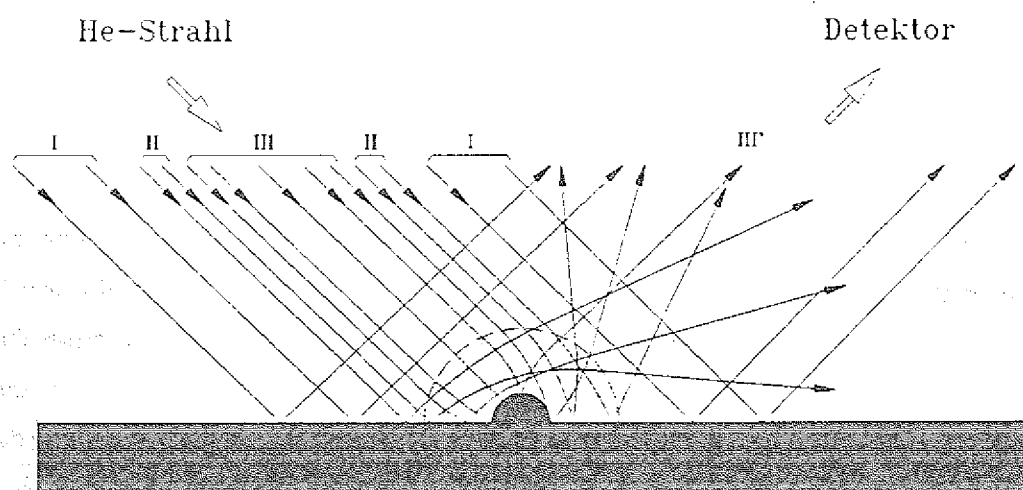


Abb. 3. Streuung von He-Atomen an isolierten Defekten: Die Abbildung zeigt den Verlauf des repulsiven Potentials der Oberfläche und eines Adsorbats am Umkehrpunkt der He-Atome. Der Wechselwirkungsbereich des attraktiven Potentials für das Adsorbat ist schattiert angedeutet. Die Kennzeichnungen der He-Trajektorien entsprechen der ungestörten Reflexion (I), der diffusen Streuung durch ausschließlich attraktive Wechselwirkung (II) sowie der diffusen Streuung durch attraktive und repulsive Wechselwirkung (III). Die Trajektorie III' deutet den Beitrag der diffusen Streuung in die gespiegelte Richtung an. (Nach B. Poelsema und G. Comsa /34./).

² für die Pt(111)-Fläche gilt $n_s^{-1} = 6.67 \text{ \AA}^2$

Obwohl die extreme Empfindlichkeit der He-Streuung auf die Anwesenheit von Defekten schon oft beobachtet wurde, wurden die Mechanismen, die zu der Entstehung dieser großen Streuquerschnitte führen, lange Zeit nicht verstanden /70.-72./. Erst die experimentelle Bestimmung der Abhängigkeit der Größe diffuser Streuquerschnitte von der Energie der einfallenden He-Atome durch Poelsema und Mitarbeiter /66.,73.,74./ konnte den Mechanismus der diffusen Streuung aufklären. Die Autoren zeigten, daß die Streuung von He-Atomen an adsorbatbedeckten Oberflächen identisch zu der in der Gasphase ist. Dort ist seit langem bekannt, daß die diffuse Streuung von Atomen und Molekülen weitgehend durch den attraktiven Teil des Wechselwirkungspotentials bestimmt wird und zu ähnlich großen Streuquerschnitten führt /75./. Wie auch spätere theoretische Untersuchungen zeigten /76./, wird die diffuse Streuung auch an adsorbatbedeckten Oberflächen durch die langreichweitigen Dispersionskräfte bestimmt. Dies ist in Abb. 3 auf Seite 10 schematisch dargestellt. Die Größe der beobachteten Streuquerschnitte und somit die extreme Empfindlichkeit der He-Streuung für Verunreinigungen und Defekte ist also der adsorbatinduzierten Korrigation des attraktiven Teils des Wechselwirkungspotentials zuzuordnen.

2.3 Die Streuung von He-Atomen an geordneten Defektstrukturen

Im letzten Abschnitt haben wir gesehen, daß die Anwesenheit von Defekten auf der Oberfläche Anlaß zu diffuser Streuung gibt. Die beobachteten Streuquerschnitte von typischerweise $\Sigma_D \approx 100 \text{ \AA}^2$ werden maßgeblich durch die attraktiven langreichweitigen Dispersionskräfte der He-Substrat Wechselwirkung bestimmt. Im bisherigen Verlauf der Diskussion wurde ausschließlich der Fall betrachtet, bei dem die Defekte isoliert sind. Diese Situation liegt jedoch nur im Grenzfall kleinster Defektkonzentrationen vor. Bei größeren Bedeckungen können sich die diffusen Streuquerschnitte der Defekte erheblich überlappen. Diese Überlappung führt zu einer Reduzierung des effektiven Streuquerschnitts pro Defekt; für eine Fehlstelle in einem Dimer ergibt sich beispielsweise ein effektiver Streuquerschnitt von nur $\Sigma_{F,Dim} \approx 90 \text{ \AA}^2$ /31./ (gegenüber $\Sigma_F = 150 \text{ \AA}^2$ bei einer isolierten Fehlstelle). Bei gegebener Bedeckung hängt der Überlappingsgrad der Streuquerschnitte und somit die kohärent gestreute He-Intensität von der lateralen Verteilung der diffusen Streuer auf der Oberfläche ab. Durch die Anwendung des „Überlappungsmodells“ /34.,67.,77./ ist man daher in der Lage, wichtige Aufschlüsse über die laterale Verteilung diffus streuender Defekte auf der Oberfläche zu erhalten (für Details siehe /34./). Auf diese Weise konnte beispielsweise die laterale attraktive Wechselwirkung zwischen Fehlstellen /65.,67./ und

zwischen adsorbierten Xe-Atomen /78./, aber auch die repulsive Wechselwirkung zwischen adsorbierten CO-Molekülen /67./ oder H-Atomen /79.-82./ beobachtet werden.

Die Beschreibung der kohärent gestreuten He-Intensität als Funktion der Defektkonzentration der Oberfläche mit Hilfe des Überlappungsmodells ist nur dann gültig, wenn vollständig diffus streuende Defekte betrachtet werden, also die in die gespiegelte Richtung gestreute inkohärente He-Intensität vernachlässigbar ist. Trifft dies nicht zu, so können die Defekte bei größeren Bedeckungen eine neue periodische Korrugation des Wechselwirkungspotentials hervorrufen, so daß die He-Reflektivität aufgrund von Beugungseffekten erneut ansteigen kann. Gerade bei dem Wachstum, aber auch bei dem Zerstäuben von Schichten ist dieser Fall von besonderer Wichtigkeit und soll im folgenden näher beleuchtet werden. Die attraktive laterale Wechselwirkung zwischen Adatomen und zwischen Fehlstellen führt bei hinreichend hoher Mobilität zur Bildung von Inseln. Bei homoepitaktischen Systemen ist dies gleichbedeutend mit der Entstehung bzw. Aufdeckung von Terrassen in höheren bzw. tieferen Niveaus, die ab einer bestimmten Größe (siehe Abschnitt „Die diffuse Streuung an Stufen“ auf Seite 21) mit den He-Atomen wie die ungestörte Oberfläche wechselwirken, also spiegelnd reflektieren können. Die gestreute He-Intensität während des Wachstums und Zerstäubens von Schichten wird also nicht nur von diffuser Streuung, sondern auch durch die Beugung von He-Atomen an den sichtbaren Terrassen in unterschiedlichen Niveaus bestimmt. Diese Beugungseffekte führen jedoch im allgemeinen zu einer Änderung der Form und Breite des gespiegelten Peaks, so daß die Beobachtung der Peakhöhe oftmals nicht mehr ausreicht, um quantitative Aussagen über die Verteilung der entstandenen Terrassen zu treffen. Diese können streng genommen nur aus einer detaillierten Analyse der in den gesamten Halbraum gestreuten He-Intensität gewonnen werden. In den folgenden beiden Abschnitten soll dies näher betrachtet werden.

2.3.1 Die Beugung von He-Atomen an gestuften Oberflächen

Im Rahmen der kinematischen Näherung wird die He-Intensität $I(\vec{K}_i, \vec{K}_f)$ nach der Streuung an einer periodisch gestuften Oberfläche formal durch das Produkt eines „Formfaktors“ $F(\vec{K}_i, \vec{K}_f)$ mit einem „Gitterfaktor“ $G(\vec{K}_i, \vec{K}_f)$ beschrieben:

$$I(\vec{K}_i, \vec{K}_f) = F(\vec{K}_i, \vec{K}_f) \cdot G(\vec{K}_i, \vec{K}_f) \quad . \quad [2.5]$$

$\vec{K}_i$ und $\vec{K}_f$ bezeichnen den einfallenden (Index i) bzw. ausfallenden Wellenvektor (Index f). Der Formfaktor $F(\vec{K}_i, \vec{K}_f)$ beschreibt die *Intensitäten* der einzelnen Beugungsordnungen und entspricht dem durch die Beugung an einer einzelnen Einheitszelle verursachten Intensitätsbeitrag. Die *Position* der einzelnen Beugungspeaks im reziproken Raum wird durch den Gitterfaktor $G(\vec{K}_i, \vec{K}_f)$ wiedergegeben, der durch die Fouriertransformation der realen Anordnung der einzelnen Einheitszellen, d.h. durch die Struktur der Oberfläche bestimmt wird. Da nur Intensitäten, aber keine Phasenbeziehungen beobachtet werden können, ist die Ermittlung der realen Oberflächenstruktur aus der gestreuten He-Intensität schwierig („Inversionsproblem“), weshalb auch Modelle zur Bestimmung der Oberflächenmorphologie aus der gebeugten Intensität im allgemeinen mathematisch anspruchsvoll und auf Annahmen über die Topographie der Oberfläche angewiesen sind [83.-91./]. Allen gemeinsam ist die Notwendigkeit einer detaillierten Analyse der Peakform, was jedoch gerade bei der Untersuchung der Kinetik von Ausheilprozessen während des Wachstums von

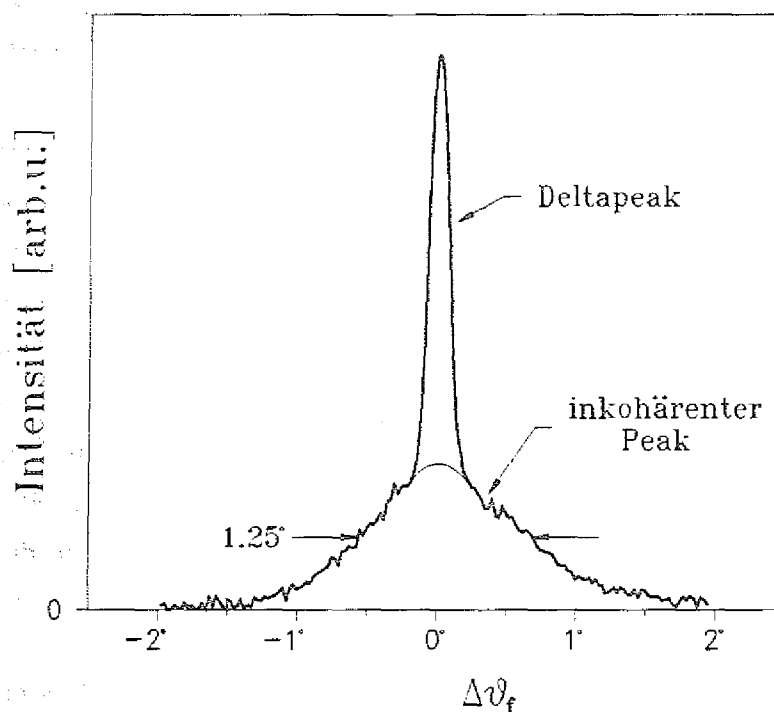


Abb. 4. Experimentell beobachtetes Peakprofil nach der Streuung von He-Atomen an einer unregelmäßig gestuften Oberfläche; Die Figur zeigt die Höhe des gespiegelten Anti-Phase Peaks als Funktion der Variation $\Delta\theta_f$ des Ausfallswinkels um den Spiegelwinkel $\theta_i = \theta_f = 72.3^\circ$ ($n=2.5$). Das Profil wurde nach der Deposition von 2.0 ML ($R=0.22$ ML/min) bei einer Oberflächentemperatur von $T_s=300$ K und einer mittleren de-Broglie Wellenlänge der He-Atome von $\lambda_{He}=0.56$ Å beobachtet.

Schichten wenig praktikabel ist. Wir werden uns daher auf eine qualitative Diskussion der grundlegenden Eigenschaften der Form des gespiegelten He-Peaks nach der Streuung an einer unregelmäßig gestuften Oberfläche beschränken.

Untersuchen wir die Streuung von He-Atomen an einer dichtgepackten Metalloberfläche genauer. Wie bereits erwähnt wurde, läßt sich eine ideale Pt(111)-Fläche als ein nahezu perfekter Spiegel für thermische He-Atome auffassen (siehe Abschnitt „Die Streuung thermischer He-Atome an defektfreien Oberflächen“ auf Seite 7). Das Beugungsbild dieser Fläche besteht nur aus einem scharfen „Deltapeak“ in der gespiegelten Richtung. Die während eines Wachstums- und Zerstäubungsexperimentes gebildeten Inseln führen zu einer Beeinflussung der Winkelverteilung der gestreuten He-Atome, so daß ein zusätzlicher verbreiteter Peak auftritt, der in Anlehnung an Levi et al. /86./ als „inkohärenter Peak“ bezeichnet werden soll. In Abb. 4 auf Seite 13 ist ein Beispiel für ein experimentell beobachtetes Intensitätsprofil angegeben, in dem beide Beiträge zur gestreuten Intensität klar zu unterscheiden sind. Im Prinzip enthalten beide Peaks Informationen sowohl über die laterale Verteilung der sichtbaren Terrassen als auch über die Verteilung der sichtbaren Terrassen in unterschiedlichen Niveaus. Zur vollständigen Bestimmung der Oberflächenstruktur muß daher das gesamte Beugungsbild analysiert werden. Unter bestimmten Voraussetzungen lassen sich jedoch aus beiden Beiträgen komplementäre Informationen über die Struktur der Fläche gewinnen. Nimmt man etwa an, daß zum Beispiel die Oberfläche sichtbare Terrassen in nur wenigen Niveaus aufweist, so wird das Intensitätsprofil des inkohärenten Peaks praktisch nur durch die laterale Verteilung der sichtbaren Terrassen beeinflusst (siehe Abschnitt „Instrumentelle Effekte bei der Beugung an einer gestuften Oberfläche“ auf Seite 26). Dementsprechend lassen sich aus der Beobachtung der Höhe des Deltapeaks Aussagen über die Verteilung sichtbarer Terrassen in unterschiedlichen Niveaus treffen. Im folgenden soll diskutiert werden, welche qualitativen und quantitativen Informationen aus der Analyse der Höhe bzw. Breite und Form der beiden Intensitätsbeiträge gewonnen werden können.

Zunächst sei die Form des gespiegelten Peaks anhand eines Modells diskutiert, welches recht anschaulich und in einfacher Weise die Beugung von He-Atomen an unregelmäßig gestuften Oberflächen beschreiben kann: das Facettenmodell /92.,93./. Im Rahmen dieses Modells wird eine Oberfläche durch ein Ensemble ideal streuender, d.h. spiegelnder Facetten beschrieben, die jeweils einen bestimmten Kippwinkel α_i zwischen der makroskopischen Fläche und der durch die jeweilige Facette verlaufenden Ebene aufweisen. Untersuchen wir daher eine Oberfläche, auf der während

des Wachstums oder Zerstäubens von Schichten eine Vielzahl dieser „künstlich erzeugten“ Terrassen vorhanden sind, etwas genauer. Eine Zahl von Experimenten an derartigen Flächen zeigen, daß die Terrassen zwei charakteristische Merkmale aufweisen: die Orientierung der Terrassenflächen entspricht den niedrigindizierten (111)-Flächen /94.,95./, und die Stufen zwischen zwei Terrassen verlaufen entlang dichtgepackter Richtungen /95.,96./. Die Terrassen unterscheiden sich also nur durch ihre Größe, d.h. die Terrassenbreite, und durch die Stufensequenz (aufsteigende oder absteigende Stufen). Der Kippwinkel α_f der einzelnen Facetten entspricht also dem Winkel, der durch die in den (111)-Terrassen und die durch die Stufenkanten verlaufenden Ebenen gebildet wird. Dieser ist durch die Terrassenbreite Δ sowie durch die Höhendifferenz h der durch monoatomare Stufen getrennten Terrassen bestimmt:

$$\alpha_f = \arctan \left(\frac{h}{\Delta} \right) \quad [2.6]$$

Um das Beugungsbild dieser Oberfläche zu beleuchten, betrachten wir zunächst den Fall einer eindimensional und regelmäßig gestuften Oberfläche, die durch die Existenz von Terrassen gleicher Breite und Stufensequenz charakterisiert ist. Sind die Terrassen genügend groß (siehe Abschnitt „Die diffuse Streuung an Stufen“ auf Seite 21), so reflektieren sie die He-Atome wie Spiegel und die Beugung läßt sich wie die von Licht an einem Echelette-Gitter /97.,98./ beschreiben. In diesem Fall tragen zwei Beiträge zur Entstehung des Beugungsmusters bei: die Beugung an den einzelnen

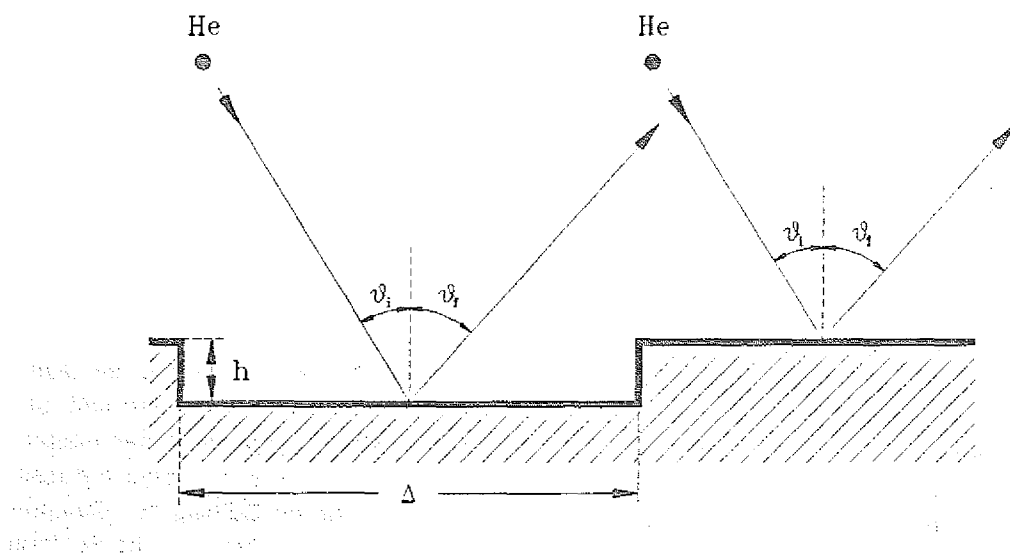


Abb. 5. Die Streuung von He-Atomen an einer gestuften Oberfläche: Dargestellt sind die unter dem Winkel θ_i einfallenden und die unter dem Winkel θ_f gestreuten He-Atome. Die Breite der Terrassen wird mit Δ und die Höhendifferenz benachbarter Terrassen mit h bezeichnet.

(111)-Terrassen der Breite Δ und die Beugung an den als Punktstrahler betrachteten Terrassen. Die Streuung von He-Atomen an Terrassen endlicher Breite führt zu einem Intensitätsbeitrag analog zur Beugung an einem Spalt in der Optik. Dieser Beitrag bildet die Amplitudenfunktion, d.h. den Formfaktor aus Gl. 2.5, und bestimmt die Intensität der in die entsprechende Beugungsordnung gestreuten He-Atome. Der Gitterfaktor, also die Position von Beugungspeaks der Ordnung $m \in \mathbb{N}$ im reziproken Raum, wird durch die Periodizität der Terrassenmitten, d.h. durch die Bragg-Bedingung für eine senkrecht durch die Stufenkanten verlaufende Streuebene gege-

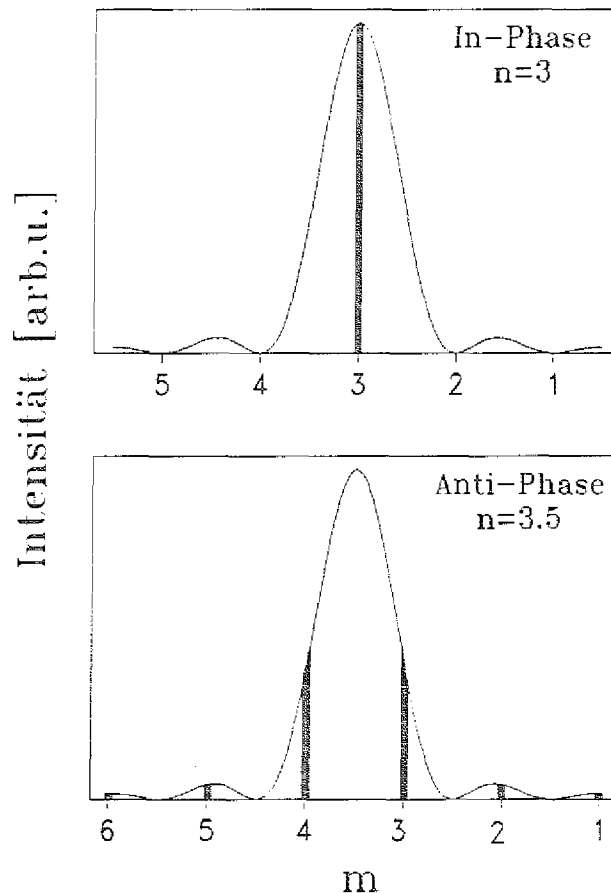


Abb. 6. Amplitudenfunktion und resultierende Intensität bei der Beugung an einer regelmäßig gestuften Oberfläche: Die durchgezogene Kurve entspricht der Amplitudenfunktion aus Gl. 2.7, deren Hauptmaximum jeweils in der gespiegelten Richtung relativ zu den Terrassen liegt. Auf der Abszisse sind die Beugungsordnungen der Bragg-Peaks angegeben und deren Beitrag zur Gesamtintensität als senkrechte Balken angedeutet. In der oberen Figur ist die Position der Bragg-Peaks für In-Phase Bedingungen gezeigt; die Phasendifferenz der Streubeiträge von benachbarten Terrassen unter Spiegelbedingungen beträgt $hk_{\perp} = 6\pi$. In der unteren Figur ist die Situation für Anti-Phase Bedingungen ($hk_{\perp} = 7\pi$) dargestellt.

ben. Die normierte Intensität $(I/I_0)_R$ der regelmäßig gestuften Oberfläche ergibt sich dann bei einem idealen Instrument zu:

$$\left(\frac{I}{I_0}\right)_R(\vec{K}_i, \vec{K}_f, \alpha_f) = \frac{\sin^2\left(\frac{\Delta \cdot k_{\parallel}}{2}\right)}{\left(\frac{\Delta \cdot k_{\parallel}}{2}\right)^2} \cdot \delta(\Delta \cdot k_{\parallel} + h \cdot k_{\perp} - 2\pi m) \quad [2.7]$$

$k_{\parallel} = |\vec{K}_i - \vec{K}_f|_{\parallel}$ und $k_{\perp} = |\vec{K}_i - \vec{K}_f|_{\perp}$ bezeichnen die Beträge der zur Oberfläche parallelen bzw. senkrechten Komponenten des Wellenvektorübertrags und sind jeweils auf die Terrassenebenen bezogen. Das Hauptmaximum des Amplitudenterms liegt in der gespiegelten Richtung ($k_{\parallel} = 0$). Die Position der Bragg-Peaks ist jedoch zusätzlich durch $k_{\perp}$ bestimmt, so daß sich zwei Spezialfälle unterscheiden lassen:

1. Ist die Phasendifferenz $hk_{\perp}$ unter Spiegelbedingungen ein Vielfaches von 2π , d.h. wenn die Bedingung $hk_{\perp} = 2\pi n$ mit $n = 0, 1, 2, \dots$ ³ erfüllt ist, dann ergibt sich konstruktive Interferenz. Im weiteren Verlauf der Diskussion wird dieser Fall als **In-Phase Streuung** bezeichnet. Hierbei fällt der Bragg-Peak m -ter Ordnung genau in das Hauptmaximum der Amplitudenfunktion ($m = n$); höhere Beugungsordnungen liegen in sehr guter Näherung in deren Minima. Wie auch die obere Figur von Abb. 6 auf Seite 16 illustriert, beobachtet man nur Intensität in der gespiegelten Richtung. Die gestreute He-Intensität wird unter In-Phase Bedingungen nicht von der Größe und Orientierung der einzelnen Terrassen beeinflusst. Das Beugungsbild besteht also nur aus dem Deltapeak, dessen Breite und Form durch die instrumentellen Verbreiterungen bestimmt wird. Die Struktur der Oberfläche wirkt sich nur in einer Reduktion der Peakhöhe durch diffuse Streuung an den Stufenkanten aus (die in Gl. 2.7 nicht berücksichtigt wurde).
2. Bei einer Phasendifferenz $hk_{\perp}$, die ein ungeradzahliges Vielfaches von π beträgt ($n = 0.5, 1.5, 2.5, \dots$), liegt eine andere Situation vor. In diesem Fall ergibt sich destruktive Interferenz oder **Anti-Phase Streuung**. Wie auch die untere Figur von Abb. 6 zeigt, verschieben sich die Bragg-Peaks relativ zu der Amplitudenfunktion, so daß zwei annähernd symmetrisch um das Hauptmaximum der Amplitudenfunktion angeordnete Bragg-Peaks entstehen. Der Abstand dieser Peaks ist proportional zu $1/\Delta$ und liefert somit ein Maß für die Terrassenbreite Δ [34].

³ Im weiteren wird der Faktor n als „Phasenindex“ bezeichnet werden.

Dieses Bild läßt sich auf natürliche Weise auf den Fall einer unregelmäßig gestuften Oberfläche verallgemeinern, die sich durch ein Ensemble von Terrassen unterschiedlicher Breite, Orientierung und Stufensequenz beschreiben läßt. Das Intensitätsprofil ist dann durch die Überlagerung der Streubeiträge von regelmäßig gestuften Anteilen der Oberfläche bestimmt und kann für ein ideales Instrument unter Vernachlässigung diffuser Streuung folgendermaßen beschrieben werden /92./:

$$\frac{I}{I_0}(\vec{K}_i, \vec{K}_f) = \int_{-\pi}^{\pi} \left(\frac{I}{I_0} \right)_R(\vec{K}_i, \vec{K}_f, \alpha_f) \cdot P(\alpha_f) d\alpha_f \quad [2.8]$$

$(I/I_0)_R$ bezeichnet das in Gl. 2.7 angegebene Intensitätsprofil einer regelmäßig gestuften Oberfläche. $P(\alpha_f)$ gibt die Wahrscheinlichkeit an, auf der Oberfläche Terrassen vorzufinden, die mit der durch die Stufenkanten verlaufenden Ebene einen Winkel α_f bilden. Bei einer regelmäßig gestuften Oberfläche entspricht $P(\alpha_f)$ einer Deltafunktion und Gl. 2.8 reduziert sich zu der in Gl. 2.7 angegebenen Form. Im Gegensatz dazu zeichnet sich eine unregelmäßig gestufte Oberfläche durch eine Vielzahl von Terrassenbreiten aus, die jeweils mit der Wahrscheinlichkeit $P(\alpha_f)$ zur gestreuten Intensität beitragen. Unter Anti-Phase Bedingungen erhält man für jede vorkommende Terrassenbreite jeweils zwei (annähernd) symmetrisch um die Spiegelrichtung liegende Bragg-Peaks. Da deren Abstand und relative Höhe durch die Terrassenbreite und die Wahrscheinlichkeitsfunktion $P(\alpha_f)$ bestimmt wird, überlagern sich die einzelnen Bragg-Peaks zu einem resultierenden verbreiterten Peak. Bei einem Ausfallwinkel ϑ_f wird die Halbwertsbreite des verbreiterten Peaks in guter Näherung durch die mittlere Terrassenbreite $\bar{\Delta}$ und die mittlere de-Broglie Wellenlänge $\bar{\lambda}_{He}$ der He-Atome bestimmt:

$$\Delta\vartheta_{1/2} = \frac{\bar{\lambda}_{He}}{\bar{\Delta} \cos \vartheta_f} \quad [2.9]$$

Mit Hilfe des Facettenmodells wird das vollständige Intensitätsprofil des gespiegelten Anti-Phase Peaks, bestehend aus dem Deltapeak und dem inkohärenten Peak beschrieben. Im Prinzip enthalten beide Intensitätsbeiträge Informationen sowohl über die laterale Verteilung sichtbarer Terrassen als auch über die Verteilung sichtbarer Terrassen in unterschiedlichen Niveaus. Unter bestimmten Bedingungen (siehe Abschnitt „Instrumentelle Effekte bei der Beugung an einer gestuften Oberfläche“ auf Seite 26) lassen sich jedoch aus der Höhe des Deltapeaks und der Form des inkohä-

renten Peaks komplementäre Informationen über die Oberflächenmorphologie gewinnen: nimmt man an, daß die Anwesenheit dreidimensionaler Strukturen lediglich zu einer vernachlässigbar kleinen Peakverbreiterung führt, so wird die Breite und Form des Deltapeaks praktisch nur durch die instrumentelle Verbreiterung bestimmt. Die Höhe des Deltapeaks resultiert dann aus der nicht vollkommenen Auslöschung der Streubeiträge von benachbarten Terrassen, also aus der Existenz von sichtbaren Terrassen in unterschiedlichen Niveaus. Im Gegensatz dazu lassen sich aus der Breite und Form des inkohärenten Peaks Informationen über die laterale Verteilung der sichtbaren Terrassen, d.h. über die Terrassenbreiteverteilung $P(\alpha_i)$ gewinnen. Dazu muß eine detaillierte Analyse der Peakform erfolgen, was jedoch hier nicht diskutiert werden soll; für eine ausführliche Beschreibung sei auf /92.,93./ verwiesen. Die Messung der Halbwertsbreite des inkohärenten Peaks erlaubt allerdings eine einfache Abschätzung der mittleren Terrassenbreite der Oberfläche. So ergibt sich beispielsweise aus der Halbwertsbreite des inkohärenten Peaks der in Abb. 4 auf Seite 13 gezeigten Intensitätsverteilung nach Gl. 2.9 eine mittlere Terrassenbreite von $\bar{\Delta} = 84 \text{ \AA}$.

2.3.2 Die Verteilung sichtbarer Terrassen auf unterschiedlichen Niveaus

Im letzten Abschnitt wurde die Beugung von He-Atomen an einer unregelmäßig gestuften Oberfläche diskutiert, wobei wir uns speziell auf den Einfluß der lateralen Verteilung sichtbarer Terrassen auf den inkohärenten Peak konzentriert haben. In diesem Abschnitt soll betrachtet werden, welche Informationen aus der Beobachtung der Höhe des Deltapeaks gewonnen werden können. Dazu wird zunächst ein ideales Instrument angenommen: die Energie- und Winkelverteilung des einfallenden He-Strahles sowie die Winkelauflösung des Detektors entsprechen Deltafunktionen. Darüber hinaus sei der Einfluß diffuser Streuung (z.B. an Stufen) vernachlässigt. Betrachtet man unter diesen Voraussetzungen eine Oberfläche, die sichtbare Terrassen in N unterschiedlichen Niveaus aufweist, so tragen alle Terrassen im Niveau ℓ mit einer Streuamplitude $A_\ell \cdot \exp(i\phi_\ell)$ zur gespiegelten Peakhöhe bei. Die Größe A_ℓ läßt sich als Wahrscheinlichkeit auffassen, ein Atom im Niveau ℓ vorzufinden und entspricht der gesamten reflektierenden Fläche im Niveau ℓ . ϕ_ℓ bezeichnet einen Phasenfaktor. Die normierte Höhe des Deltapeaks $(I/I_0)_0$ wird dann als Funktion des Übertrags $k_\perp$ der zur Oberfläche senkrechten Komponente des Wellenvektors durch die Beziehung

$$\left(\frac{1}{I_0}\right)_D(k_{\perp}, k_{\parallel}=0) = A^* A = \sum_{\ell, m=0}^N \frac{A_{\ell} A_m}{A_0^2} e^{i\phi_{\ell m}} \quad [2.10]$$

beschrieben [32.,34.,89.,90.]. $I_0 = A_0^2 = |A_0|^2$ bezieht sich auf die Streuung an der ungestörten Oberfläche. Die Phasendifferenz $\phi_{\ell m} = \phi_{\ell} - \phi_m$ ist durch die Höhendifferenz h von Terrassen auf benachbarten Niveaus, die mittlere de-Broglie Wellenlänge $\bar{\lambda}_{\text{He}}$ der He-Atome und den Spiegelwinkel $\vartheta_i (= \vartheta_f)$ relativ zur Oberflächennormalen bestimmt:

$$\begin{aligned} \phi_{\ell m} &= (\ell - m) \cdot h k_{\perp} \\ &= \frac{4\pi h}{\bar{\lambda}_{\text{He}}} (\ell - m) \cos \vartheta_i \end{aligned} \quad [2.11]$$

Für In-Phase Bedingungen wird die Höhe des Deltapeaks nur durch die Summe aller Streubeiträge in die gespiegelte Richtung, d.h. durch die gesamte reflektierende Fläche bestimmt. Man erhält keine Informationen darüber, aus welchen Niveaus gestreut wurde. Die normierte Höhe des gespiegelten In-Phase Peaks ist also nur für diffuse Streuung empfindlich. Im Gegensatz dazu spiegelt die normierte Höhe des Deltapeaks unter Anti-Phase Bedingungen die Verteilung der sichtbaren Terrassen in unterschiedlichen Niveaus wieder. Gl. 2.10 reduziert sich hier zu:

$$\left(\frac{1}{I_0}\right)_D^{\text{Anti}} = \left[\sum_{\ell=0}^N (-1)^{\ell} \frac{A_{\ell}}{A_0} \right]^2 \quad [2.12]$$

Der Deltapeak tritt also dann auf, wenn die Summe der Streubeiträge von Terrassen in geradzahligen Niveaus ($A_{2\ell}$) ungleich zu der von ungeradzahligen Niveaus ($A_{2\ell+1}$) ist. Sind die Summen gleich, so entsteht vollständige destruktive Interferenz; der Deltapeak verschwindet und das Intensitätsprofil weist nur noch den verbreiterten inkohärenten Peak auf.

Kommen wir abschließend noch einmal auf die Informationen über die Morphologie der Oberfläche zurück, die man aus der Beobachtung der Höhe des gespiegelten Peaks unter Anti-Phase Bedingungen gewinnen kann. Die eben ausgeführte Beschreibung der gespiegelten Peakhöhe bezog sich ausschließlich auf ein ideales Instrument. Untersucht man unter diesen Voraussetzungen die Streuung an einer unregelmäßig gestuften Oberfläche, so wird die gespiegelte Peakhöhe ausschließlich

durch den Deltapeak bestimmt. Da dessen Form und Breite konstant bleiben, ist die Peakhöhe ein gutes Maß für die Niveauverteilung der sichtbaren Terrassen. Die im Experiment gemessene Intensitätsverteilung wird jedoch durch die Faltung der Intensität, die mit einem idealen Instrument beobachtet werden würde, mit den instrumentellen Verbreiterungen gegeben. Das hat zur Folge, daß die Höhe des gespiegelten Peaks unter Anti-Phase Bedingungen endlich ist und auch durch die Höhe des inkohärenten Peaks beeinflußt wird. Dadurch wird streng genommen eine vollständige Messung des Peakprofils erforderlich. Dies ist jedoch oftmals nicht praktikabel, so daß man auf eine Abschätzung des Einflusses des inkohärenten Beitrags auf die beobachtete Peakhöhe angewiesen ist. Dennoch lassen sich, wie in den späteren Kapiteln gezeigt wird, wichtige qualitative und oftmals auch quantitative Merkmale der Verteilung sichtbarer Terrassen während des Wachstums und Zerstäubens reproduzieren, wenn die Höhe des inkohärenten Beitrags gegen die des Deltapeaks vernachlässigt wird.

2.3.3 Die diffuse Streuung an Stufen

Die bisherige Betrachtung der Streuung von He-Atomen an unregelmäßig gestuften Oberflächen beschränkte sich auf die Diskussion der Beugung: die einzelnen Terrassen streuen die He-Atome wie die defektfreie Fläche, da die Korrugation des He-Oberflächen Wechselwirkungspotentials in beiden Fällen identisch ist. Dieses Bild ist jedoch nicht vollständig, da der Einfluß der Stufen, durch die benachbarte Terrassen getrennt sind, auf die Streuung der He-Atome außer acht gelassen wurde. Man kann sich leicht vorstellen, daß Stufen, ähnlich wie isolierte Defekte, zu einer lokalen Änderung der Korrugation des Wechselwirkungspotentials und somit zu diffuser Streuung führen. Es entsteht entlang einer (linear in einer dichtgepackten Richtung verlaufenden) Stufenkante ein diffus streuendes Band der Länge S und der Breite D . In völliger Analogie zur diffusen Streuung an isolierten Defekten (siehe Abschnitt „Die diffuse Streuung an isolierten Defekten“ auf Seite 9) kann die Abnahme der In-Phase Peakhöhe durch die folgende Beziehung beschrieben werden [34.,93./:

$$\frac{I}{I_0} = (1 - DS)^2 \quad [2.13]$$

Die Breite D des diffus streuenden Bandes wurde bei der Pt(111)-Fläche in einem Zerstäubungsexperiment bestimmt. Dazu wurden durch Ionenbeschuß Fehlstelleninseln erzeugt und die Abnahme des kohärent gestreuten Signals unter In-Phase sowie das Profil des gespiegelten Peaks unter Anti-Phase Bedingungen gemessen. Durch

die Analyse des Peakprofils mit Hilfe des Facettenmodells (siehe Abschnitt „Die Beugung von He-Atomen an gestuften Oberflächen“ auf Seite 12) und dem Vergleich mit den In-Phase Daten wurde die Breite des diffus streuenden Bereiches zu $D = 12 \pm 2 \text{ \AA}$ bestimmt /93./. Später wurde auf einer Cu(100)-Oberfläche mit einem unterschiedlichen Verfahren ein ähnlicher Wert von $D = 13 \text{ \AA}$ beobachtet /99./. Vergleicht man die Breite des diffus streuenden Bereiches an Stufen mit dem Durchmesser des diffus streuenden Bereiches isolierter Defekte ($\sim 10 \text{ \AA}$), so stellt man eine gute Übereinstimmung fest. Das läßt darauf schließen, daß die diffuse Streuung an Stufen, in Analogie der an isolierten Defekten, maßgeblich durch den langreichweitigen Teil des He-Oberflächen Wechselwirkungspotentials beeinflusst wird, was im übrigen auch durch theoretische Betrachtungen bestätigt wurde /100./.

Die Beobachtung der Abnahme der He-Intensität unter In-Phase Bedingungen erlaubt es mit Hilfe der in Gl. 2.13 angegebenen Beziehung, Informationen über die Stufenkonzentration der Oberfläche zu gewinnen. Dies gilt auch für die Beobachtung der Abnahme der Peakhöhe, da die diffus gestreuten Teilchen in den gesamten Winkelbereich gestreut werden und bei dem hier verwendeten Instrument keine meßbare

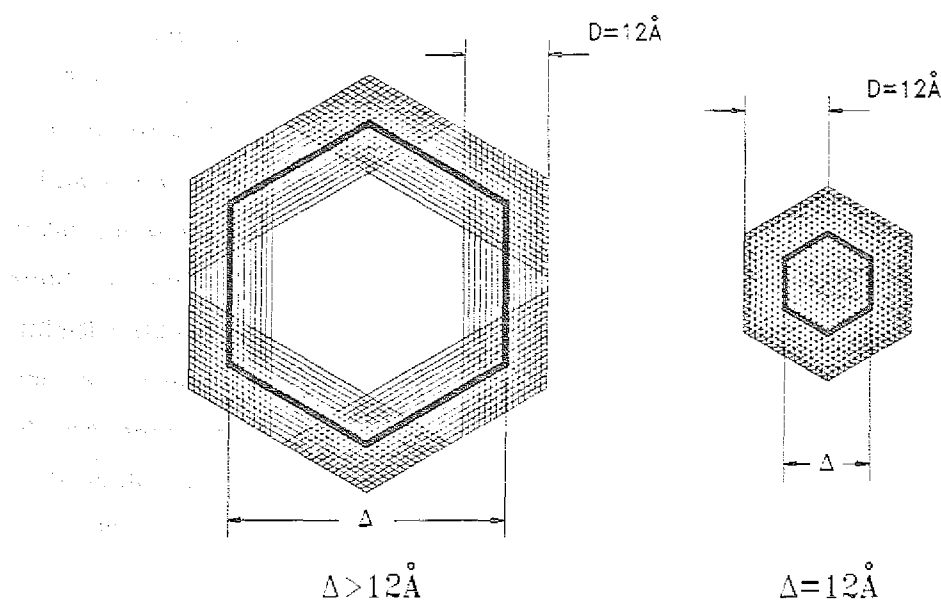


Abb. 7. Diffuse Streuung an Stufen bei unterschiedlichen Terrassenbreiten: Die Abbildung zeigt Terrassen der Breite Δ und die längs der Stufenkanten verlaufenden diffus streuenden Bänder der Breite D . Die mehrfach schraffierten Gebiete deuten die Überlappung der Bereiche an. In der linken Figur ist die Terrassenbreite so groß, daß ein Teil der Insel ungestört reflektieren kann. Die Insel im rechten Teil der Abbildung streut ausschließlich diffus, da die Terrassenbreite kleiner als $\Delta \leq D = 12 \text{ \AA}$ ist.

Peakverbreiterung hervorrufen. Dennoch gilt Gl. 2.13 nur unter Einschränkungen. Es wurde nämlich angenommen, daß es keine Überlappung diffuser Streubeiträge sich kreuzender Stufen gibt. Diese Voraussetzung ist jedoch nur für große Terrassen erfüllt, bei denen die Überlappung der diffus streuenden Bänder an deren „Ecken“ (siehe dazu auch den linken Teil von Abb. 7 auf Seite 22) vernachlässigt werden kann. Werden die Terrassen kleiner, so muß die Überlappung berücksichtigt werden und man ist auf Modellannahmen über die Topographie der Oberfläche angewiesen /z.B. 80./.

Im rechten Teil von Abb. 7 ist der Fall dargestellt, bei dem die Terrassenbreite kleiner ist als $\Delta = 12 \text{ \AA}$. Hier überlagern sich die diffus streuenden Bereiche um die Stufen vollständig. Dieser Fall stellt den Übergangsbereich zur Streuung an einzelnen Defekten bzw. an kleinen Defektclustern dar. Bei dieser Terrassengröße ist die gespiegelte Peakhöhe nur noch durch diffuse Streuung bestimmt; Interferenzeffekte treten nicht mehr auf, so daß die Peakhöhen unter In- und Anti-Phase Bedingungen identisch sind. Die He-Streuung ist also in diesem Bereich unempfindlich für die Tiefeninformation der Anti-Phase Streuung.

2.4 Der Einfluß instrumenteller Effekte auf die Beobachtung von Beugungspeaks

Das Auflösungsvermögen des Instrumentes spielt bei der Beobachtung von Beugungsintensitäten eine entscheidende Rolle. Um die experimentell beobachteten Streudaten korrekt interpretieren zu können, muß der Einfluß des Instrumentes auf die gestreute He-Intensität bekannt sein. Dieser Einfluß kann durch die Einführung einer Instrumentenfunktion $T(\vec{k})$ beschrieben werden, wobei $\vec{k} = \vec{K}_i - \vec{K}_r$ den Streuvektor bezeichnet. Die Instrumentenfunktion entspricht dem Beugungsbild, welches nach der Beugung von Teilchen an einer idealen, d.h. unendlich großen und perfekt periodischen Oberfläche beobachtet wird /101./. Das nach der Streuung von Teilchen an einer realen Oberfläche experimentell beobachtete Intensitätsprofil $I(\vec{k})_{\text{Gem}}$ wird dann formal durch eine Faltung der Instrumentenfunktion $T(\vec{k})$ mit der bei einem idealen Instrument beobachteten Intensitätsverteilung $I(\vec{k})$ gegeben /101./:

$$I(\vec{k})_{\text{Gem}} = I(\vec{k}) * T(\vec{k}) \quad [2.14]$$

Ziel dieses Abschnittes ist die Bestimmung der durch das Instrument hervorgerufenen Peakverbreiterung. Darüber hinaus soll diskutiert werden, wie die Beugung von

He-Atomen an einer dreidimensional strukturierten Oberfläche durch die Winkel- und Energieunsicherheiten des Instrumentes beeinflusst wird.

2.4.1 Die Transferbreite

Zunächst sei die Frage untersucht, wie sich instrumentelle Effekte auf die Beobachtbarkeit *lateral* Strukturen auf der Oberfläche auswirken. Dazu wird eine perfekt periodische und unendlich große Oberfläche betrachtet, da für diesen Fall das beobachtete Intensitätsprofil $I(\vec{k})_{\text{gem}}$ ausschließlich durch die Instrumentenfunktion $T(\vec{k})$ bestimmt wird. Wäre das Instrument ebenfalls ideal, so würde das experimentell beobachtete Intensitätsprofil $I(\vec{k})_{\text{gem}}$ Deltapeaks in den Richtungen entsprechen, für die die Bragg-Bedingung erfüllt ist. Bei einem realen Instrument erhält man jedoch Peakverbreiterungen, die im wesentlichen aus zwei Quellen stammen:

1. Der einfallende, aus einer als punktförmig angenommenen Quelle stammende Strahl weist einen endlichen Öffnungswinkel $\delta_i = d_B/\ell_{DB}$ und eine Geschwindigkeitsverteilung mit der Halbwertsbreite $\Delta v/\bar{v}_{\text{He}}$ auf. Dadurch entsteht bei einer perfekt periodischen Oberfläche eine Peakverbreiterung δ_r relativ zu einer virtuellen Teilchenquelle S im Abstand ℓ_s' von der Probenoberfläche (siehe Abb. 8)

$$\ell_s' = \ell_p \cdot \frac{\cos \vartheta_f}{\cos \vartheta_i} \frac{\delta_i}{\delta_f}, \quad [2.15]$$

wodurch ein virtueller Drehpunkt des Detektors festgelegt wird. Die Peakverbreiterung δ_r relativ zu S wird durch die Beziehung

$$\delta_r^2 = \left(\frac{\cos \vartheta_i}{\cos \vartheta_f} \delta_i \right)^2 + \left(\frac{\sin \vartheta_i - \sin \vartheta_f}{\cos \vartheta_f} \frac{\Delta v}{\bar{v}_{\text{He}}} \right)^2 \quad [2.16]$$

gegeben, wenn vorausgesetzt wird, daß die einzelnen Verbreiterungen unabhängig sind.

2. Der endliche Akzeptanzwinkel $\delta_D = d_D/\ell_D$ des Detektors führt zu einer Unsicherheit bei der Bestimmung des Ausfallswinkels ϑ_f der gestreuten Teilchen und somit zu einer zusätzlichen Peakverbreiterung.

Nimmt man an, daß beide Beiträge unabhängig sind, so können sie gaussisch addiert werden, und die gemessene Peakverbreiterung $\Delta \vartheta_r$ ergibt sich nach einer Transformation von δ_r auf den realen Drehpunkt des Detektors in der Probenmitte zu:

$$\Delta\vartheta_f^2 = \delta_f'^2 + \delta_D^2 = \delta_f^2 \cdot \left(1 + \frac{\ell_{S'}}{\ell_D}\right)^2 + \delta_D^2 \quad [2.17]$$

Die Peakverbreiterung $\Delta\vartheta_f$ entspricht der Halbwertsbreite des Beugungspeaks, die aus der Beobachtung einer idealen Oberfläche mit einem realen Instrument resultiert. Durch Einsetzen von Gl. 2.15 und Gl. 2.16 in Gl. 2.17 erhält man schließlich:

$$\Delta\vartheta_f = \sqrt{\delta_D^2 + \left[\sqrt{\frac{(\sin \vartheta_f - \sin \vartheta_i)^2}{\cos^2 \vartheta_f} \cdot \left(\frac{\Delta v}{\bar{v}_{He}}\right)^2 + \frac{\cos^2 \vartheta_i}{\cos^2 \vartheta_f} \delta_i^2} + \frac{\cos \vartheta_f}{\cos \vartheta_i} \frac{\ell_P}{\ell_D} \delta_i \right]^2} \quad [2.18]$$

Die in Gl. 2.14 angegebene Beziehung läßt aber auch eine Umkehr der Voraussetzungen zu. Die gleiche Peakbreite $\Delta\vartheta_f$ würde sich ebenfalls ergeben, wenn man mit einem idealen Instrument eine Oberfläche der Breite w_L betrachtet [102.]:

$$\Delta\vartheta_f = \frac{\bar{\lambda}_{He}}{w_L \cos \vartheta_f} \quad [2.19]$$

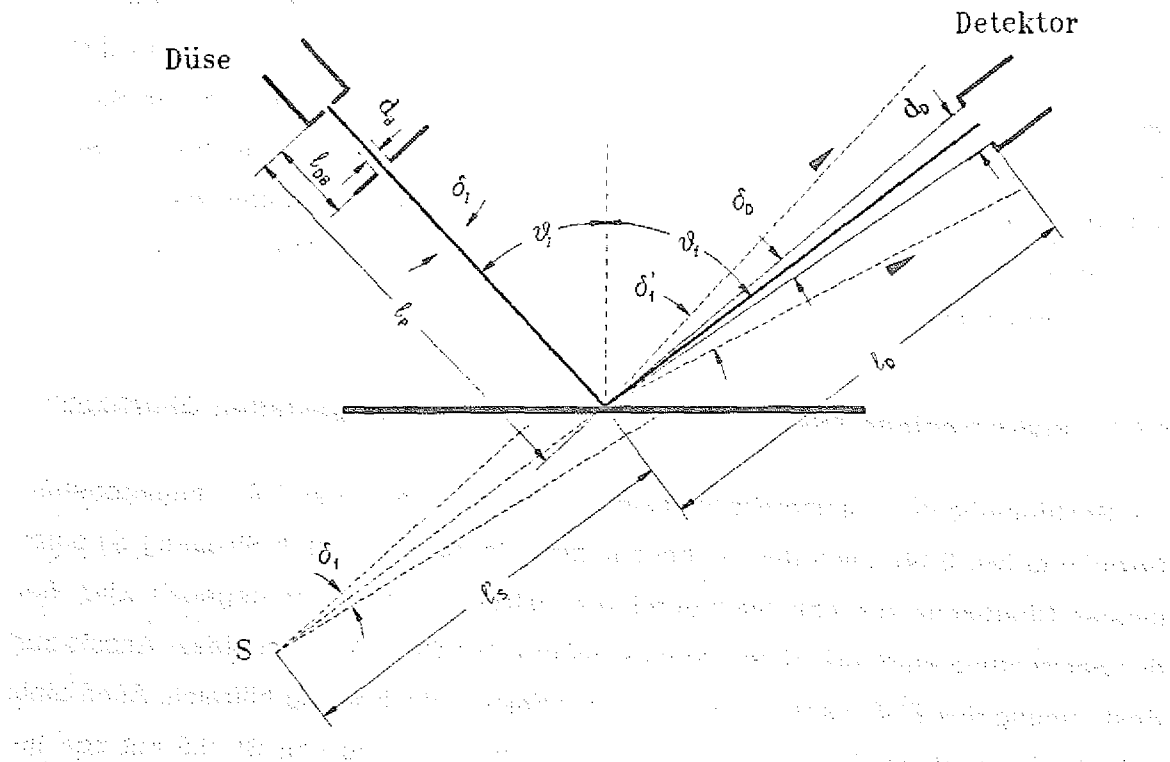


Abb. 8. Geometrie zur Berechnung der Transferbreite

Die Größe w_L ist als Transferbreite des Instruments definiert. Sie entspricht einer linearen Skala auf der Oberfläche, innerhalb der Informationen über die Oberflächenmorphologie gewonnen werden können, ohne eine Entfaltung des Intensitätsprofils und der Instrumentenfunktion durchführen zu müssen. Wichtig für die weitere Anwendung ist, daß im Fall der Spiegelstreuung nur die Winkelunschärfen des einfallenden Strahles und des Detektors, nicht jedoch die Halbwertsbreite $\Delta v/\bar{v}_{He}$ der Geschwindigkeitsverteilung des He-Strahles zur Transferbreite beitragen:

$$w_L = \frac{\bar{\lambda}_{He}}{\cos \vartheta_f} \cdot \left[\delta_D^2 + \delta_i^2 \cdot \left(1 + \frac{\ell_P}{\ell_D} \right)^2 \right]^{-\frac{1}{2}} \quad [2.20]$$

Bei typischen Streubedingungen von $\vartheta_i \approx 72^\circ$ und $\bar{\lambda}_{He} = 0.56 \text{ \AA}$ ergibt sich mit den Apparaturdaten (siehe Abschnitt „Die Molekularstrahlapparatur“ auf Seite 31) eine Transferbreite von $w_L \approx 420 \text{ \AA}$.

Das vorgestellte Konzept der Transferbreite bezieht sich auf die Beobachtbarkeit von Strukturen auf der Oberfläche, die **ausschließlich lateral** angeordnet sind. Ein wichtiges Ergebnis hierbei ist die Unabhängigkeit der Peakverbreiterung von der Geschwindigkeitsunschärfe des einfallenden Strahles unter Spiegelbedingungen. Betrachtet man jedoch die Streuung an einer Oberfläche, die dreidimensional strukturiert ist, auf der also sichtbare Terrassen in unterschiedlichen Niveaus vorhanden sind, so zeigt sich, daß eine derartige Oberfläche nicht auf die eben diskutierte Weise beschrieben wird. Die endliche Geschwindigkeitsbreite des He-Strahls sollte bei der Streuung an Terrassen in unterschiedlichen Niveaus auch unter Spiegelbedingungen zu Weglängenunterschieden führen, die die Auflösbarkeit dreidimensional strukturierter Oberflächen beeinflußt. Im folgenden Abschnitt werden wir diesen Gesichtspunkt näher betrachten.

2.4.2 Instrumentelle Effekte bei der Beugung an einer gestuften Oberfläche

Die Bestimmung der Transferbreite basiert auf der von Park et al. /101./ angegebenen Beziehung (Gl. 2.14), nach der die beobachtete He-Intensität nach Streuung an einer idealen Oberfläche ausschließlich durch die Instrumentenfunktion gegeben wird. Bei der Betrachtung einer dreidimensional strukturierten Oberfläche ist dieser Ansatz zur Bestimmung des Einflusses instrumenteller Effekte jedoch wenig hilfreich. Auch eine formale Betrachtung der gestreuten Intensität nach Faltung von Gl. 2.8 mit den instrumentellen Verbreiterungen ist recht unanschaulich, da das Ergebnis durch die

(unbekannte) Wahrscheinlichkeitsfunktion $P(\alpha_i)$ bestimmt wird. Wesentlich anschaulicher hingegen ist die Berücksichtigung des Einflusses instrumenteller Effekte auf die Höhe des Deltapeaks, da dieser direkt die Verteilung aufgedeckter Terrassen in unterschiedlichen Niveaus wiedergibt. Obwohl die Höhe des gespiegelten Peaks auf diese Weise nur unter Einschränkungen beschrieben wird, erscheint dieser Ansatz besser an die tatsächlich experimentell beobachteten Größen angepaßt.

Wie bereits erwähnt wurde, ist ein reales Instrument einerseits durch die endliche Monochromasie des He-Strahles und andererseits durch die endliche Winkelbreite bei der Erzeugung und dem Nachweis der Teilchen charakterisiert. Dies kann zu Phasenfehlern der Streubeiträge bei der Interferenz am Ort des Detektors führen. Untersuchen wir zunächst, welchen Einfluß das reale Instrument auf die beobachtete Höhe des Deltapeaks ausübt. Dazu sei vorausgesetzt, daß die beiden Fehlerbeiträge unabhängig sind und flächennormierten Gaußverteilungen um die mittlere Geschwindigkeit $\bar{v}_{\text{He}}$ der He-Atome bzw. den Spiegelwinkel ϑ_i entsprechen:

$$F(v, \vartheta) = \frac{1}{2\pi \sqrt{(\Delta v)^2 \cdot (\Delta \vartheta_i)^2}} \cdot \exp \left[-\frac{(v - \bar{v}_{\text{He}})^2}{2 (\Delta v)^2} - \frac{(\vartheta - \vartheta_i)^2}{2 (\Delta \vartheta_i)^2} \right] \quad [2.21]$$

$(\Delta \vartheta_i)^2$ und $(\Delta v)^2$ bezeichnen die Varianzen, d.h. die mittleren quadratischen Breiten der Geschwindigkeits- bzw. Winkelverteilungen des Instrumentes.

Der durch diese Unsicherheiten verursachte Phasenfehler $\Delta \phi_{\ell m}(v, \vartheta)$ der Streubeiträge von Terrassen mit der Höhendifferenz $(\ell - m) \cdot h$ läßt sich in guter Näherung durch

$$\Delta \phi_{\ell m}(v, \vartheta) = \phi_{\ell m}^0(\bar{v}_{\text{He}}, \vartheta_i) \cdot \left[\frac{v - \bar{v}_{\text{He}}}{\bar{v}_{\text{He}}} - (\vartheta - \vartheta_i) \tan \vartheta_i \right] \quad [2.22]$$

ausdrücken, so daß die Höhe des Deltapeaks bei der Beobachtung mit einem realen Instrument durch eine Integration von Gl. 2.10 mit der Verbreiterungsfunktion $F(v, \vartheta)$ (Gl. 2.21) berechnet werden kann:

$$\left(\frac{I}{I_0} \right)_D = \iint_{\mathbb{R}} F(v, \vartheta) \cdot \sum_{\ell, m=0}^N \frac{A_\ell A_m}{A_0^2} \exp \left[i \left(\phi_{\ell m}^0(\bar{v}_{\text{He}}, \vartheta_i) + \Delta \phi_{\ell m}(v, \vartheta) \right) \right] dv d\vartheta \quad [2.23]$$

Als Ergebnis der Integration erhält man das folgende Ergebnis:

$$\left(\frac{I}{I_0}\right)_D = \sum_{\ell, m=0}^N \frac{A_\ell A_m}{A_0^2} \cdot \exp \left[i\phi_{\ell m}^0(\bar{v}_{\text{He}}, \vartheta_i) - \frac{(\overline{\Delta\phi_{\ell m}})^2}{2} \right], \quad [2.24]$$

wobei $(\overline{\Delta\phi_{\ell m}})^2$ den durch die Geschwindigkeits- und Winkelverbreiterungen verursachten mittleren quadratischen Phasenfehler der Streubeiträge von sichtbaren Terrassen mit der Höhendifferenz $(\ell - m) \cdot h$ in der gespiegelten Richtung bezeichnet (siehe auch Gl. 2.11):

$$(\overline{\Delta\phi_{\ell m}})^2 = [2(\ell - m)hk_\perp]^2 \cdot \left[\frac{(\overline{\Delta v})^2}{\bar{v}_{\text{He}}^2} + (\overline{\Delta\vartheta_i})^2 \tan^2 \vartheta_i \right]. \quad [2.25]$$

Die Phasenunsicherheit des Instrumentes wirkt also ausschließlich auf die Interferenzterme ($\ell \neq m$) ein und hängt quadratisch sowohl von der Höhendifferenz der Terrassen als auch vom Phasenindex n , d.h. von der Streugeometrie ab (siehe Abschnitt „Die Beugung von He-Atomen an gestuften Oberflächen“ auf Seite 12). Mit einem gegebenen Instrument kann daher nur eine bestimmte Zahl unterschiedlicher Niveaus aufgelöst werden. Diese Zahl von Niveaus, also die maximale Höhendifferenz sichtbarer Terrassen, bei der noch eine definierte Phasenbeziehung zwischen deren Streubeiträgen besteht, kann nach /102.,103./ durch die folgende Bedingung angegeben werden:

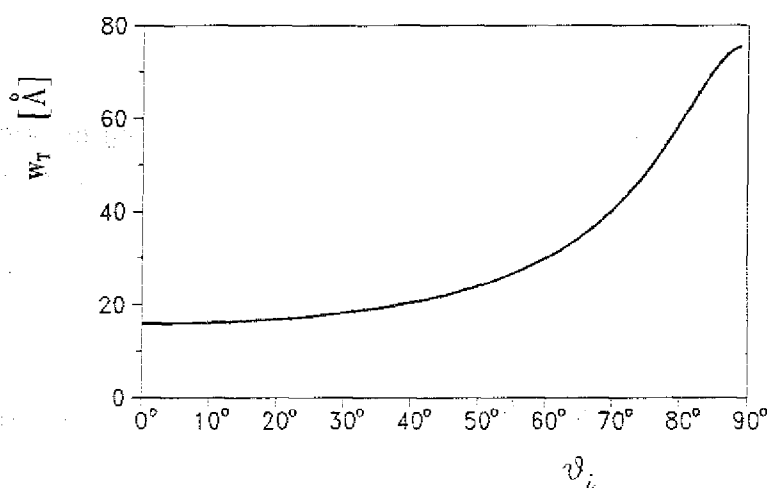


Abb. 9. Die Tiefenauflösung w_T des hier verwendeten Instrumentes als Funktion des Spiegelwinkels ϑ_i

$$(\overline{\Delta\phi_{\ell m}})^2 \simeq \pi^2 \quad [2.26]$$

Demnach sind die Phasenbeziehungen vollkommen verschmiert, wenn der mittlere quadratische Fehler $(\overline{\Delta\phi_{\ell m}})^2$ der Phasendifferenz $\phi_{\ell m}$ zwischen zwei sichtbaren Terrassen im Niveau ℓ und m ungefähr gleich π^2 ist. Setzt man diese Bedingung in Gl. 2.25 ein, so läßt sich eine „Tiefenauflösung“ w_T des Instrumentes definieren:

$$w_T = (\ell - m) \cdot h = \sqrt{\frac{\ln 2}{2}} \frac{\bar{\lambda}_{\text{He}}}{\cos \vartheta_i} \cdot \left[\left(\frac{\Delta v}{v_{\text{He}}} \right)^2 + (\Delta \vartheta_i \tan \vartheta_i)^2 \right]^{-\frac{1}{2}} \quad [2.26]$$

Δv und $\Delta \vartheta_i$ bezeichnen hierbei die dem Experiment zugänglichen Halbwertsbreiten der Geschwindigkeits- und Winkelverteilung des Instrumentes, deren Quadrate proportional zu den entsprechenden Varianzen $(\overline{\Delta v})^2$ bzw. $(\overline{\Delta \vartheta_i})^2$ sind. In Abb. 9 ist die Tiefenauflösung des hier verwendeten Instrumentes als Funktion des Spiegelwinkels ϑ_i angegeben. Für die mittlere Wellenlänge der He-Atome wurde $\bar{\lambda}_{\text{He}} = 0.56 \text{ \AA}$, für die Halbwertsbreiten der Geschwindigkeits- und Winkelverteilung des Instrumentes $\Delta v/v_{\text{He}} = 0.02$ bzw. $\Delta \vartheta_i = 0.25^\circ$ (siehe Kapitel „Aufbau und Charakterisierung des Oberflächenexperimentes“ auf Seite 31) eingesetzt.

Dieses Ergebnis zeigt, daß der Einfluß der Geschwindigkeits- und Winkelverbreiterung auf die beobachtete Höhe des Deltapeaks bei dem hier verwendeten Instrument und den gewählten experimentellen Bedingungen praktisch vernachlässigt werden kann. Um dies zu verdeutlichen, sei ein Fall betrachtet, bei dem aufgedeckte Terrassen in lediglich zwei unterschiedlichen Niveaus vorhanden sind; die Flächenanteile beider Terrassen werden als gleich groß angenommen: $A_0 = A_1 = 0.5$. Wie später im Kapitel „Das Wachstum dünner Schichten“ auf Seite 59 näher diskutiert wird, entspricht diese Situation der, die bei einem idealen Schicht-für-Schicht Wachstum nach der Deposition einer halben Monoschicht vorliegen würde. Für die im letzten Absatz angegebenen charakteristischen Verbreiterungen des experimentellen Aufbaus ergibt sich für In-Phase Bedingungen ($n=3$; $\vartheta_i = 68.4^\circ$) unter Vernachlässigung der diffusen Streuung an den Stufenkanten eine Peakhöhe von $(I/I_0)_D = 0.99$. Für die Höhe des Deltapeaks unter Anti-Phase Bedingungen ($n=2.5$; $\vartheta_i = 72.2^\circ$) errechnet sich unter Vernachlässigung diffuser Streuung ein Wert von $(I/I_0)_D = 0.002$. Die Geschwindigkeits- und Winkelunsicherheiten des hier verwendeten Instrument führen in diesem Beispiel nur zu sehr kleinen Abweichungen ($\lesssim 1\%$) der beobachteten Peakhöhe von der, die mit einem idealen Instrument erwartet würde, so daß der Einfluß des Instrumentes auf die beobachtete Höhe des Deltapeaks in guter Näherung ver-

nachlässigt werden kann. Da die gesamte Höhendifferenz der sichtbaren Terrassen in unterschiedlichen Niveaus in dem hier betrachteten Bedeckungsbereich ($\theta \lesssim 10$ ML) weder vor noch während der Deposition wesentlich größer als $(\ell-m) \cdot h \approx 10 \text{ \AA}$ wird (siehe Kapitel „Die Struktur der Pt(111)-Fläche während ihres Wachstums“ auf Seite 79), gilt dies auch für die Beobachtung der Höhe des Deltapeaks bei einer beliebigen, hier auftretenden Oberflächenstruktur.

Fassen wir die Ergebnisse dieses Abschnittes noch einmal zusammen. Das Auflösungsvermögen des Instrumentes läßt sich durch zwei Größen charakterisieren: die Transferbreite w_t gibt ein Maß für die Beobachtbarkeit lateraler Strukturen auf der Oberfläche, während die „Tiefenauflösung“ w_r ein Maß für die Beobachtbarkeit von dreidimensionalen Strukturen liefert. Die Voraussetzung hierfür ist, daß die Höhenverteilung sichtbarer Terrassen keinen Einfluß auf den inkohärenten Peak hat, was jedoch für die hier geltenden Bedingungen in guter Näherung erfüllt ist. Da die Höhendifferenz aufgedeckter Terrassen in unterschiedlichen Niveaus üblicherweise kleiner als $10 \text{ \AA}$ ist, kann die durch die Existenz dreidimensionaler Strukturen verursachte Peakverbreiterung vernachlässigt werden. Die Informationen über die laterale Verteilung sichtbarer Terrassen bzw. deren Höhenverteilung können daher dem inkohärenten Peak (Transferbreite) bzw. dem Deltapeak (Tiefenauflösung) zugeordnet und der Einfluß des Instrumentes auf die entsprechenden Verteilungen getrennt betrachtet werden.

3.0 Aufbau und Charakterisierung des Oberflächenexperimentes

Im vorherigen Kapitel wurde speziell die Untersuchung der Struktur von Oberflächen mittels He-Streuung diskutiert. Im folgenden Kapitel sollen die Anforderungen an ein Oberflächenexperiment im Vordergrund stehen, die zum Erhalt aussagekräftiger Ergebnisse erfüllt werden müssen. Die Resultate des letzten Abschnitts machten deutlich, daß das Instrument erheblichen Einfluß auf Beugungsintensitäten, d.h. auf die Beobachtbarkeit von Strukturen auf der Oberfläche ausüben kann. Doch selbst die mit einem perfekten Instrument erhaltenen Ergebnisse können nur dann schlüssig interpretiert werden, wenn die untersuchte Oberfläche auf definierte Art und Weise präpariert wurde. Insbesondere die hier untersuchten Wachstumsprozesse werden maßgeblich von der Struktur /z.B. 104./ und der chemischen Zusammensetzung der Oberfläche beeinflusst /105.-108./. Das erfordert große Sorgfalt bei der Präparation und Charakterisierung der untersuchten Flächen sowie bei der Herstellung epitaktischer Schichten. Dabei ergibt sich folgendes Problem: im Gegensatz zu dreidimensionalen Festkörpern, bei denen nahezu beliebig viele periodisch angeordneter Atome vorhanden sind, besteht eine zweidimensionale Oberfläche nur aus etwa 10^{15} Atomen/cm² entsprechend 10^{-9} Mol/cm². Die Eigenschaften der Oberfläche reagieren daher sehr empfindlich auf Verunreinigungen, die zum einen durch Segregation aus dem Festkörper und zum anderen durch Adsorption von Fremdatomen aus der Gasphase entstehen können. Aus diesen Gründen ist es notwendig, die Experimente unter Ultrahochvakuum- („UHV-“) Bedingungen bei sehr niedrigen Basisdrücken ($<10^{-10}$ mbar) durchzuführen. Darüber hinaus sollte die Oberfläche im UHV gereinigt und deren Struktur und chemische Zusammensetzung in-situ überprüft werden können.

In diesem Kapitel soll der Aufbau und die experimentellen Bedingungen charakterisiert werden. Dazu wird zunächst der experimentelle Aufbau beschrieben. Die darauf folgenden Abschnitte beschäftigen sich mit dessen Charakterisierung. Neben der Präparation und Definition der Struktur und chemischen Zusammensetzung von Oberflächen wird die Bestimmung der Eigenschaften des He-Strahles diskutiert. Die Erzeugung epitaktischer Schichten bildet den Schwerpunkt der letzten Abschnitte dieses Kapitels. Dort wird untersucht, durch welche Größen die Homogenität des Flusses der auf die Oberfläche treffenden Pt-Atome bestimmt wird. Abschließend wird der Aufbau der verwendeten Verdampferquelle sowie deren Reinigung beschrieben.

3.1 Die Molekularstrahlapparatur

Die Experimente wurden in einer Molekularstrahlapparatur durchgeführt, die aus drei differentiell gepumpten Edelstahlkammern besteht (siehe Abb. 10 auf Seite 33). Die Erzeugung und Ausblendung des He-Strahles erfolgt zweistufig in der Düsen- und Chopperkammer. Die Hauptkammer enthält die untersuchte Probe und, neben den für die üblichen Oberflächenpräparations- und -charakterisierungsmethoden notwendigen Geräten, einen in drei Raumrichtungen beweglichen Detektor sowie eine Verdampferquelle zur Erzeugung epitaktischer Schichten. Eine Aufsicht auf die Strahlebene ist in Abb. 11 auf Seite 34 dargestellt. Dieser experimentelle Aufbau entspricht weitgehend dem, der schon in /109./ beschrieben wurde. Da jedoch zu Beginn der Arbeit entscheidende konstruktive Modifikationen und Erweiterungen vorgenommen wurden, soll im folgenden etwas detaillierter auf den Aufbau der Apparatur eingegangen werden.

Die Erzeugung des He-Strahles findet in der Düsenkammer statt, die durch eine Turbomolekularpumpe mit einer effektiven Saugleistung von $S_{\text{eff}} = 1500 \text{ l/s}$ auf einen Basisdruck $\lesssim 1 \cdot 10^{-7} \text{ mbar}$ evakuiert wird. Hochreines (Verunreinigungsanteil $\lesssim 10^{-6}$) und auf einen Druck von $p_0 = 150 \text{ bar}$ komprimiertes Helium expandiert durch eine $10 \mu\text{m}$ durchmessende Öffnung in das Vakuum. Die dadurch erreichte totale Flußrate von ca. $1.2 \text{ mbar} \cdot \text{l/s}$ führt zu einem resultierenden Düsenkammerdruck von $8 \cdot 10^{-4} \text{ mbar}$. Das Helium wird vor der Expansion durch zwei flüssig-Stickstoff gekühlte $5\mu\text{-Sinterfilter}$ geleitet, um Verstopfungen der Düse und Kontaminationen des Strahles zu vermeiden. Die Energie des He-Strahles kann durch eine Änderung der Düsentemperatur im Intervall von 16 meV bis 200 meV variiert werden. Die in dieser Arbeit diskutierten Experimente wurden allerdings mit einem He-Strahl der Energie $\bar{E}_{\text{He}} = 66.8 \text{ meV}$ ($T_D = 293 \text{ K}$) durchgeführt. Zur Vermeidung von Justierproblemen der Düse war es notwendig, deren Position in-situ variieren zu können. Eine spezielle Halterung erlaubt daher die Verschiebung der Düse in alle Raumrichtungen sowie eine Rotation in der Strahlebene.

Der Kernbereich des Strahles wird durch einen Skimmer mit einem Durchmesser von 0.2 mm abgeschält und tritt in die Chopperkammer ein. Diese wird durch eine magnetisch gelagerte Turbomolekularpumpe ($S_{\text{eff}} = 320 \text{ l/s}$) auf einen Basisdruck von $\lesssim 1 \cdot 10^{-7} \text{ mbar}$ evakuiert. Hier wird der Strahl durch eine rotierende Schlitzblende (Chopper) mit einer Frequenz von 330 Hz moduliert, um eine Signal-Untergrund

Diskrimination des Streusignals zu ermöglichen. Zusätzlich kann er durch eine Fahne permanent unterbrochen werden.

Durch eine von außen positionierbare Blende erreichen die He-Teilchen die Hauptkammer. Der durch den Blendendurchmesser von $d_b = 0.2 \text{ mm}$ bestimmte Öffnungswinkel δ des Strahles beträgt 0.15° und bedeckt bei senkrechtem Einfall auf die Probe eine Fläche von ca. 0.11 mm^2 . Die Auftrefferate der He-Atome beträgt bei senkrechtem Einfall etwa $2.2 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$, entsprechend einem äquivalenten Druck von etwa 10^{-4} mbar . Die Hauptkammer wird durch eine magnetisch gelagerte Turbomolekularpumpe ($S_{\text{eff}} = 300 \text{ l/s}$) und durch eine Titanpumpe mit flüssig-Stickstoff gekühlter Sublimationswand ($S_{\text{eff}} = 40000 \text{ l/s}$ für H_2) auf einen Basisdruck $\lesssim 5 \cdot 10^{-11} \text{ mbar}$ evakuiert. Bei Betrieb des He-Strahls steigt der Druck auf etwa $3 \cdot 10^{-8} \text{ mbar}$ an. Durch Analyse von Restgasspektren wurde sichergestellt, daß dieser Druckanstieg ausschließlich auf die Erhöhung des He-Partialdruckes zurückzuführen ist.

Die an der Probe gestreuten Teilchen werden durch einen Quadrupol-Massenfilter nachgewiesen. Der Detektor ist auf einem Goniometer montiert, welches relativ zur

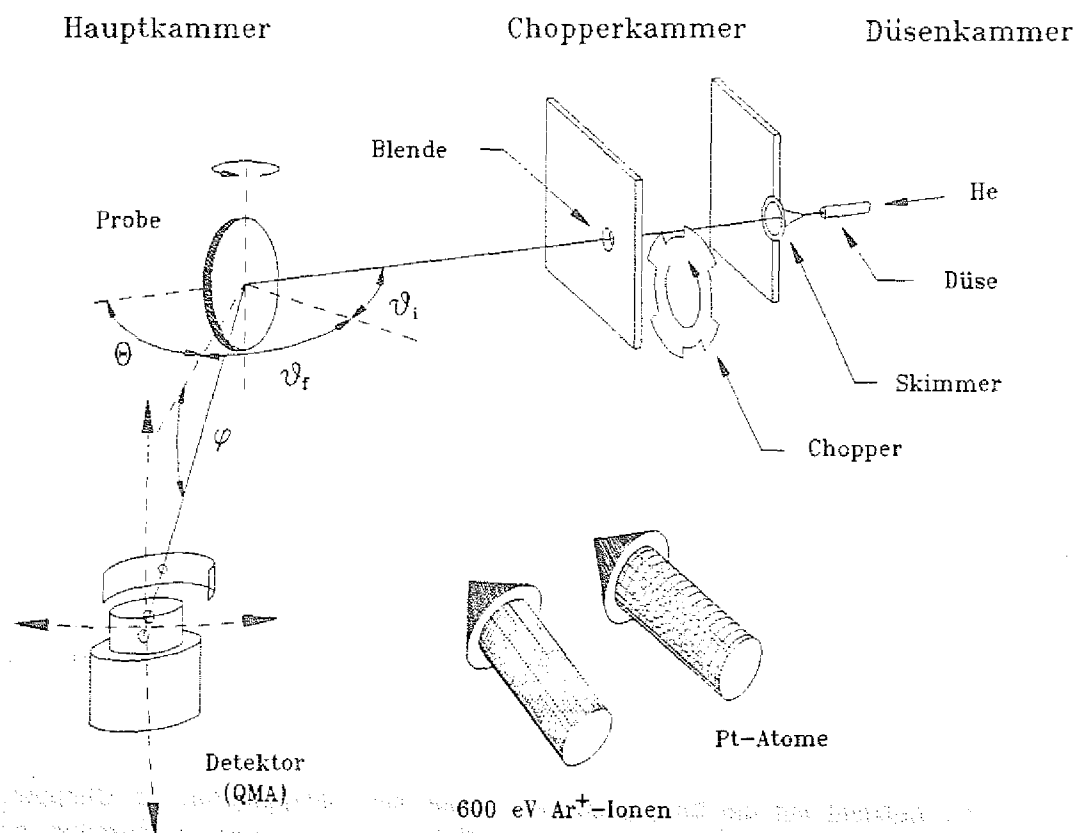


Abb. 10. Schematische Darstellung der Molekularstrahlapparatur

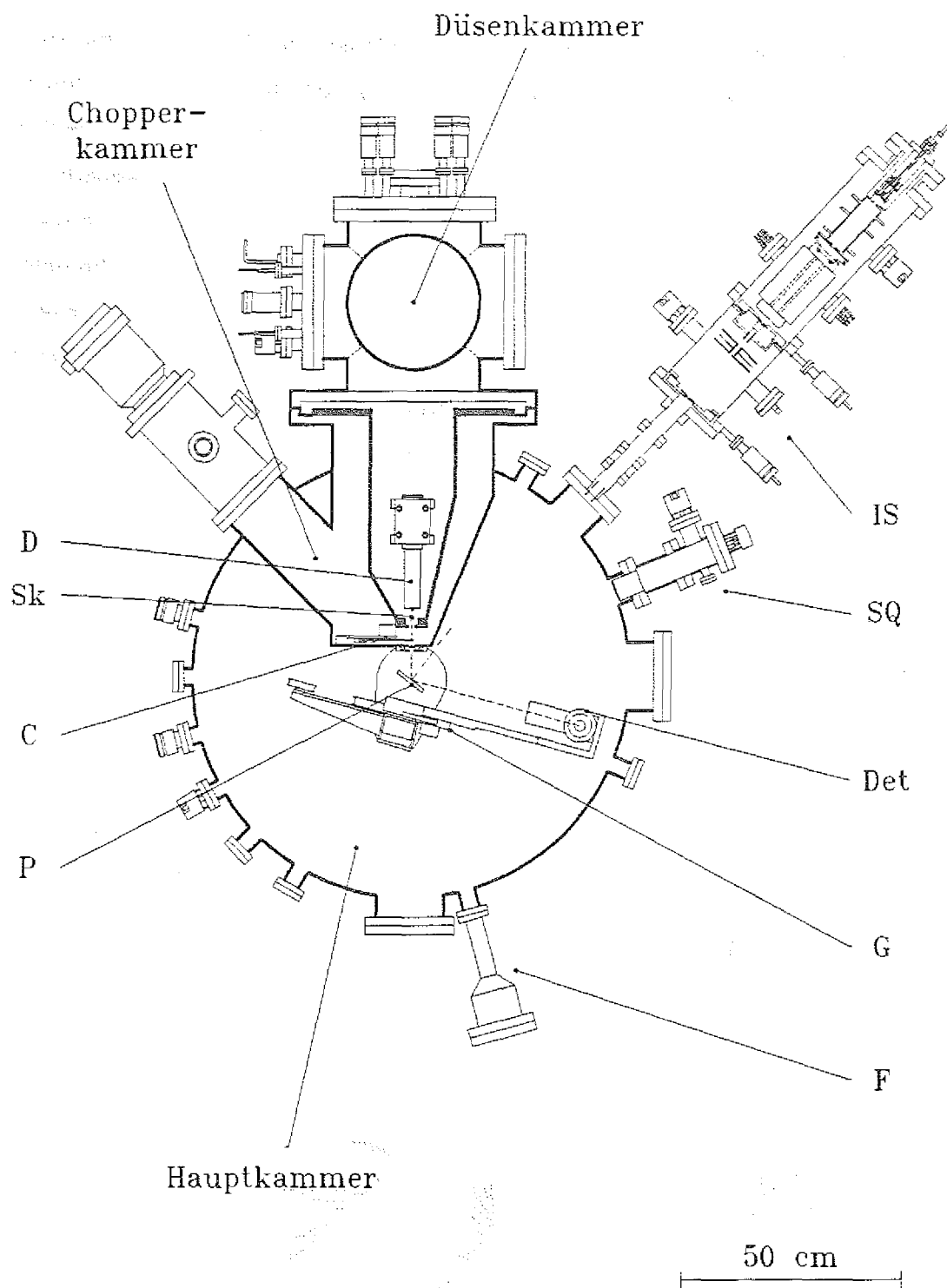


Abb. 11. Aufsicht auf die Strahlebene der Molekularstrahlapparatur: C: Chopper, D: Düse, Det: Detektor, G: Goniometer, F: Flugrohr zur Flugzeitspektrometrie von Ionen, IS: Ionenstrahlsystem, P: Probe, SK: Abschäler (Skimmer), SQ: Ionenquelle zum Reinigen der Probe.

Richtung des einfallenden He-Strahles eine Bewegung im Bereich von $-5^\circ \leq \Theta \leq 147^\circ$ in der Streuebene bzw. $-5^\circ \leq \varphi \leq 45^\circ$ senkrecht dazu erlaubt (siehe Abb. 10). Die Detektorposition kann manuell oder mittels Schrittmotoren auch computergesteuert variiert werden. Während eine manuelle Positionierung des Detektors mit einer Genauigkeit von $\lesssim 0.05^\circ$ möglich war, erlaubt die Verwendung der Schrittmotoren eine Genauigkeit von $\lesssim 0.02^\circ$. Dadurch wird die Aufnahme von Peakprofilen mit großer Winkelauflösung und Meßzeiten von ca. 2s pro Datenpunkt ermöglicht. Der Detektor ist auf einer Schiene montiert, die eine in-situ Änderung des radialen Abstandes zur Probe im Bereich von 100 mm bis 400 mm erlaubt. Dies entspricht einer Variation des Akzeptanzwinkels δ_D des Detektors zwischen $0.6^\circ \leq \delta_D \leq 0.14^\circ$. Bei den hier diskutierten Experimenten wurde der minimale Akzeptanzwinkel des Detektors von $\delta_D = 0.14^\circ$ gewählt.

Im Mittelpunkt des Goniometers befindet sich die Probe. Sie ist auf einem Manipulator befestigt, der eine Verschiebung in alle Raumrichtungen sowie eine Rotation um die Achse senkrecht zur Streuebene ermöglicht. Die Probe läßt sich durch Elektronenstoß heizen und durch einen Kühltank, der mit flüssigem Stickstoff gefüllt werden kann, auf eine Temperatur bis hinunter zu $T_s \approx 80$ K abkühlen. Die Kühlzeit beträgt typischerweise 15 bis 20 Minuten nach kurzzeitigem Heizen auf $T_s \approx 1000$ K. Die Temperatur wird mit einem NiCr-Ni Thermoelement bestimmt, welches durch Punktschweißen direkt mit der Probe verbunden ist. Die resultierende Thermospannung wird über einen Linearisierer einer PID-Einheit zugeführt, mittels der die Proben-temperatur auf den gewünschten Wert, über Stunden konstant und mit einer Genauigkeit von ± 1 K, einregelt.

Zur Reinigung und gezielten Erzeugung von Defekten der Probenoberfläche stehen einerseits eine kommerzielle Ionenquelle und andererseits ein Ionenstrahlssystem /110./ zur Verfügung. Letzteres erlaubt die Herstellung eines homogenen und massenseparierten Ionenstrahls, dessen Energie im Bereich von 5-5000 eV variiert werden kann. Die Ionenintensität wird integral oder orts aufgelöst durch einen unterhalb der Probe angebrachten Faraday-Käfig bestimmt. Zur Untersuchung der Reinheit und Beschaffenheit der Probenoberfläche sind oberhalb der Streuebene eine 4-Gitter LEED Optik und eine 10kV-Auger CMS-Einheit installiert.

Die variable Streugeometrie, die durch die Beweglichkeit des Detektors in der Hauptkammer erreicht wird, hat jedoch den Nachteil, auf ein differentielles Pumpen des Ionisationsbereichs des Detektors verzichten zu müssen. Da Strahl- und Unter-

grundteilchen gleichermaßen nachgewiesen werden (für eine detaillierte Diskussion sei auf /111.,112./ verwiesen), beträgt der dynamische Bereich des Detektors nur 3-4 Größenordnungen, was eine Signal-Untergrund Diskrimination notwendig macht. Dies geschieht, wie bereits erwähnt, durch eine Modulation des He-Strahls mittels einer rotierenden Schlitzblende (Chopper), gefolgt von einer phasenselektiven Verarbeitung des Detektorsignals durch einen Lock-In Verstärker /112./. Als Phasenreferenz dient das Signal einer Photodiode, die zusammen mit einer Glühlampe den Öffnungszustand der Chopperscheibe detektiert.

Alle Meßgrößen während der Durchführung der Experimente werden über einen Analog/Digital-Wandler in einen Rechner überführt und dort verarbeitet.

3.2 Präparation und Charakterisierung der Proben

Die verwendeten Proben wurden aus einem Pt-Einkristall von etwa 9 mm Durchmesser hergestellt. Der Kristall wurde mittels Funkenerosion geschnitten und die Oberfläche, kontrolliert durch Röntgenbeugung, mit einer Genauigkeit von $<0.1^\circ$ in der (111)-Ebene orientiert und mechanisch poliert /113./. Die Reinigung der Pt-Oberfläche erfolgte im Ultrahochvakuum. Dies geschah in mehreren Zyklen, die jeweils aus dem Reinigen in O_2 und dem Zerstäuben der obersten Atomlagen durch Ionenbeschuß bestehen. Dazu wurde die Probe längere Zeit in einer Atmosphäre von $5 \cdot 10^{-6}$ mbar O_2 auf $T_s \approx 800$ K geheizt, um den an die Oberfläche segregierten Kohlenstoff abzu-reagieren. Die übrigen Verunreinigungen (Si, Ca /114.,115./) wurden durch den Beschuß der Fläche mit Ar^+ -Ionen und abschließendem Ausheilen bei $T_s \approx 1800$ K entfernt. Die Reinheit der Oberfläche wurde mittels AES (Auger Electron Spectroscopy) und der Beobachtung der He-Reflektivität der Probe kontrolliert. Die so präparierte Fläche wies im Auger-Spektrum keine Verunreinigungen oberhalb der Nachweisgrenze (≈ 1 %) auf. Wesentlich sensitiver reagiert jedoch die He-Reflektivität auf die Anwesenheit von Verunreinigungen auf der Oberfläche (siehe dazu Kapitel „Die diffuse Streuung an isolierten Defekten“ auf Seite 9). Daher wurde das Erreichen einer maximalen He-Reflektivität (siehe /64./) bei einer bestimmten Streugeometrie einer „reinen“ Situation zugeschrieben. Um reproduzierbare Bedingungen bei allen Experimenten sicherzustellen, wurden die deponierten Pt-Schichten nach jedem Aufdampfexperiment durch Ar^+ -Beschuß bei $T_s \approx 800$ K vollständig zerstäubt. Danach erfolgte eine Ausheilung der Fläche bei $T_s \approx 1300$ K.

Neben der Präparation und Charakterisierung chemisch reiner Oberflächen wurde auch deren Struktur überprüft. Man kann sich leicht vorstellen, daß zur Untersuchung von Diffusionsprozessen während des Wachstums von Schichten mikroskopisch extrem ebene Flächen hergestellt werden müssen, um den Einfluß der vor Beginn eines Experimentes auf der Oberfläche vorhandenen Stufenkanten auf die entstehenden Strukturen vernachlässigen zu können. Die lateralen Dimensionen der während des Wachstums entstehenden Strukturen sind direkt mit der Oberflächentemperatur verknüpft und durch die mittlere Breite der vor Beginn des Experimentes auf der Fläche vorhandenen Terrassen begrenzt (siehe Kapitel „Die ersten Stadien des Wachstums von Schichten“ auf Seite 66). Um das Wachstum in einem breiten Temperaturintervall untersuchen zu können, sollte die mittlere Terrassenbreite der ausgeheilten Fläche möglichst groß, im Idealfall nicht oder nur schwer mit dem verwendeten Instrument auflösbar sein.

Die Charakterisierung der Struktur der ausgeheilten und gereinigten Oberfläche erfolgte durch die Messung von „Rocking-Kurven“ /64.,113./. Hierbei wird die Höhe des gespiegelten Peaks als Funktion des Spiegelwinkels $\vartheta_i (= \vartheta_r)$ beobachtet. Ein typisches Ergebnis für die hier verwendete Oberfläche ist in Abb. 12 auf Seite 38 dargestellt. Die beobachtete Reflektivität weist deutliche Maxima und Minima auf, die auf die Existenz von Stufen auf der Oberfläche hindeuten. Die Positionen der Maxima und Minima entsprechen konstruktiver (In-Phase) bzw. destruktiver Interferenz (Anti-Phase) der Streubeiträge von benachbarten Terrassen, die durch monoatomare Stufen der Höhe h getrennt sind. Der Phasenindex n wird mit Gl. 2.11 durch

$$n = \frac{2h}{\lambda_{\text{He}}} \cdot \cos \vartheta_i \quad [3.1]$$

gegeben. Die entsprechenden Werte für n sind in der Figur angedeutet. Die Abschätzung der mittleren Terrassenbreite der Fläche ist durch zwei Methoden möglich: zum einen durch die Messung der Halbwertsbreite $\Delta\vartheta_i$ des inkohärenten Peaks (siehe Gl. 2.9) und zum anderen durch die Auswertung der Amplitude der in den Rocking-Kurven beobachteten Intensitätsoszillationen. Im folgenden wollen wir nach der zweiten Methode vorgehen und untersuchen, wie sich aus den Peakhöhenoszillationen als Funktion des Spiegelwinkels Informationen über die mittlere Terrassenbreite der Oberfläche erhalten lassen. Wie bereits angedeutet wurde, entstehen die in den Rocking-Kurven beobachteten Maxima durch konstruktive Interferenz der Streubeiträge von benachbarten Terrassen (In-Phase). Die Höhe des gespiegelten Peaks I_0 ist hier nur durch diffuse Streuung an den Stufenkanten beeinflusst: die

Peakbreite $\Delta\vartheta_i$ entspricht der instrumentellen Verbreiterung. Die Minima der Rocking-Kurve sind durch die destruktive Interferenz der Streubeiträge (Anti-Phase) charakterisiert. Unter diesen Bedingungen entsteht eine Verbreiterung des Peaks, die nach Gl. 2.9 mit der mittleren Terrassenbreite $\bar{\Delta}$ der Oberfläche verknüpft ist und zu einer Erniedrigung der Peakhöhe I_0^{Anti} führt. Für nicht senkrechten Einfall der He-Atome auf die Oberfläche ($\vartheta_i \neq 0$) sind die Peakbreiten in der Streuebene und die senkrecht dazu unterschiedlich. Nimmt man an, daß die Gesamtintensität für In- und Anti-Phase Bedingungen konstant ist und Gaußverteilungen entsprechender Breiten entsprechen (inelastische Streuung (Debye-Waller Effekte) /64.,116.,117./ wird zunächst vernachlässigt), so läßt sich eine grobe Abschätzung der mittleren Terrassenbreite $\bar{\Delta}$ angeben:

$$\bar{\Delta} = \frac{\lambda_{\text{He}}}{\Delta\vartheta_i} \left[-\frac{1 + \cos^2\vartheta_i}{2} + \sqrt{\left[\frac{1 + \cos^2\vartheta_i}{2} \right]^2 + \cos^2\vartheta_i \left[\left(\frac{I_0^{\text{In}}}{I_0^{\text{Anti}}} \right)^2 - 1 \right]} \right]^{-\frac{1}{2}} \quad [3.2]$$

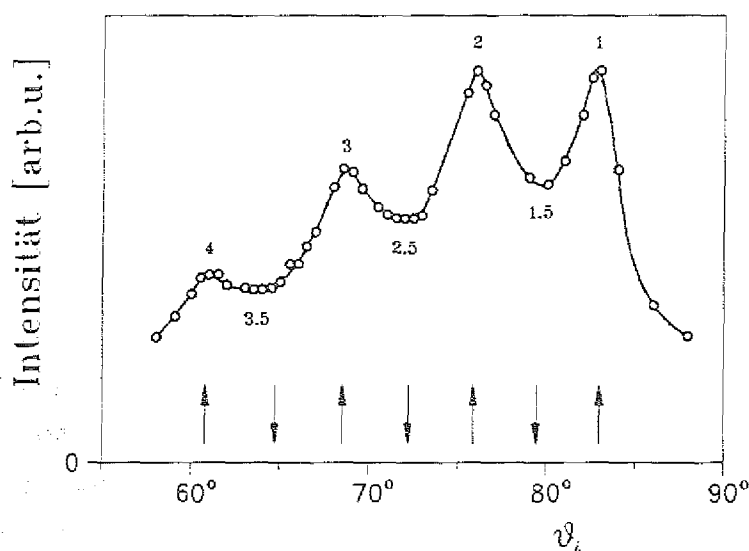


Abb. 12. Rocking-Kurve für die reine Pt(111)-Fläche: Die Figur zeigt die Höhe des gespiegelten He-Peaks als Funktion des Spiegelwinkels ϑ_i ($=\vartheta_r$). Die durch Pfeile gekennzeichneten Maxima und Minima entsprechen konstruktiver (In-Phase) bzw. destruktiver Interferenz (Anti-Phase) der Streubeiträge von benachbarten Terrassen. Das Experiment wurde bei einer Düsentemperatur von $T_D=293$ K und bei einer Oberflächentemperatur von $T_S=450$ K durchgeführt. Der Amplitude der Oszillationen (Gl. 3.2) und der Auswertung der Peakbreiten unter In- bzw. Anti-Phase Bedingungen entnimmt man mit den Apparaturdaten eine mittlere Terrassenbreite um $\bar{\Delta} \approx 800$ Å.

Um den oben vernachlässigten Einfluß der Debye-Waller Effekte auf die beobachteten Peakhöhen zu eliminieren, wurde I_0^n aus einer linearen Interpolation der In-Phase Peakhöhen an der Stelle der Minima ermittelt. Setzt man die aus der Rocking-Kurve (Abb. 12) ermittelten Werte in Gl. 3.2 ein, so ergibt sich mit $\bar{\lambda}_{\text{He}} = 0.56 \text{ \AA}$ eine mittlere Terrassenbreite um $\bar{\Delta} \sim 800 \text{ \AA}$, entsprechend einer Stufenkonzentration von ungefähr 0.6 %. Ein ähnlicher Wert bestimmt sich übrigens auch aus der direkten Messung der Halbwertsbreite des gespiegelten Anti-Phase Peaks.

3.3 Die Wellenlänge der He-Atome

Neben einer möglichst vollständigen Charakterisierung der Struktur und chemischen Zusammensetzung der Oberfläche ist auch die Bestimmung der Eigenschaften des He-Strahls als Sonde für die Struktur der Oberfläche notwendig. Hier sind im wesentlichen zwei Größen von besonderer Bedeutung und sollen in den nächsten beiden Abschnitten untersucht werden. In diesem Abschnitt steht die Bestimmung der mittleren de-Broglie Wellenlänge $\bar{\lambda}_{\text{He}}$ der He-Atome im Vordergrund. Ihre Kenntnis ist wichtig, um die Phasenbeziehungen der Streubeiträge von benachbarten Terrassen, d.h. In- bzw. Anti-Phase Bedingungen, definiert einstellen zu können. In dem darauf folgenden Abschnitt wird die Halbwertsbreite $\Delta v/\bar{v}_{\text{He}}$ der Geschwindigkeitsverteilung des Düsenstrahls untersucht, um das Auflösungsvermögen des Beugungsexperimentes (siehe Abschnitt „Der Einfluß instrumenteller Effekte auf die Beobachtung von Beugungspeaks“ auf Seite 23) zu charakterisieren.

Die mittlere Geschwindigkeit $\bar{v}_{\text{He}}$ der He-Atome in einem Düsenstrahl ist unter der Annahme eines idealen Gases durch

$$\bar{v}_{\text{He}} = \sqrt{\frac{5kT_D}{m_{\text{He}}}} \quad [3.3]$$

bestimmt. T_D bezeichnet die Düsentemperatur, k die Boltzmann-Konstante und m_{He} die Masse der He-Atome. Für einen Raumtemperatur-Strahl ($T_D = 293 \text{ K}$) erwartet man daher eine mittlere Strahlgeschwindigkeit von $\bar{v}_{\text{He}} = 1744.4 \text{ m/s}$, entsprechend einer mittleren de-Broglie Wellenlänge der He-Atome von $\bar{\lambda}_{\text{He}} = 0.572 \text{ \AA}$. Die tatsächlich auftretende Wellenlänge läßt sich mit Hilfe der in Abb. 12 dargestellten Rocking-Kurve überprüfen. Trägt man nämlich den Phasenindex n der beobachteten Maxima und Minima gegen den Kosinus des Spiegelwinkels ϑ_i auf, so würde man nach Gl. 3.1 eine Gerade durch den Ursprung mit der Steigung $2h/\bar{\lambda}_{\text{He}}$ ergeben. Das Ergebnis dieser Auftragung ist in Abb. 13 auf Seite 40 dargestellt. Der Steigung der

Geraden entnimmt man mit $h = 2.27 \text{ \AA}$ eine mittlere Wellenlänge von $\bar{\lambda}_{\text{He}} = 0.554 \text{ \AA}$. Diese sehr einfache Beschreibung der Positionen der Maxima und Minima der Rocking-Kurve zeigt übrigens, daß die He-Streuung an dieser dichtgepackten Metalloberfläche vollständig durch kinematische Effekte bestimmt wird. Im Gegensatz dazu beobachtet man bei der Streuung von Elektronen (RHEED) üblicherweise ein erheblich komplexeres Verhalten der Intensitätssoszillationen als Funktion des Spiegelwinkels, welches auf dynamische Effekte der Elektronenstreuung (Resonanzen, Vielfachstreuung, Blocking-Effekte) zurückzuführen ist [21.-24./].

Der hier gefundene Wert für die Wellenlänge der He-Atome ergibt höhere Strahlgeschwindigkeiten ($\bar{v}_{\text{He}} = 1799.4 \text{ m/s}$), als man auf der Basis von Gl. 3.3 erwarten würde. Der Grund hierfür liegt in der Beschreibung der Düsenexpansion unter der Annahme eines idealen Gases. Bei den hier verwendeten hohen Primärdrücken p_0 müssen jedoch zusätzlich die Effekte des realen Gases (Joule-Thomson Effekt) berücksichtigt werden. In diesem Fall wird die mittlere Strahlgeschwindigkeit durch die Beziehung

$$\bar{v}_{\text{He}} = \sqrt{v_0^2 + 2(T_0 - T)c_p \Big|_{p=0} + 2 \cdot \int_{p_0}^p c_p \mu_{JT} \Big|_{T_0} dp} \quad [3.4]$$

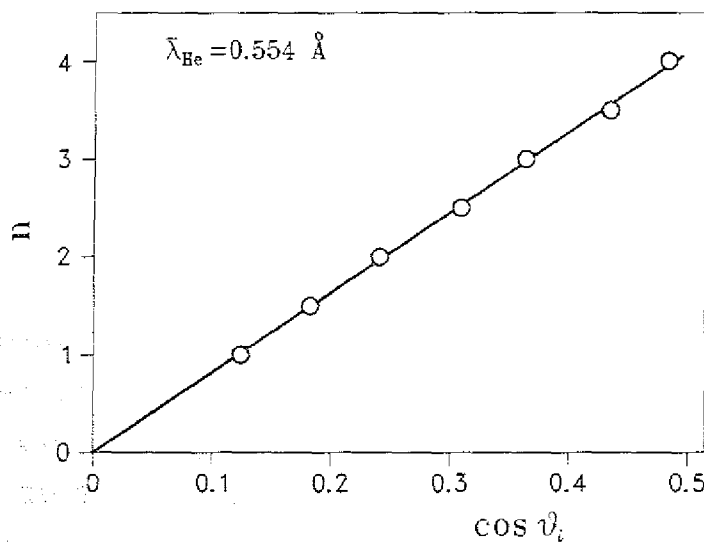


Abb. 13. Bestimmung der mittleren de-Broglie Wellenlänge der He-Atome: Aufgetragen ist der aus den Maxima und Minima der in Abb. 12 auf Seite 38 gezeigten Rocking-Kurve ermittelte Phasenindex n gegen den Kosinus des Spiegelwinkels θ_i . Aus der Steigung der Geraden ergibt sich mit Hilfe von Gl. 3.1 eine mittlere de-Broglie Wellenlänge der He-Atome von $\bar{\lambda}_{\text{He}} = 0.554 \text{ \AA}$ ($T_0 = 293 \text{ K}$).

beschrieben /118./ . Der Index 0 bei den Zustandsgrößen Gastemperatur T , Gasdruck p und Strahlgeschwindigkeit v bezeichnet deren Werte vor der Expansion. μ_{JT} bezeichnet den Joule-Thomson Koeffizienten. Vernachlässigt man die endliche Strömungsgeschwindigkeit der He-Atome vor der Expansion, so wird die mittlere Strahlgeschwindigkeit durch zwei Terme bestimmt: einen, der die Expansion eines idealen Gases beschreibt, und einen weiteren Term, der die „Überschuß-Enthalpie“ des realen Gases ausdrückt. Die Wechselwirkung in einem realen Gas führt demnach zu einer erhöhten Abkühlung des Gases und somit zu einer Erhöhung der Strömungsgeschwindigkeit nach der Expansion.

Vergleicht man den hier ermittelten Wert für $\bar{v}_{He}$ mit früheren Ergebnissen aus Flugzeitexperimenten /118./, so stellt man eine gute Übereinstimmung fest, wenn zusätzlich die Erhöhung der Enthalpie durch die (oben vernachlässigte) endliche Strömungsgeschwindigkeit v_0 des Gases in der Düse bei den unterschiedlichen untersuchten Düsenquerschnitten berücksichtigt wird.

3.4 Die Monochromasie des He-Düsenstrahles

Die Monochromasie eines Düsenstrahls wird üblicherweise durch das Geschwindigkeitsverhältnis S charakterisiert:

$$S = \sqrt{\frac{m_{He} \bar{v}_{He}^2}{2kT}} \quad [3.5]$$

T bezeichnet die Strahltemperatur in einem mit der Strahlgeschwindigkeit $\bar{v}_{He}$ mitbewegten Koordinatensystem. Das Geschwindigkeitsverhältnis ist also ein Maß für die Effizienz der Umwandlung von Rotations-, Vibrations- und ungerichteter Translationsenergie in gerichtete Translationsenergie und daher von den Expansionsgrößen $p_0 d_{eff}$ und T_0 abhängig /119./:

$$S \sim (p_0 d_{eff} \cdot T_0^{-4/3})^{0.53} \quad [3.6]$$

mit d_{eff} als dem effektiven Querschnitt der Düsenöffnung. Die Proportionalitätskonstante wird maßgeblich durch die Wechselwirkung der He-Atome während und nach der Expansion beeinflusst. Ihre Bestimmung erfordert eine vollständige Kenntnis des He-He Wechselwirkungspotentials. Für $S > 10$ läßt sich das Geschwindigkeitsverhältnis bei monoatomaren Gasen mit der Halbwertsbreite $\Delta v / \bar{v}_{He}$ der Geschwindigkeitsverteilung des Strahles verknüpfen:

$$S = 1.65 \cdot \frac{\bar{v}_{\text{He}}}{\Delta v} \quad [3.7]$$

Die einfachste Methode zur Bestimmung der Monochromasie des Strahles ist die Durchführung von Flugzeitexperimenten [120.-122.], was jedoch mit dem hier verwendeten experimentellen Aufbau nicht möglich ist. Die Monochromasie des Strahles mußte daher auf eine andere Art ermittelt werden: die Messung der Breiten von Beugungspeaks höherer Ordnung. Nach Gl. 2.18 wird die Breite von Beugungspeaks höherer Ordnung ($g \neq 0$) durch die Geschwindigkeitsbreite des He-Strahls beeinflusst. Da diese Beugungspeaks bei der reinen Pt(111)-Fläche zu geringer Intensität zeigen, um sie mit dem verwendeten Instrument genügend gut auflösen zu können [63.], mußte auf die Beobachtung von Überstrukturpeaks einer geordneten Adsorbatschicht zurückgegriffen werden. Dazu wurde eine $p(2 \times 2)$ -Überstruktur von O/Pt(111) hergestellt und die Peakprofile des gespiegelten sowie der $(\pm 1/2, 0)$ -Peaks gemessen und miteinander verglichen.

Betrachten wir die Beugung von He-Atomen an dieser zweidimensionalen Überstruktur genauer. Die Position der Beugungspeaks ist durch die Bragg-Bedingung

$$\vec{k}_{\parallel} = h_1 \vec{b}_1 + h_2 \vec{b}_2 \quad h_1, h_2 \in \{0, \pm 1/2, \pm 1, \dots\} \quad [3.8]$$

gegeben, mit $\vec{k}_{\parallel}$ als dem Übertrag der zur Oberfläche parallelen Komponente der einfallenden und ausfallenden Wellenvektoren $\vec{K}_i$ bzw. $\vec{K}_r$. h_1 und h_2 bezeichnen die

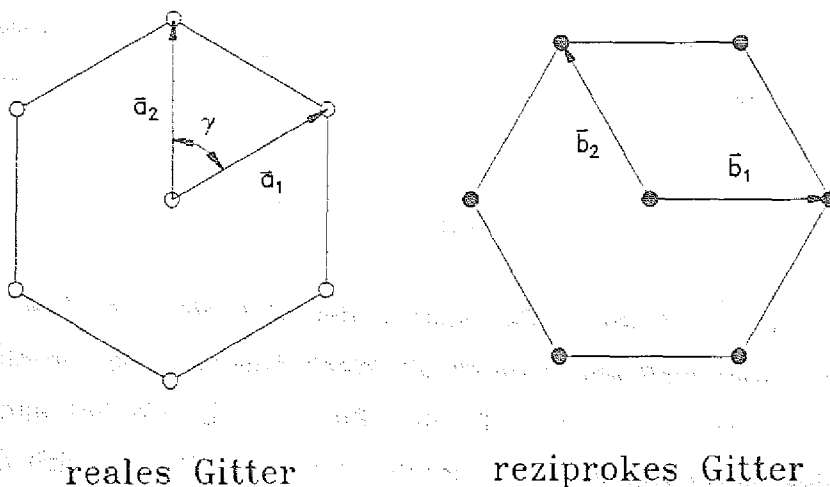


Abb. 14. Reales und reziprokes Gitter einer Pt(111)-Fläche

Beugungsordnungen relativ zu den reziproken Gittervektoren $\vec{b}_1$ und $\vec{b}_2$ des Substrats (siehe Abb. 14). Die reziproken Gittervektoren sind über die Beziehungen

$$\vec{a}_i \cdot \vec{b}_j = 2\pi\delta_{ij} \quad \text{und} \quad |\vec{b}_i| = \frac{2\pi}{|\vec{a}_i| \sin \gamma} \quad [3.9]$$

mit den Gittervektoren $\vec{a}_i$ des realen Gitters, die den Winkel γ einschließen, verknüpft. Auf dem hexagonalen Bravaisgitter der Pt(111)-Fläche gilt für die Länge der reziproken Gittervektoren $\vec{b}_1$ und $\vec{b}_2$ relativ zum Gitterabstand $a = 2.77 \text{ \AA}$ des realen Substratgitters:

$$b := |\vec{b}_1| = |\vec{b}_2| = \frac{4\pi}{a\sqrt{3}} \quad [3.10]$$

Die Position des durch den Vektor (h_1, h_2) charakterisierten Beugungspeaks wird durch den Winkel φ_i der parallelen Komponente des einfallenden Wellenvektors gegenüber einem der reziproken Gittervektoren $\vec{b}_i$ bestimmt. Zunächst sei die Streuung in einem Koordinatensystem betrachtet, welches durch die reziproken Gittervektoren der Oberfläche definiert ist. Die parallele Komponente des einfallenden Wellenvektors ist dann, wie auch aus Abb. 15 auf Seite 44 ersichtlich wird, durch den Einfallswinkel ϑ_i des Wellenvektors relativ zur Oberflächennormalen sowie durch den Winkel φ_i relativ zu einem reziproken Gittervektor bestimmt. Der Winkel Θ_i des ausfallenden Wellenvektors relativ zur Oberflächennormalen sowie der Winkel Φ_i relativ zu $\vec{b}_1$ ist durch die Beziehungen

$$\sin \Theta_i = \sqrt{\sin^2 \vartheta_i + \frac{b^2}{k^2} [h_1^2 + h_2^2 - h_1 h_2] + \frac{2b \sin \vartheta_i}{k} [h_1 \cos \varphi_i + h_2 \sin(\varphi_i - 30^\circ)]} \quad [3.11]$$

$$\tan \Phi_i = \frac{\sin \vartheta_i \sin \varphi_i + \frac{b\sqrt{3}}{2k} h_2}{\sin \vartheta_i \cos \varphi_i + \frac{b}{2k} (2h_1 - h_2)}$$

bestimmt. Die dem Experiment zugänglichen Streuwinkel beziehen sich üblicherweise auf ein Koordinatensystem, das durch die Einfallsebene des He-Strahles definiert ist. Diese ist durch die Einfallsrichtung der He-Atome und die Oberflächennormale festgelegt. Es ist daher notwendig, die aus Gl. 3.11 bestimmten Winkel in den Ausfallswinkel ϑ_r der He-Atome relativ zur Oberflächennormalen in der Streuebene sowie in den Ausfallswinkel φ_r senkrecht dazu zu transformieren:

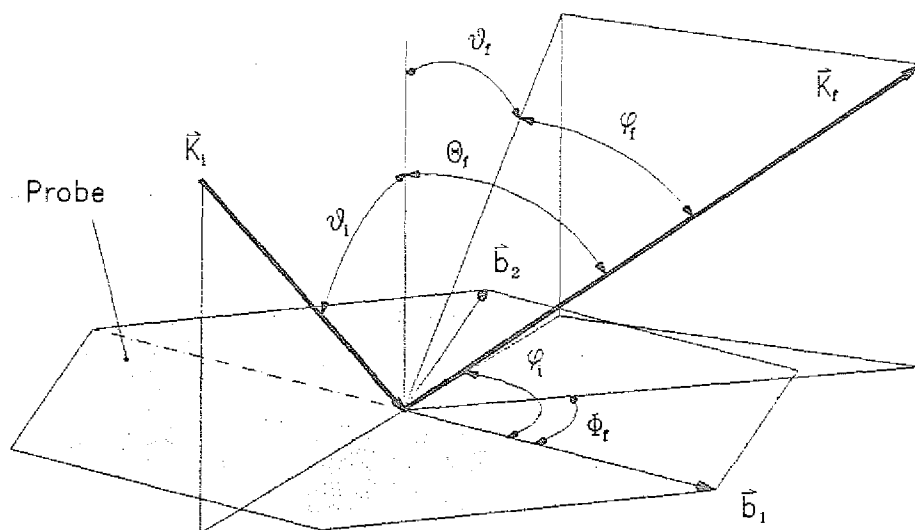


Abb. 15. Geometrische Verhältnisse bei der Beugung von He-Atomen

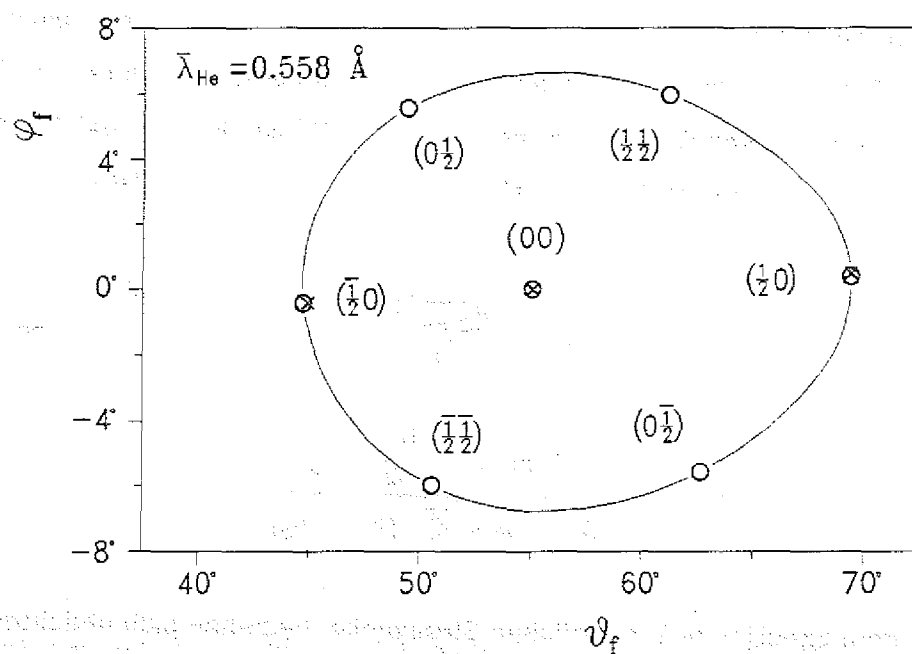


Abb. 16. Positionen der Beugungspeaks nach Streuung an einer p(2x2)-Überstruktur von O/Pt(111): Die experimentell beobachteten Positionen der Beugungspeaks sind als Kreuze dargestellt. Der Auswertung mit Hilfe von Gl. 3.11 und Gl. 3.12 entnimmt man mit $\vartheta_i = 55.1^\circ$ eine mittlere de-Broglie Wellenlänge der He-Atome von $\bar{\lambda}_{He} = 0.558 \text{ \AA}$. Die für diese Bedingungen berechneten Beugungspeaks sind als Kreise angedeutet.

$$\begin{aligned}\sin \varphi_f &= \sin \Theta_f \cdot \sin(\Phi_f - \varphi_i) \\ \tan \vartheta_f &= \tan \Theta_f \cdot \cos(\Phi_f - \varphi_i)\end{aligned}\quad [3.12]$$

In Abb. 16 auf Seite 44 sind die nach Gl. 3.11 und Gl. 3.12 berechneten und die experimentell beobachteten Peakpositionen eingetragen. Man findet eine gute Übereinstimmung für den gewählten Einfallswinkel der He-Atome von $\vartheta_i = 55.1^\circ$ und eine mittlere de-Broglie Wellenlänge von $\bar{\lambda}_{He} = 0.558 \text{ \AA}$. Dies ist im Rahmen des experimentellen Fehlers identisch zu dem im letzten Abschnitt bestimmten Wert von $\bar{\lambda}_{He} = 0.554 \text{ \AA}$.

Zur Erzeugung einer geordneten p(2x2)-Überstruktur von O/Pt(111) wurde die Oberfläche bei einer Temperatur von $T_s = 135 \text{ K}$ einer Sauerstoff-Begasung von ca. 400 L ausgesetzt. Nach Beendigung der Adsorption wurde die Oberfläche bei einer Temperatur von $T_s = 316 \text{ K}$ getempert. Dadurch dissoziiert der molekular adsorbierte Sauerstoff und bildet eine geordnete p(2x2)-Überstruktur [123.-127./]. Für die auf diese Weise erzeugte Struktur wurden Peakprofile für sowohl die gespiegelte Richtung als auch für die $(\pm 1/2, 0)$ Beugungsordnungen bei einer Oberflächentemperatur von $T_s = 316 \text{ K}$, einer Düsentemperatur von $T_D = 293 \text{ K}$ sowie einem Einfallswinkel der He-Atome von $\vartheta_i = 55.1^\circ$ aufgenommen. In Abb. 17 ist als Beispiel ein experimentell be-

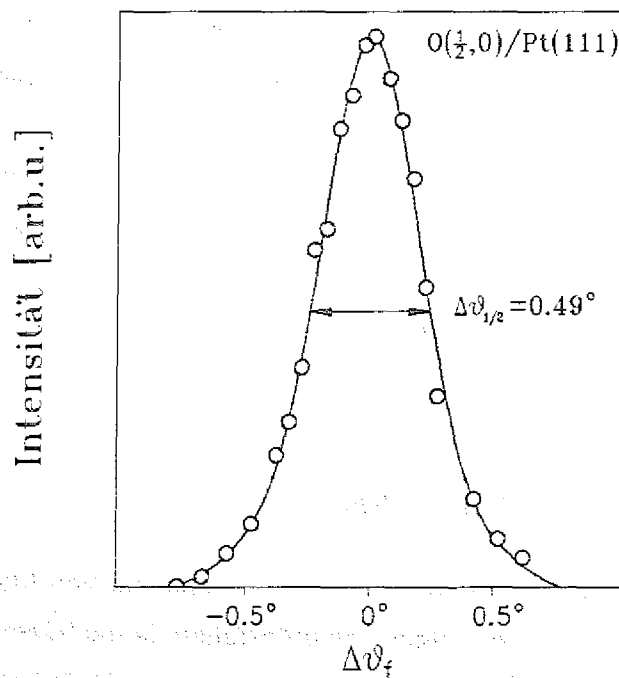


Abb. 17. Experimentell beobachteter $(1/2, 0)$ -Beugungspeak der p(2x2)-Überstruktur von O/Pt(111).

obachtetes Profil des (1/2,0)-Überstrukturpeaks gezeigt. Es wurden folgende Peakpositionen und Peakbreiten gemessen:

(h_1, h_2)	ϑ_i	φ_i	$\Delta\vartheta_{1/2}$
(0,0)	55.08°	0°	0.25°
(1/2,0)	69.42°	0.5°	0.49°
(-1/2,0)	44.93°	-0.4°	0.32°

Die beobachtete Halbwertsbreite des (0,0)-Peaks ist identisch zu der des gespiegelten Peaks für die reine Pt(111)-Fläche. Dies zeigt, daß die erzeugte O/Pt(111)-Fläche in sehr geordneter Struktur vorliegt. Daher wird die Breite der Beugungspeaks ausschließlich durch instrumentelle Größen bestimmt. Deren Einfluß auf die beobachtete Peakbreite wurde bereits im Abschnitt „Die Transferbreite“ auf Seite 24 diskutiert. Unter Spiegelbedingungen wird die Breite des Peaks nicht durch die Breite $\Delta v/\bar{v}_{He}$ der Geschwindigkeitsverteilung des Düsenstrahles beeinflusst. Vergleicht man daher die beobachteten Halbwertsbreiten der $(\pm 1/2, 0)$ Beugungspeaks der O/Pt(111)-Struktur mit der des (0,0)-Peaks, so läßt sich mit Hilfe von Gl. 2.18 die gesuchte Breite $\Delta v/\bar{v}_{He}$ der Geschwindigkeitsverteilung der He-Atome entnehmen. Bei den hier gewählten Expansionsgrößen $p_0 = 150$ bar, $d_0 = 10 \mu m$ und $T_0 = 293$ K erhält man als Ergebnis eine Geschwindigkeitsbreite von $\Delta v/\bar{v}_{He} = 2.06 \pm 0.07$ %. Dies entspricht mit Gl. 3.7 einem Geschwindigkeitsverhältnis von $S \approx 80$. Dieser Wert ist im Rahmen der experimentellen Fehler gut mit den Ergebnissen früherer Untersuchungen vergleichbar [119., 120.]. Wie bereits im Abschnitt „Instrumentelle Effekte bei der Beugung an einer gestuften Oberfläche“ auf Seite 26 diskutiert wurde, wirkt sich die Monochromasie der He-Atome unter Spiegelbedingungen auf die Beobachtbarkeit dreidimensionaler Strukturen der Oberfläche aus. Die Geschwindigkeitsverteilung des hier verwendeten Instrumentes ist jedoch so schmal, daß deren Einfluß auf die gespiegelte Peakhöhe nach der Streuung an dreidimensional strukturierten Oberflächen vernachlässigt werden kann.

3.5 Die Erzeugung epitaktischer Schichten

Zur Erzeugung epitaktischer Schichten stehen eine Vielzahl von Methoden zur Verfügung. Diese lassen sich in zwei Kategorien unterteilen, je nachdem, ob die Teilchen in reiner (atomarer) oder in chemisch gebundener Form (meist in organometallischen Verbindungen) zur Probe transportiert werden. Dementsprechend werden die unterschiedlichen Transporttechniken mit *PDT* (*Physical Deposition Techniques*) bzw. *CDT*

(*Chemical Deposition Techniques*) bezeichnet. Eine neuere Übersicht der einzelnen Methoden findet sich in /35./ und /128./.

In den dieser Arbeit zugrunde liegenden Experimenten wurden die Pt-Atome in atomarer Form (PDT) zur Oberfläche transportiert. Dies ist für Untersuchungen des Wachstums von Kristallen gegenüber den CDT-Verfahren erheblich vorteilhafter, da hierbei die Struktur der wachsenden Fläche ausschließlich durch die Diffusion der Adteilchen bestimmt wird. Die freien Atome werden im Vakuum durch das Verdampfen festen oder flüssigen Materials erzeugt. Dies wird üblicherweise durch die Verwendung von Knudsen-Zellen (*Knudsen-Evaporation*) oder, wie im vorliegenden Fall, durch das Verdampfen einer freien Festkörperfläche (*Langmuir-Evaporation*) realisiert. In beiden Fällen ist die Zahl verdampfender Atome pro Zeit- und Flächeneinheit A_e bei gegebener Temperatur T_Q des Festkörpers proportional zur Differenz zwischen dem Gleichgewichts-Dampfdruck $p^*(T_Q)$ der Oberfläche und dem Partialdruck p des die Fläche umgebenden Pt-Gases /129.-131./:

$$\frac{dN_e}{A_e dt} = \alpha_v \cdot \frac{p^*(T_Q) - p}{\sqrt{2\pi m_A k T_Q}} \quad [3.13]$$

Diese Beziehung ist auch als Hertz-Knudsen Gleichung bekannt. m_A bezeichnet hier die Masse der verdampfenden Atome, k die Boltzmann-Konstante und $\alpha_v \leq 1$ einen Verdampfungsfaktor, der von der Beschaffenheit und dem Verunreinigungsgrad der Fläche abhängt. Bei Verwendung sehr reinen Materials und unter Vernachlässigung des Restgasdrucks ergibt sich eine maximale Verdampfungsrate von

$$\frac{dN_e}{A_e dt} = \frac{p^*(T_Q)}{\sqrt{2\pi m_A k T_Q}} \quad [3.14]$$

Abhängig von den erreichbaren Quellentemperaturen und der Geometrie des Aufbaues können mit dieser Methode Wachstumsraten bis zu 1 MI/s erreicht werden. Neben der erzielten Wachstumsrate ist die Homogenität des Teilchenflusses auf der Probe von entscheidender Bedeutung. Aus diesem Grund soll in den nächsten Abschnitten diskutiert werden, welche instrumentellen Größen für die Homogenität des auf die Probe treffenden Teilchenflusses maßgeblich sind.

3.5.1 Die Intensitätsverteilung der auf die Probe auftreffenden Pt-Atome

Bei den in dieser Arbeit diskutierten Experimenten wurden die Schichten durch thermische Evaporation einer freien polykristallinen Pt-Fläche erzeugt. Dies hat gegenüber der Verwendung von Knudsen-Zellen den entscheidenden Vorteil, durch die Wahl entsprechend großer Flächendurchmesser bei gleichen Flüssen eine deutlich höhere Homogenität erzielen zu können /132.,133./. Dies soll im folgenden quantitativ erfaßt werden.

Bei dem Verdampfen einer freien Festkörperoberfläche läßt sich jedes Flächenelement dA_e als Punktquelle betrachten, die Atome in den gesamten Halbraum freisetzt. Die Intensität in einem Flächenelement dA_r der Probe am Punkt (x,y) ist dann durch eine Integration über alle Flächenelemente dA_e bestimmt, wobei die Intensität in jede Emissionsrichtung mit dem Kosinus des Winkels gegen die Flächennormale gewichtet wird /134./:

$$I(x,y) = \frac{dN_e}{A_e dt} \cdot \int_{A_e} \frac{\cos \zeta \cos \xi}{\pi \omega^2} dA_e . \quad [3.15]$$

ζ und ξ bezeichnen die Winkel zwischen den Normalen der Probe bzw. der emittierenden Fläche und dem Abstandsvektor $\vec{\omega}$ (siehe Abb. 18 auf Seite 49). Für eine radiale Konfiguration, die im weiteren betrachtet werden soll, ist eine analytische Integration von Gl. 3.15 nur möglich, wenn die emittierende Fläche A_e mit dem Radius R_0 und die Probe planparallel sind, d.h. wenn gilt: $\zeta = \xi$. Für diesen Fall ergibt sich die folgende Intensitätsverteilung des Pt-Flusses /135./:

$$I(x,y) = \frac{dN_e}{2A_e dt} \left[1 - \frac{h_0^2 - R_0^2 + x^2 + y^2}{\sqrt{(h_0^2 - R_0^2 + x^2 + y^2)^2 + (2h_0 R_0)^2}} \right] . \quad [3.16]$$

Im allgemeinen muß eine geometrische Anordnung betrachtet werden, bei der die Probe um den Winkel γ gegen die emittierende Fläche gekippt ist. Obwohl Gl. 3.15 für diesen Fall nicht mehr analytisch lösbar ist, erhält man eine gute Abschätzung der realen Verteilung, wenn man die nach Gl. 3.16 bestimmte Intensität auf einer um die x' -Achse gekippten Ebene betrachtet /136./. Transformiert man daher die Koordinaten (x,y,h_0) der planparallelen Anordnung auf die der gekippten Konfiguration (x',y',h') , so ergibt sich die folgende Intensitätsverteilung:

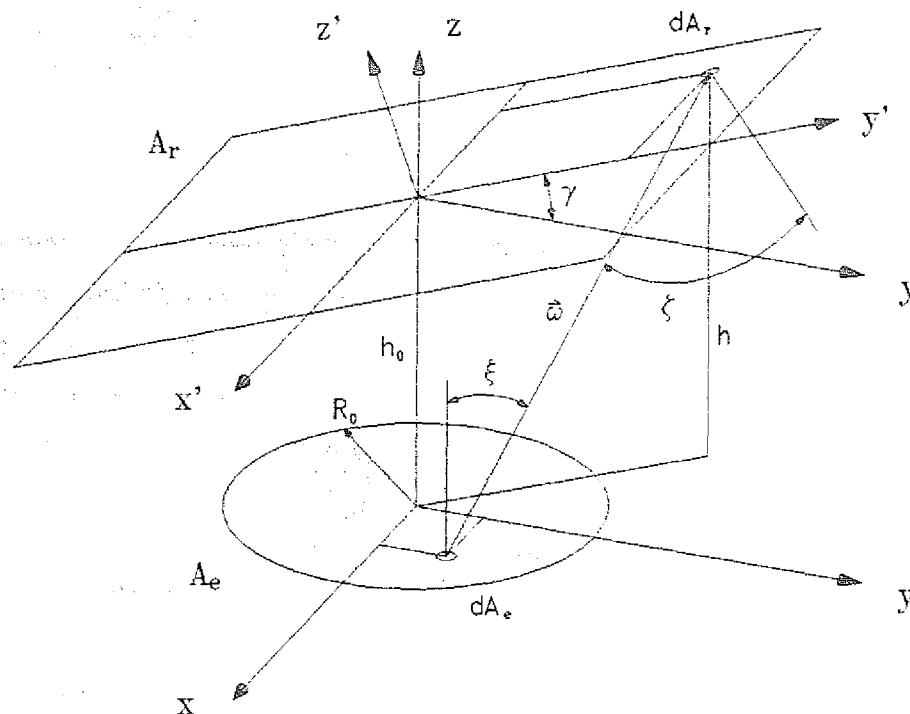


Abb. 18. Geometrie zur Bestimmung der Intensitätsverteilung des Pt-Flusses

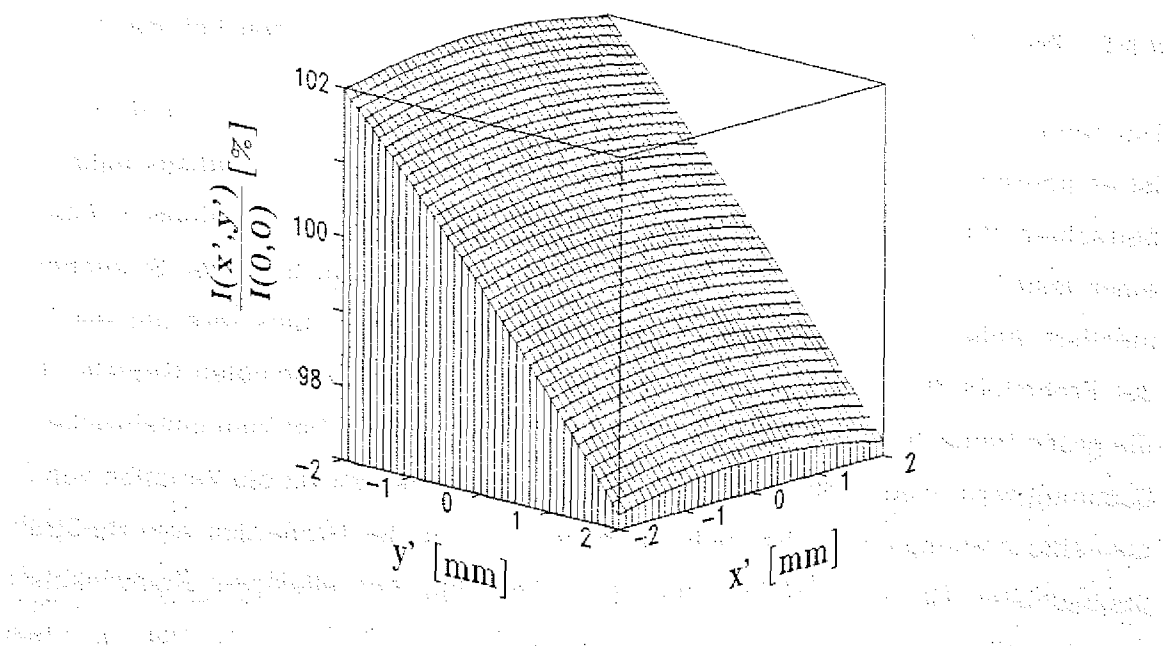


Abb. 19. Die Intensitätsverteilung der auf die Probe treffenden Pt-Atome: Die Kurve zeigt die nach Gl. 3.17 berechnete und auf den Punkt (0,0) normierte Intensität als Funktion des Abstandes vom Probenzentrum. Als Parameter wurden die Werte des realisierten Aufbaus eingesetzt: $h_0 = 56$ mm und $R_0 = 7$ mm. Als Kippachse wurde die x' -Achse gewählt und der minimale Kippwinkel von $\gamma = 20^\circ$ angenommen.

$$I(x', y') = \frac{dN_e}{2A_e dt} \left[1 - \frac{h_0^2 - R_0^2 + x'^2 + y'^2 + 2h_0 y' \sin \gamma}{\sqrt{(h_0^2 - R_0^2 + x'^2 + y'^2 + 2h_0 y' \sin \gamma)^2 + 4R_0^2(h_0 + y' \sin \gamma)^2}} \right] \quad [3.17]$$

In Abb. 19 auf Seite 49 ist ein Beispiel für die auf diese Weise berechnete Intensitätsverteilung gezeigt. Dabei wurden die Werte des realisierten Aufbaus eingesetzt: $h_0 = 56$ mm, $R_0 = 7$ mm sowie der minimale Kippwinkel von $\gamma = 20^\circ$. Die gezeigte Verteilung weist die geringsten Intensitätsunterschiede auf, die bei dem realisierten Aufbau erreichbar sind. Üblicherweise ist der Kippwinkel γ größer als 20° , was zu einem erhöhten Intensitätsgefälle in der y' -Richtung führt.

Die Bestimmung der Intensitätsverteilung des Pt-Flusses erlaubt also eine Beurteilung der Homogenität der Depositionsrate auf der gesamten Probenoberfläche als Funktion von γ . Von wesentlich größerer Bedeutung ist es jedoch, eine konkrete Bedingung zu besitzen, die den Einfluß der Inhomogenität des Teilchenflusses auf die beobachtete Oberflächenmorphologie charakterisiert. Dies wird im nächsten Abschnitt den zentralen Aspekt der Diskussion bilden.

3.5.2 Die Inhomogenität des Teilchenflusses im beobachteten Teil der Probe

Um den Einfluß der Inhomogenität des Pt-Flusses auf das Experiment zu bestimmen, ist es notwendig, die geometrischen Verhältnisse des realisierten Aufbaus näher zu betrachten. Wie aus Abb. 20 auf Seite 52 hervorgeht, wurde die Verdampferquelle in einer festen Position gegenüber dem einfallenden He-Strahl bzw. der Streuebene montiert. Aufgrund des begrenzten Durchmessers des He-Strahls wird nur ein Teil der Probenoberfläche beobachtet, wobei die Fläche des beobachteten Gebiets (d.h. die große Halbachse des elliptischen Strahlflecks auf der Probe) vom Einfallswinkel ϑ_i bestimmt wird. Wegen der festen Position der Pt-Quelle bewirkt die Variation von ϑ_i , also eine Drehung der Probe, nicht nur eine Änderung der Größe des vom He-Strahl beobachteten Gebiets, sondern auch eine Änderung des effektiven Kippwinkels γ zwischen Pt-Quelle und Probe. Darüber hinaus führt die Drehung der Probe zu einer Drehung der Kippachse (x' -Achse) von Quelle und Probe um die Oberflächennormale. In einem Beugungsexperiment resultiert die beobachtete Intensität aus einer Summation aller Streubeiträge über den gesamten Strahlfleck. Die Inhomogenität des Pt-Flusses im beobachteten Teil der Probe:

$$(\overline{\Delta I})^2 = \frac{1}{A_b} \cdot \int_{A_b} [I(x', y') - \bar{I}]^2 dA_r \quad [3.18]$$

liefert daher ein gutes Maß für den Einfluß von Inhomogenitäten der Depositionsrate auf die gestreute He-Intensität. $\bar{I}$ bezeichnet hierbei die mittlere Pt-Intensität im beobachteten Gebiet A_b auf der Probe. Auch hier tritt das Problem auf, daß Gl. 3.18 nicht analytisch lösbar ist, wenn die im letzten Abschnitt gefundene Intensitätsverteilung (Gl. 3.17) eingesetzt wird. Daher muß wiederum auf eine Approximation zurückgegriffen werden:

$$I(x', y') \simeq I_0 [\cos Ax' - B(\gamma)y'] \quad [3.19]$$

A , $B(\gamma)$ und I_0 sind Parameter, die aus einer Anpassung der angenäherten Intensitätsverteilung an die in Gl. 3.17 angegebene Verteilung hervorgehen. Die im letzten Abschnitt betrachtete Intensitätsverteilung der Pt-Atome wurde durch Größen gegeben, die auf ein Koordinatensystem der Probe bezogen sind. Die dem Experiment zugänglichen Größen werden jedoch durch ein Laborsystem definiert, welches durch die Streuebene der He-Atome und die Drehachse der Probe gegeben wird. Beide Koordinatensysteme sind bei geeigneter Wahl der Basisvektoren (siehe Abb. 20) um den Winkel α gegeneinander gedreht. Der Einfallsvektor der Pt-Atome ist im Laborsystem durch den Winkel ϑ' in der (x'', z'') -Ebene, d.h. in der Streuebene, und den Winkel β aus dieser Ebene heraus definiert. ϑ' entspricht bis auf eine Konstante dem Spiegelwinkel ϑ_i der Sondeteilchen: im vorliegenden Fall gilt $\vartheta' = \vartheta_i + 60^\circ$. Diese Winkel transformieren sich durch die folgenden Beziehungen in den Drehwinkel α der beiden Koordinatensysteme sowie in den effektiven Kippwinkel γ :

$$\begin{aligned} \cos \gamma &= \cos \beta \cos \vartheta' \\ \tan \alpha &= \frac{\sin \vartheta'}{\tan \beta} \end{aligned} \quad [3.20]$$

Somit sind alle Beziehungen angegeben, mit deren Hilfe die Inhomogenität des Pt-Flusses im beobachteten Teil der Probe als Funktion des Spiegelwinkels ϑ_i der He-Atome berechnet werden kann. Das Ergebnis der Integration von Gl. 3.18 mit Hilfe von Gl. 3.19 ist für den realisierten Aufbau in Abb. 21 auf Seite 52 dargestellt. $B(\gamma)$ und A ergeben sich aus einer Anpassung der in Gl. 3.19 angegebenen Intensitätsverteilung an den Verlauf von Gl. 3.17. Zu deren Berechnung wurden erneut die aus

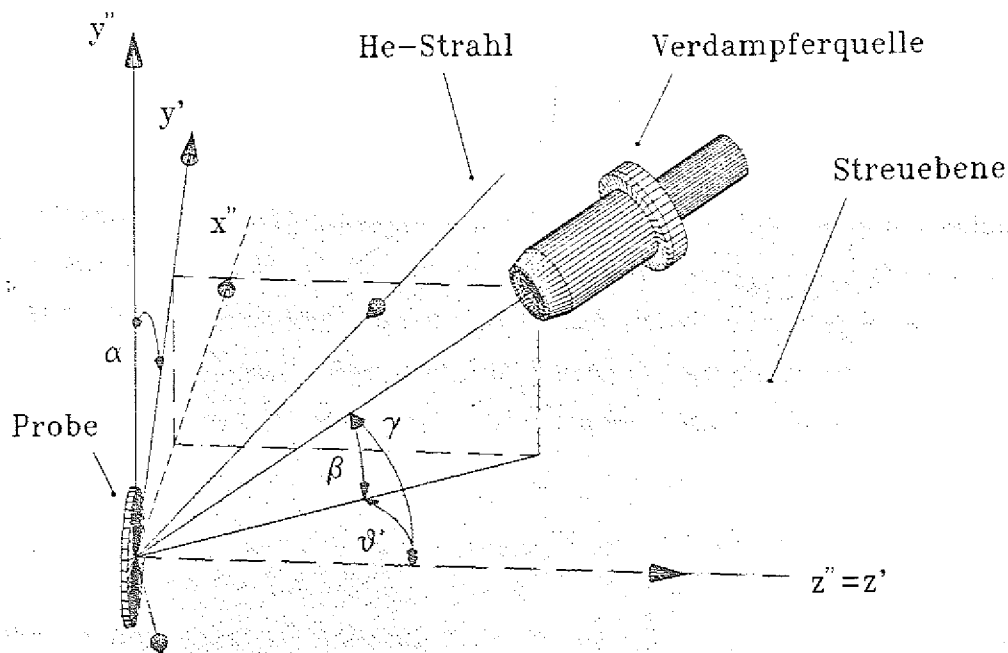


Abb. 20. Geometrische Verhältnisse bei der Bestimmung der Inhomogenität des Pt-Flusses

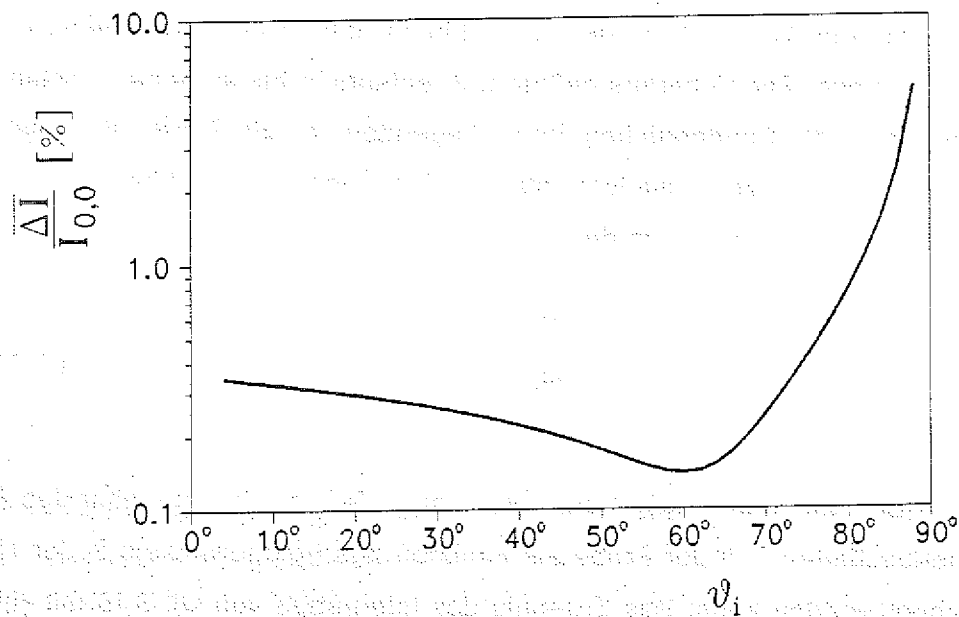


Abb. 21. Inhomogenität des Pt-Flusses am Probenort als Funktion des Spiegelwinkels

den Apparaturdaten ermittelten Werte, nämlich $R_0 = 7 \text{ mm}$ und $h_0 = 56 \text{ mm}$ sowie $x' = y' = 0.2 \text{ mm}$ gewählt. Darüber hinaus wurde der Durchmesser des Sondestrahls bei senkrechtem Einfall auf die Probe als $d_{\text{He}} = 0.2 \text{ mm}$ angenommen. Wie man sieht, erhält man die größte Homogenität der Depositionsrate bei einem Spiegelwinkel von $\vartheta_i = 60^\circ$, da hier der Winkel zwischen der Probennormalen und der Einfallsrichtung der Pt-Atome minimal ist ($\gamma = \beta = 20^\circ$). Für diese Situation wurde die in Abb. 19 auf Seite 49 dargestellte Intensitätsverteilung berechnet. Variiert man den Spiegelwinkel ϑ_i der He-Atome in Richtung streifenden Einfalls, so führt, wie Abb. 21 auf Seite 52 zeigt, die Vergrößerung des beobachteten Gebietes der Probe und die Erhöhung des effektiven Kippwinkels γ zu einer drastischen Erhöhung der Inhomogenität. Bei einer Änderung des Spiegelwinkels ϑ_i in Richtung senkrechten Einfalls wird γ ebenfalls größer. Dies wird jedoch teilweise durch die Verkleinerung des Strahlflecks der He-Atome kompensiert, so daß der Anstieg der Inhomogenität deutlich kleiner ist.

Die Wahl der Streugeometrie übt also einen erheblichen Einfluß auf die Homogenität des Pt-Flusses im beobachteten Teil der Probe aus. Dies ist die Konsequenz der hier realisierten geometrischen Anordnung, bei der die Verdampferquelle eine feste Position gegen die Einfallsebene und -richtung des He-Strahles hat. Inhomogenitäten der Auftreffrate der Pt-Atome führen zu zusätzlichen Phasenunsicherheiten, die nach dem Wachstum einer bestimmten Zahl von Monoschichten zu dem vollständigen Verschwinden definierter Phasenbeziehungen der Streubeiträge führt. Daher bestimmt die Inhomogenität des Pt-Flusses im beobachteten Teil der Probe die Bedeckungsskala, in der man prinzipiell Informationen über die Struktur der Oberfläche erhalten kann. Dies sei anhand von Abb. 21 auf Seite 52 verdeutlicht. Für einen Spiegelwinkel von $\vartheta_i = 80^\circ$ ergibt sich beispielsweise eine Inhomogenität von $7.7 \cdot 10^{-3}$. Nimmt man nach Gl. 2.26 an, daß die Phasenbeziehungen der Streubeiträge vollkommen verschmiert sind, wenn der Phasenfehler ungefähr gleich π ist, so kann das Wachstum von maximal 65 Monoschichten beobachtet werden. Im Gegensatz dazu läßt sich bei einem Spiegelwinkel von $\vartheta_i = 60^\circ$ theoretisch das Wachstum von bis zu 360 Monoschichten verfolgen. Dieses Beispiel macht deutlich, daß bei der Konzipierung eines Aufdampfexperimentes sehr großer Wert auf das Erreichen eines möglichst homogenen Pt-Flusses auf der Probe gelegt werden muß, um bei gegebenen Streubedingungen das Wachstum in einem möglichst großen Bedeckungsbereich verfolgen zu können. Wir werden später im Abschnitt „Instrumentelle Effekte bei der Dämpfung der Oszillationen“ auf Seite 91 noch ausführlich auf diesen Gesichtspunkt eingehen.

3.5.3 Die Verdampferquelle

Aus den letzten Abschnitten wurde deutlich, daß zur Untersuchung des Wachstums von Schichten die folgenden wesentlichen Eigenschaften von einer Verdampferquelle zu fordern sind: eine hinreichend gute Homogenität der auf die Probe treffenden Atome, eine über einen langen Zeitraum konstante Temperatur, sowie die Vermeidung von Kontaminationen durch die Umgebung des Dampfsgutes. Aufgrund dieser Forderungen schieden mit Platin beladene Glühdrähte oder Knudsen-Zellen mit kleinen Öffnungsdurchmessern von vornherein aus. Die schließlich verwendete Quelle geht auf eine von Backes /137./ beschriebene Konstruktion zurück, die jedoch modifiziert und vereinfacht wurde. Ein schematische Darstellung ist in Abb. 22 gegeben.

Das Dampfsgut (D) ist ein kreisförmiges Pt-Blech von 14 mm Durchmesser und ca. 1 mm Dicke. Zur Vermeidung unkontrollierter Verunreinigungen wurde es aus lange Zeit verwendeten Pt-Einkristallen hergestellt. Das Dampfsgut ist zentrisch durch drei 0.2 mm dicke Tantaldrähte an dem aus Kupfer gefertigten Halter (H) befestigt. Durch diese Befestigung wird die thermische Leitfähigkeit und damit die Temperatur des Halters bei Betrieb der Quelle möglichst klein gehalten. Der Halter umschließt das Dampfsgut und die Heizvorrichtung bis auf eine Öffnung mit 14 mm Durchmesser,

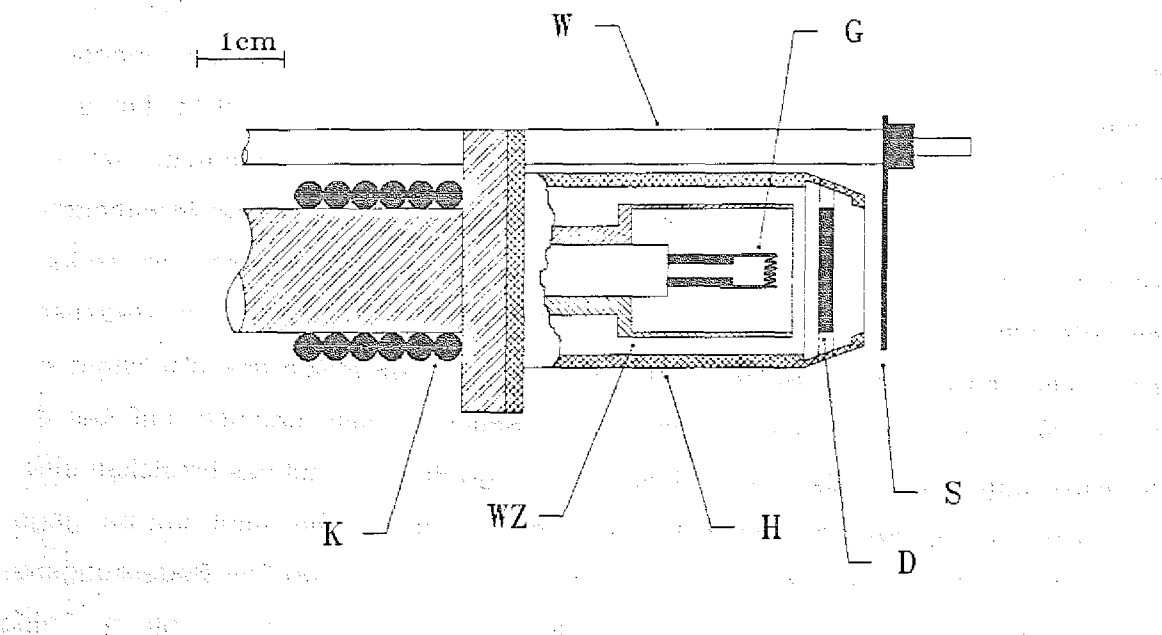


Abb. 22. Aufbau der Verdampferquelle: D: Dampfsgut, G: Glühdraht, H: Halter, K: Wasserkühlung, S: Blende, W: Welle zum Öffnen und Schließen der Blende, WZ: Wehneltzylinder.

durch die die Pt-Atome die Probe erreichen können. Der Teilchenfluß kann durch eine Tantal-Blende (S) von außen unterbrochen werden. Um ein übermäßiges Aufheizen des Halters zu vermeiden, wird er durch eine Wasserkühlung (K) gekühlt. Das geerdete Dampfput wird mit einem auf negativem Potential liegenden Glühdraht (G), der von einem elektrisch isolierten Wehneltzylinder (WZ) umschlossen ist, geheizt. Mit dieser Konstruktion wurden bei einem Glühstrom von 5-5.5 A und einem negativen Potential von 600-800 V Quellentemperaturen von typischerweise $T_0 \approx 1800$ K erreicht. Die Bestimmung der Quellentemperatur erfolgte durch ein am Dampfput punktgeschweißtes WRe(3%)/WRe(25%)-Thermoelement. Die gemessene Thermospannung wird über einen Linearisierer einem PID-Regler zugeführt, der einen Vergleich mit der gewählten Solltemperatur durchführt und das Potential des Glühdrahtes entsprechend reguliert. Dadurch kann die Temperatur des Dampfputes über Stunden auf ± 1 K genau konstant gehalten werden.

Die Quelle zielt unter einem Winkel von $\beta = 20^\circ$ senkrecht zur Streuebene und einem Winkel von $\vartheta' - \vartheta_i = 60^\circ$ in der Streuebene auf die Probe (siehe Kapitel „Die Inhomogenität des Teilchenflusses im beobachteten Teil der Probe“ auf Seite 50). Der Abstand h_0 zwischen Dampfput und Probenmitte beträgt 56 mm. Dies erlaubt die volle Ausnutzung des Verfabereiches des Detektors und somit die größtmögliche Variation der Geometrie für He-Streuung. Zusätzlich ist durch die Form der Quelle sichergestellt, daß die Probenoberfläche zu Reinigungs- oder Experimentierzwecken ohne Störungen durch die Quelle mittels Ionenbeschuß zerstäubt werden kann.

3.5.4 Reinigung und Charakterisierung der Verdampferquelle

Die Reinigung des Ofens nach dem Belüften des Systems wurde in zwei Schritten durchgeführt. Zunächst wurde der Ofen längere Zeit bei einer Quellentemperatur von $T_0 \approx 1200$ K ohne Wasserkühlung betrieben, um die wesentlichen Kontaminationen der Dampfputhalterung (z.B. CO) zu entfernen. Nach Einschalten der Kühlung erfolgte ein Entgasen des Ofens bei 1800 K. Durch diese Prozedur konnte der Druckanstieg in der Streukammer während des Betriebs der Verdampferquelle auf ca. $1 \cdot 10^{-10}$ mbar begrenzt werden.

Das Dampfput wurde in mehreren Reinigungszyklen bei einer Quellentemperatur von $T_0 = 800$ K in einer Atmosphäre von ca. $5 \cdot 10^{-8}$ mbar O_2 gereinigt. Die Reinheit des Dampfputes wurde durch das Aufwuchsverhalten der Schichten bestimmt. Dampfput man nämlich Pt-Atome auf einer Pt(111)-Fläche auf, so beobachtet man unter be-

stimmten Bedingungen ein Schicht-für-Schicht Wachstum. Dies äußert sich, wie später im Abschnitt „He-Streuung und Wachstumsmodi einer realen Fläche“ auf Seite 70 näher erläutert wird, in dem Auftreten zeitlicher Oszillationen der He-Peakhöhe, wobei die Periodendauer der Oszillationen dem Wachstum einer Monoschicht entspricht. Es zeigte sich, daß der beobachtete Verlauf der He-Reflektivität bei Oberflächentemperaturen oberhalb $T_s = 500$ K sehr empfindlich auf die Anwesenheit von Verunreinigungen auf der Oberfläche reagiert. Der Grund hierfür liegt in der bevorzugten Anlagerung von Adatomen an Defekten (Verunreinigungen, Stapelfehler, Fehlstellen oder Stufen) auf der Oberfläche /138./ oder auch in dem „pinning“ wandernder Stufen an immobilen Verunreinigungen. Beides beeinflußt die Nukleationsdichte auf der Oberfläche. Da die Keimdichte auf der reinen Fläche bei hohen Temperaturen sehr klein ist, wirkt sich das Vorhandensein von Verunreinigungen drastisch auf die Oberflächenmorphologie während des Wachstums und somit auf die

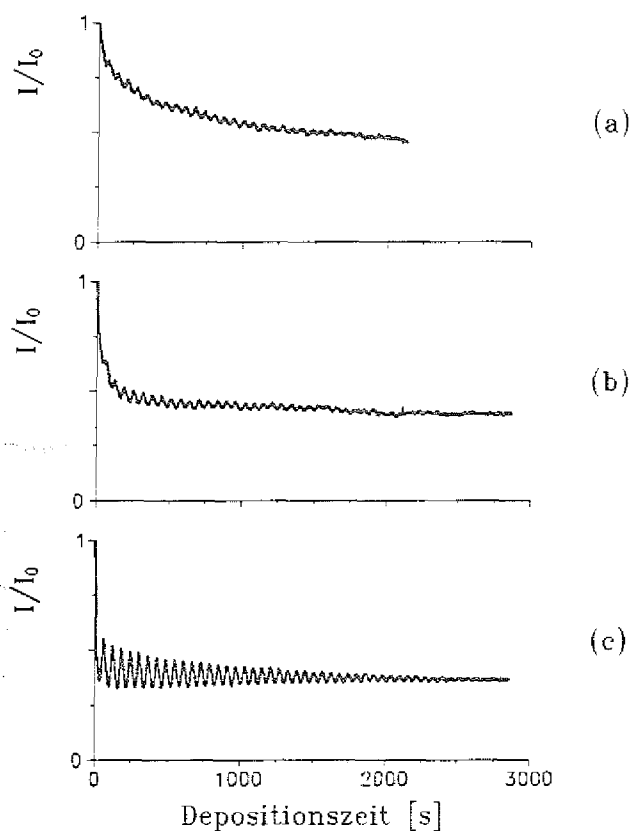


Abb. 23. Aufdampfkurven während der Reinigung des Dampfgutes: Dargestellt ist jeweils die Höhe des gespiegelten Anti-Phase Peaks ($n=2.5$, $\vartheta_i=72.2^\circ$) als Funktion der Depositionszeit bei einer Oberflächentemperatur von $T_s=621$ K und annähernd gleichen Depositionsraten ($0.9 \text{ ML/min} \leq R \leq 1.0 \text{ ML/min}$). Die Kurven zeigen die unterschiedlichen Stadien bei der Reinigung des Dampfgutes im Laufe einer Woche. Nur Figur (c) ist reproduzierbar.

zeitliche Entwicklung der He-Peakhöhe aus. Dies könnte die Ursache für die unterschiedlichen Kurvenverläufe in Abb. 23 sein. Die Figur zeigt die Änderung der Aufdampfkurven im Verlauf der Reinigung der Verdampferquelle. Die Kurven wurden in der Reihenfolge (a)-(b)-(c) im Laufe einer Woche aufgenommen. Aufgetragen ist jeweils die Höhe des gespiegelten Anti-Phase Peaks als Funktion der Depositionszeit. In allen drei Kurven wurden gleiche Bedingungen gewählt: $T_s = 621$ K, $\beta_i = 72.3^\circ$ ($n = 2.5$) sowie eine Depositionsrate zwischen $R = 0.9$ ML/min und $R = 1.0$ ML/min. Vergleicht man die einzelnen Kurvenverläufe, so stellt man deutliche Unterschiede fest: zum einen wächst die Amplitude der Oszillationen mit der Reinheit der Fläche und zum anderen ändert sich der Kurvenverlauf (man beachte den Abfall der He-Reflektivität bis zum ersten Minimum). Es sei betont, daß die Fläche vor Beginn eines jeden Experimentes gereinigt wurde, so daß weder durch AES noch durch He-Streuung Verunreinigungen nachweisbar waren. Dies gilt auch für Kontrolluntersuchungen nach Beendigung der Experimente. Erst nach geraumer Zeit, in der eine Zahl von Reinigungszyklen in O_2 erfolgten, wurde ein Kurvenverlauf beobachtet, der reproduzierbar war (Figur (c)). Dieser wurde „reinen“ Bedingungen zugeschrieben.

Da die Periodendauer der Oszillationen der Zeit für das Wachstum einer Monolage entspricht, konnte die Depositionsrate sehr einfach durch das Ausmessen der Periodendauer der Oszillationen bei gegebener Oberflächentemperatur bestimmt werden. Die Genauigkeit dieser Eichung liegt bei ca. 2 %. Der wesentliche Vorteil dieser Methode ist die Unabhängigkeit von absoluten Rateneichungen. Es zeigte sich nämlich, daß die beobachtete Depositionsrate über einen längeren Zeitraum (einige Wochen) bei konstanter Quellentemperatur ansteigt. Die Gründe hierfür liegen wahrscheinlich in Kristallisations- und Segregationseffekten des Thermoelementes /139./, die zu einer fehlerhaften Temperaturmessung führen, oder aber in Kontaminationen des Dampfgutes. Dieses Verhalten hätte bei absoluten Rateneichungen (z.B. durch eine Quarzwaage /137.,140.,141./) nach einiger Zeit signifikante Abweichungen zwischen der Eichung und der tatsächlich auftretenden Depositionsrate zur Folge. Die hier verwendete relative Rateneichung hat neben ihrer Einfachheit den zusätzlichen Vorteil, derartige Fehler vermeiden zu können, ohne zusätzliche Eichmessungen durchführen zu müssen. Auch bei Experimenten, bei denen keine Oszillationen beobachtbar waren, konnte die Depositionsrate durch eine sich direkt anschließende Messung unter Bedingungen, bei denen Oszillationen auftreten, bestimmt werden.

4.0 Das Wachstum dünner Schichten

Nachdem wir uns in den letzten Kapiteln mit allgemeinen experimentellen und apparativen Aspekten bei der Untersuchung des Wachstums dünner Schichten beschäftigt haben, soll der Schwerpunkt bei den nächsten Kapitel auf der Aufklärung der Prozesse liegen, die auf atomarer Skala für das Wachstum von Schichten verantwortlich sind. Obwohl die ersten Experimente hierzu schon Ende des letzten Jahrhunderts durchgeführt wurden und dieser Thematik seither große Aufmerksamkeit gilt, sind viele Fragen nach der exakten Natur der strukturbestimmenden Wachstumsmechanismen weitgehend unbeantwortet. Die Gründe hierfür liegen sicherlich in der Vielzahl der Faktoren, die bei dem Wachstum von Schichten eine Rolle spielen. Das außerordentlich komplexe Zusammenspiel zwischen Deposition und Ausheilung wird maßgeblich durch die chemische und strukturelle Präparation der Oberfläche, die Diffusion und Nukleation sowie durch die Thermodynamik und Kinetik der auf der Fläche ablaufenden Prozesse beeinflusst. Viele dieser Parameter sind dem Experiment kaum zugänglich, so daß detaillierte Vorhersagen über die wachstumsbestimmenden Prozesse oftmals recht problematisch und nur mit Näherungen möglich sind.

In diesem Kapitel soll eine grobe Übersicht über die Modelle gegeben werden, mit deren Hilfe das Wachstum dünner Schichten beschrieben werden kann. Dazu wird zunächst das Wachstum unter den Bedingungen des thermodynamischen Gleichgewichts betrachtet und die dabei entstehenden Wachstumsformen diskutiert. Die in dieser Arbeit erörterten experimentellen Ergebnisse wurden unter Wachstumsbedingungen durchgeführt, die weit vom thermodynamischen Gleichgewicht entfernt sind. Daher werden die entstehenden Strukturen maßgeblich durch die Kinetik der auf der Fläche ablaufenden atomistischen Prozesse bestimmt. Aus diesem Grund wird sich der zentrale Teil des Kapitels mit den Prozessen beschäftigen, die für das Wachstum von Schichten bei extremen Adatomübersättigungen maßgeblich sind. Neben einer qualitativen Betrachtung der Anfangs- und fortgeschrittenen Stadien des Wachstums homoepitaktischer Systeme wird ein Verfahren zu dessen Modellierung mittels Monte-Carlo Simulationen vorgestellt. Darüber hinaus soll diskutiert werden, wie sich mit Hilfe der He-Streuung Informationen über die wachstumsbestimmenden Prozesse gewinnen lassen.

4.1 Wachstumsmodelle: Thermodynamik und Kinetik

Schon in den zwanziger Jahren dieses Jahrhunderts wurde deutlich, daß man sich der Beschreibung von Kristallwachstums- und Keimbildungsvorgängen von zwei unterschiedlichen Ausgangspunkten nähern kann. Die eine Art der Beschreibung, die auf den Arbeiten von Gibbs, Curie, Wulff und Volmer basiert [7.,142.-144./, ist thermodynamischer Natur („Kontinuumstheorie“). Sie betrachtet den Kristall als Gesamtgebilde und untersucht dessen Gleichgewichtsform, also dessen Form während des Wachstums in der Nähe des thermodynamischen Gleichgewichtes. In diesem Bild ist die Kristallform durch die Forderung der thermodynamischen Stabilität, d.h. durch die Forderung nach minimaler Freier Energie des Kristalls bestimmt:

$$\sum_i \sigma_i A_i = \text{Minimum} \quad . \quad [4.1]$$

σ_i bezeichnet hierbei die Freie Energie („surface free energy“) der Kristallfläche i [145./ und A_i deren Größe. Die Beziehung ist auch als Gibbs-Curie Bedingung bekannt und besagt, daß die Summe der Freien Oberflächenenergien bei konstantem Volumen minimal ist. Dies läßt sich auf das Wachstum dünner Schichten übertragen. Adsorbiert man im thermodynamischen Gleichgewicht einen Film F auf einem Substrat S , so wird das Wachstum des Films durch die Bilanz der Freien Oberflächenenergien σ_{FD} [146./ zwischen dem Film und seiner Dampfphase, σ_{SD} zwischen dem Substrat und dessen Dampfphase sowie durch die Adhäsionsenergie σ_{FS} bestimmt (Young-Dupré-Relation) [147.,148./:

$$\Delta\sigma = \sigma_{FD} + \sigma_{FS} - \sigma_{SD} \quad . \quad [4.2]$$

Abhängig von dem Vorzeichen von $\Delta\sigma$ können drei unterschiedliche Wachstumsformen entstehen [149.-151./, die schematisch in Abb. 24 auf Seite 61 dargestellt sind:

a) *Lagen- oder Frank-van-der-Merve (FM) Wachstum*

Dieser Wachstumsmodus tritt dann auf, wenn die Bilanz der spezifischen Freien Oberflächenenergien negativ ist: $\Delta\sigma < 0$. Die Oberflächenenergie σ_{SD} Substrat-Dampf ist hierbei größer als die Summe $(\sigma_{FD} + \sigma_{FS})$ der Oberflächenenergie von Film-Dampf und der Adhäsionsenergie. Da der wachsende Film stark an das Substrat gebunden ist, wird die Bildung zweidimensionaler Nukleationskeime

auf der Oberfläche energetisch bevorzugt. In diesem Fall wächst der Film ausschließlich lateral; erst wenn die Schicht vollkommen geschlossen ist, können Nukleationskeime in nächst-höheren Niveaus gebildet werden. FM-Wachstum wird insbesondere bei homoepitaktischen Systemen beobachtet, bei denen thermodynamische Betrachtungen sogar ausschließlich diesen Wachstumsmodus fordern [149].

b) Lagen- und Schicht- oder Stranski-Krastanov (SK) Wachstum

SK-Wachstum entsteht, wenn bei starker Bindung des Films an das Substrat entweder die Gitterkonstante oder die Symmetrie des Films stark unterschiedlich zu der des Substrats ist. Zunächst zeigt sich ein Lagenwachstum ($\Delta\sigma < 0$). Die Struktur des Films wird jedoch durch das Substrat modifiziert, so daß starke Spannungen in der wachsenden Schicht entstehen. Mit wachsender Schicht-

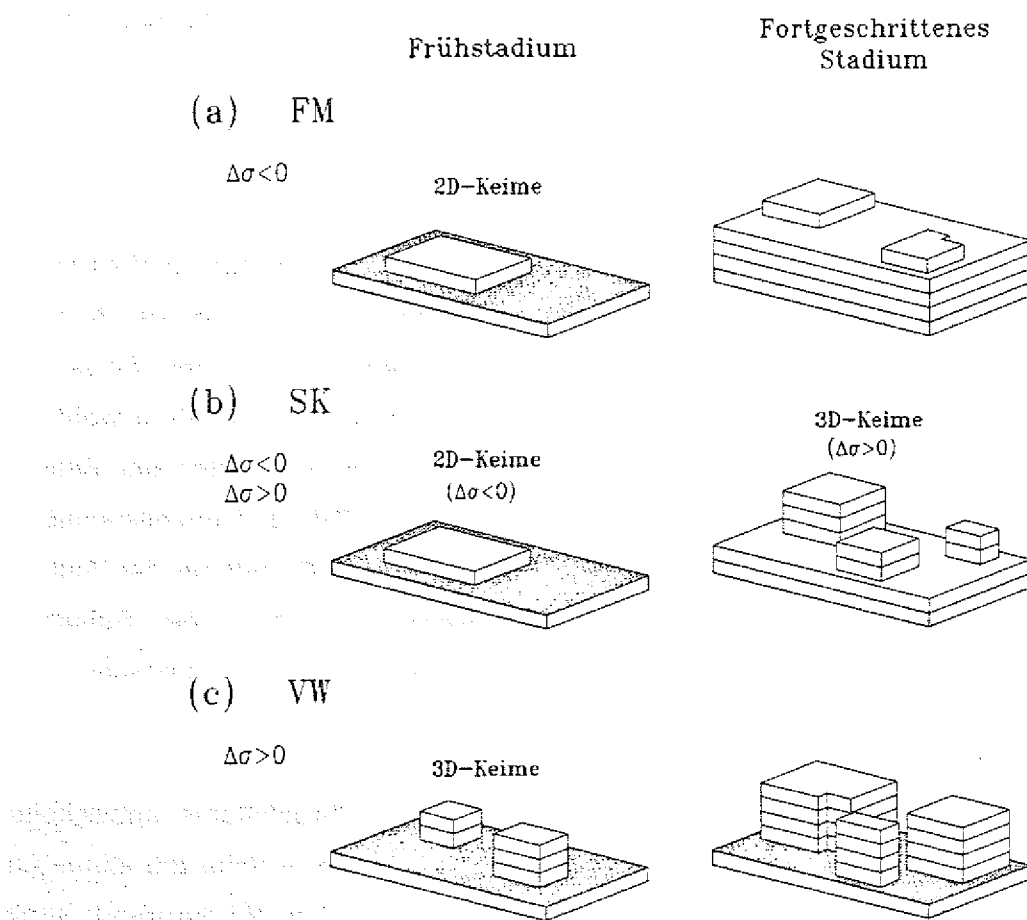


Abb. 24. Die Wachstumsmodi eines Kristalls unter Gleichgewichtsbedingungen: (a): Frank-van-der-Merve Wachstum, (b): Stranski-Krastanov Wachstum und (c): Volmer-Weber Wachstum. Das Substrat ist jeweils schattiert dargestellt.

dicke nimmt der Einfluß des Substrats ab und die auftretenden Spannungen können nicht mehr vollständig kompensiert werden. Daher wird ab einer bestimmten Schichtdicke (eine oder mehrere Monolagen) die Bildung zweidimensionaler Nukleationszentren energetisch ungünstig. Der Kristall wächst durch die Bildung dreidimensionaler Keime weiter, wobei die Energiebilanz der spezifischen Freien Oberflächenenergien einen positiven Wert annimmt ($\Delta\sigma > 0$). Dieser Wachstumsmodus bildet den Übergang zwischen dem „reinen“ Lagenwachstum und dem „reinen“ Clusterwachstum, welches im folgenden betrachtet wird.

c) *Cluster- oder Volmer-Weber (VW) Wachstum*

Hier ist der Film nur relativ schwach an das Substrat gebunden; die Freie Oberflächenenergie σ_{SD} zwischen Substrat und Dampf ist kleiner als die Summe ($\sigma_{FD} + \sigma_{FS}$) der Freien Oberflächenenergien von Film-Dampf und Film-Substrat. Die Energiebilanz der spezifischen Freien Oberflächenenergien ist positiv: $\Delta\sigma > 0$, so daß direkt dreidimensionale Nukleationskeime auf der Fläche gebildet werden. Dieser Wachstumsmodus wird bei heteroepitaktischen Systemen beobachtet, bei denen die Wechselwirkung in der wachsenden Schicht stärker als die zwischen der Schicht und dem Substrat ist.

Die thermodynamische Behandlung des Wachstums war in der Vergangenheit sehr erfolgreich bei der Klassifizierung der einzelnen Wachstumsformen und der Aufklärung der Gründe für deren Auftreten bei den verschiedensten Systemen. So ist es heute gut verstanden, daß die drei Wachstumstypen, in Analogie zu dem wohlbekannten „Tröpfchenmodell“ bei Flüssigkeiten /147.,152./, mit drei Arten der Benetzung, nämlich Nichtbenetzung (VW), sowie vollständiger (FM) und unvollständiger Benetzung (SK) der Oberfläche verknüpft sind /153.,154./. Die Gründe für das Auftreten dieser unterschiedlichen Benetzungsarten werden allgemein der Substrat-induzierten Spannung („strain“) in der wachsenden Schicht zugeschrieben /155.,156./.

Neben der thermodynamischen Beschreibung des Kristallwachstums entwickelte sich Ende der 20er Jahre eine alternative Betrachtungsweise, welche die atomaren Vorgänge während des Wachstums von Schichten in den Vordergrund stellt („atomistisches Modell“). In diesem Modell, das auf den Arbeiten von Kossel, Stranski und Volmer /1.-7./ sowie auf Burton, Cabrera und Frank /138./ basiert, wird das Wachstum als ein Zusammenspiel atomarer Elementarprozesse betrachtet, wo-

bei jeder individuellen Prozeß durch eine bestimmte Wahrscheinlichkeit, d.h. durch eine bestimmte Aktivierungsbarriere charakterisiert wird. Betrachten wir dies anhand von Abb. 25 auf Seite 63 genauer. Der linke Teil der Abbildung zeigt eine Oberfläche, auf der schematisch verschiedene Atompositionen dargestellt sind. Jedes Atom kann mit einer bestimmten Wahrscheinlichkeit zu anderen Gitterplätzen wechseln. Diese wird durch die Bindungsverhältnisse auf der Fläche bestimmt, so daß Diffusionsprozesse aus schwach gebundenen Positionen bevorzugt auftreten. Der Sprung von Adatomen über Stufenkanten auf die nächst-höhere Terrasse findet daher nur mit sehr geringer Wahrscheinlichkeit statt. Aus diesem Grunde würde man bei der in Abb. 25 dargestellten Situation einen Netto-Massentransport von Adatomen auf Terrassen in höheren Niveaus zu tieferen Niveaus erwarten. Dieser entsteht durch eine Sequenz statistischer Einzelsprünge von Atomen zwischen Stufenplätzen oder auf die Terrassen bzw. durch Sprünge von Terrassenplätzen zu Stufen. Der rechte Teil von Abb. 25 zeigt schematisch den Verlauf der potentiellen Energie für diesen Vorgang. Dabei wurde in erster Näherung angenommen, daß die Bindungsenergie eines Atoms proportional zur Zahl Nächster-Nachbar Bindungen ist. Wie aus der Figur ersichtlich wird, tritt die höchste Energiebarriere für die Diffusion von Kinkatomen über Kantenpositionen auf Terrassenplätze auf ($A \rightarrow B \rightarrow C$), weshalb dieses Modell oft auch als TLK-Modell (Terrace-Ledge-Kink) /157.-159./ bezeichnet wird. Mit diesem Modell war es möglich, die thermodynamischen Kriterien (chemisches Potential, innere Energie, Oberflächenspannung) für das Wachstum eines Kristalls unter Gleichgewichtsbedin-

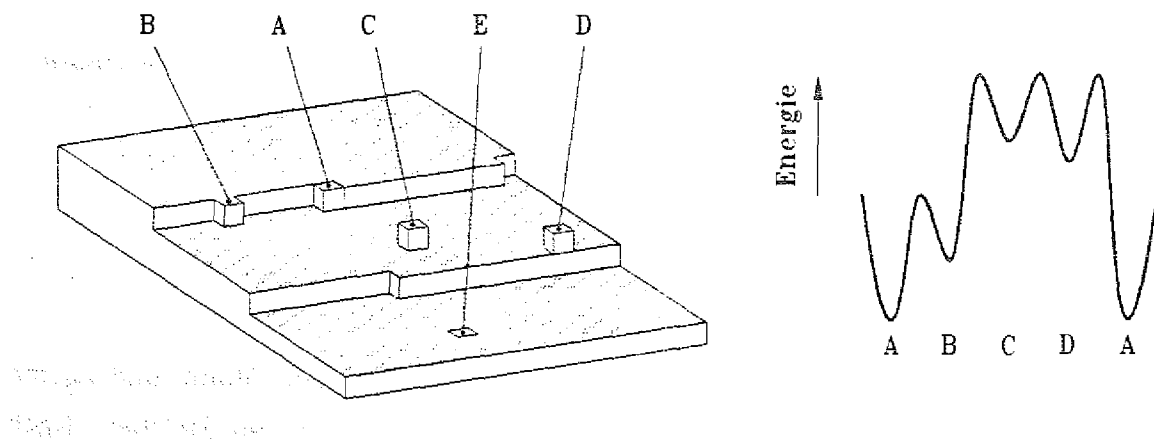


Abb. 25. Das TLK-Modell einer gestuften Oberfläche: Im linken Teil der Abbildung sind die unterschiedlichen Atompositionen definiert: A: Kinkatom, B: Kantenatom, C: freies Adatom, D: Kantenatom und E: Fehlstelle. Der rechte Teil der Abbildung zeigt schematisch die potentiellen Energien für Adatome, die Diffusionsprozesse zwischen den mit A-D gekennzeichneten Gitterplätzen ausführen.

gungen in atomistischen Größen (Aktivierungsenergien) auszudrücken und die Ursachen der drei Wachstumsmodi auch auf atomarer Skala zu verstehen. Der wesentliche Vorteil des atomistischen Modells gegenüber der Kontinuumsstheorie ist jedoch die Möglichkeit, auch die Kinetik der auf der Fläche ablaufenden Prozesse berücksichtigen zu können. Dies ermöglicht auch dann eine Beschreibung des Wachstums, wenn die Näherung des thermodynamischen Gleichgewichtes nicht mehr gültig ist.

Auf einer Oberfläche, die sich im thermodynamischen Gleichgewicht befindet, treten alle Prozesse in beiden Richtungen mit gleichen Raten auf („Detailliertes Gleichgewicht“). Da die Oberfläche im Kontakt mit ihrer Gasphase steht, müssen auch insbesondere die Adsorptions- und Desorptionsrate von Adatomen gleich sein. Adatome desorbieren jedoch vorzugsweise von Terrassenplätzen, so daß eine bestimmte Konzentration n_0 isolierter Adatome auf den Terrassen vorliegen muß. Diese entstehen durch das Lösen von Atomen aus Kinkpositionen. Im Gleichgewichtsfall wird die Adatomkonzentration (2D-Sättigungsdampfdruck) durch die Oberflächentemperatur T_s , die Bindungsenergie E_k eines Adatoms in der Kinkposition (Halbkristallage) sowie durch die Adsorptionsenergie E_A eines isolierten Adatoms auf der Oberfläche bestimmt /138./. Frühere Messungen von Bindungsenergien auf der Pt(111)-Fläche ergaben eine Sublimationsenergie von $E_k = 5.85$ eV/Atom /160./ und eine Adsorptionsenergie von $E_A = 3.66$ eV/Atom /104./. Das bedeutet einerseits, daß die Adatomkonzentration im thermischen Gleichgewicht sehr klein ist ($n_0 \approx 10^4$ cm⁻² bei $T_s = 1000$ K). Andererseits ist die Desorptionswahrscheinlichkeit der Adatome bei Probertemperaturen von $T_s \lesssim 1000$ K sehr klein, so daß die Adsorption von Atomen aus der Gasphase einen praktisch irreversiblen Prozeß darstellt /161./.

Diese Betrachtungen machen deutlich, daß die Adatomübersättigung η der Oberfläche als Maß für die Abweichung vom thermodynamischen Gleichgewicht während eines Wachstumsexperimentes eingeführt werden kann /162./:

$$\eta = \frac{J_{in}}{J_{eq}} - 1 \quad [4.3]$$

J_{in} bezeichnet die Flußdichte der auf die Oberfläche treffenden Atome und J_{eq} die Flußdichte der unter Gleichgewichtsbedingungen desorbierenden Teilchen. Nach dieser Beziehung gilt das detaillierte Gleichgewicht nur für $\eta \approx 0$. In diesem Falle kann man jedoch eigentlich nicht von „Wachstum“ reden, da der Kristall im Gleichgewicht mit seiner Gasphase steht ($J_{in} = J_{eq}$) und man keinen Massenzuwachs des Kristalls erhalten kann. Diese Situation trifft sicherlich nicht bei den hier diskutierten Wachs-

tumsexperimenten zu. Bei Oberflächentemperaturen von $T_s \lesssim 1000$ K und typischen Depositionsraten von $R \gtrsim 10^{-2}$ ML/min ergeben sich Übersättigungen, die um mindestens neun Größenordnungen vom thermodynamischen Gleichgewicht entfernt sind. Obwohl auch hier einzelne Prozesse im lokalen thermodynamischen Gleichgewicht ablaufen können /163./, wird das Wachstum nahezu vollkommen durch die Kinetik der auf der Fläche ablaufenden Diffusions- und Ausheilmechanismen bestimmt. Gleichgewichtsbetrachtungen sind daher kaum geeignet, Aufschlüsse über das Wachstum bei den hier untersuchten Bedingungen zu liefern und sind für den weiteren Verlauf der Diskussion nur von untergeordneter Bedeutung.

Ein recht eindrucksvolles Beispiel hierfür ist das Wachstum homoepitaktischer Systeme. Die Gleichgewichtsbetrachtung fordert, daß der Kristall ausschließlich ein FM-Wachstum aufweist /149./. Bei verschwindenden Übersättigungen ($\eta \simeq 0$) ist die Nukleationswahrscheinlichkeit auf der Oberfläche vernachlässigbar klein. Die deponierten Adatome werden sich daher mit großer Wahrscheinlichkeit an eine der auf einer realen Fläche immer vorhandenen Stufenkanten anlagern, so daß ein Wachstum durch Stufenwanderung („step propagation“) /12.,164.,165./ entsteht. Erhöht man jedoch die Übersättigung η (z.B. durch Erniedrigung der Oberflächentemperatur), so steigt auch die Wahrscheinlichkeit zur Bildung von Nukleationszentren auf den Terrassen (Homonukleation). Bei hohen Oberflächentemperaturen entsteht ein Schicht-für-Schicht Wachstum, bei dem bis kurz vor Vollendung einer vollständigen Monoschicht nur eine einzige Lage wächst (2D-Wachstum). Bei tieferen Oberflächentemperaturen wird das Wachstum dreidimensionaler Strukturen beobachtet /z.B. 10.,13.,26.,166./. Dieser Wachstumsmodus, der oft auch als Multilagen- oder 3D-Wachstum bezeichnet wird, ist durch die Entstehung und das Wachstum zweidimensionaler Keime in mehreren Niveaus gleichzeitig gekennzeichnet; es wachsen mehrere Schichten simultan. Ähnliche Beobachtungen wurden übrigens auch bei heteroepitaktischen Systemen gemacht: das Wachstum wird weitgehend durch kinetische Effekte bestimmt /z.B. 149.,167.-171./.

Da thermodynamische Überlegungen nur begrenzt anwendbar sind, nähert man sich einer mathematischen Beschreibung der Nukleation und des Wachstums von Schichten meist in Form von Ratengleichungen. Man erhält dann einen Satz gekoppelter Differentialgleichungen, in denen jeweils die Änderung der Konzentration von Adatomen, Dimeren, etc. als Funktion der Raten beschrieben wird, mit der die betrachteten Elementarprozesse auf der Oberfläche ablaufen. Die einzelnen Prozesse und deren gegenseitige Abhängigkeit können sehr komplex sein. Darüber hinaus

sind viele der wachstumsbestimmenden Parameter dem Experiment nicht zugänglich, so daß die Lösung derartiger Gleichungssysteme oftmals nicht oder nur mit erheblichen Näherungen möglich ist. Aus diesem Grunde wollen wir uns im weiteren Verlauf der Diskussion auf eine qualitative Beschreibung der während der Nukleation und des Wachstums von Schichten ablaufenden Prozesse beschränken. Für ausführliche Diskussionen sei auf die Arbeiten von Venables /172./, Zinsmeister /173./, Weeks et al. /167./ und Stoyanow /174.-177./ verwiesen.

In den nächsten beiden Abschnitten sollen die Prozesse näher betrachtet werden, die die Nukleation und das Wachstum von Schichten auf atomarer Skala bestimmen. Zunächst werden wir uns speziell mit den Frühstadien des Wachstums beschäftigen und die während der Nukleationsphase ablaufenden Prozesse qualitativ untersuchen. Der darauf folgende Abschnitt hat zum Ziel, die Ursachen zu diskutieren, die für die bei der Homoepitaxie auftretenden Wachstumsmodi (2D- bzw. 3D-Wachstum) verantwortlich sind.

4.2 Die ersten Stadien des Wachstums von Schichten

Das Wachstum beginnt durch die Akkommodation und Adsorption von Atomen aus der Gasphase. In dem hier betrachteten Temperaturintervall von $100 \text{ K} \lesssim T_s \lesssim 1000 \text{ K}$ sind die so entstandenen isolierten Adatome hochmobil⁴ und können über die Oberfläche migrieren. Deren „Beweglichkeit“ wird durch den Diffusionskoeffizienten D charakterisiert:

$$D = D_0 \cdot e^{-\frac{E_D}{kT_s}} \quad [4.4]$$

D_0 bezeichnet hierbei einen Prä-Exponentialfaktor, E_D die Aktivierungsenergie für Diffusion, k die Boltzmann-Konstante und T_s die Oberflächentemperatur. Obwohl schon zu Beginn des Wachstums eine gegenüber der Gleichgewichtskonzentration erheblich größere Adatomdichte vorliegt, ist die Wahrscheinlichkeit, daß sich zwei Adatome treffen und ein Dimer bilden, vernachlässigbar klein. Das erste Stadium des Wachstums ist also durch eine Situation gekennzeichnet, in der auf den Terrassen

⁴ Adatome auf der Pt(111)-Fläche sind bei einer Oberflächentemperatur von $T_s \approx 77 \text{ K}$ mobil /104./

ein hochgradig übersättigtes zweidimensionales „Gittergas“ von Adatomen vorliegt. Die Adatomkonzentration steigt linear mit der Depositionszeit an.

Die Nukleation beginnt, wenn die Adatomkonzentration auf den Terrassen so groß wird, daß die über die Fläche migrierenden isolierten Adatome aufeinandertreffen und Cluster bilden können. Die Anlagerung eines Adatoms an ein anderes bzw. an einen vorhandenen Cluster aus i Atomen (i -Cluster) führt zu einer Änderung der Freien Enthalpie, die von der Keimgröße und -Form, der Sublimationsenthalpie E_k , der Übersättigung und im allgemeinen auch von der Oberflächentemperatur abhängig ist. Die Änderung der Freien Enthalpie weist bei nicht verschwindenden Adatomübersättigungen einen Maximalwert bei einer bestimmten Clustergröße i^* auf (für Details siehe z.B. /149./): sowohl die Anlagerung als auch das Lösen eines Adatoms an bzw. von einem i^* -Cluster hat eine kleinere Freie Enthalpie zur Folge. Aus diesem Grunde wird i^* auch als kritische Clustergröße bezeichnet. Zu Beginn des Wachstums bildet sich zunächst eine Population unterkritischer Cluster ($i < i^*$). Diese sind jedoch nicht stabil und zerfallen wieder. Mit fortschreitender Deposition steigt die Adatomkonzentration auf der Oberfläche weiter an, so daß größere Cluster gebildet werden können. Ab der kritischen Clustergröße i^* wird die Wahrscheinlichkeit für den Zerfall der Cluster so klein, daß die Wachstumsrate gegenüber der Zerfallsrate überwiegt. Alle größeren Cluster ($x \geq i^* + 1$) sind dann „stabil“ und bilden einen Nukleationskeim. Sind einmal stabile Keime entstanden, so wachsen sie sehr schnell, da alle Adatome an Kanten- bzw. Kinkpositionen der Keimränder angelagert werden /178./. Dies führt jedoch zu einem starken Absinken der Adatomkonzentration auf den Terrassen und somit auch der Wahrscheinlichkeit zur Bildung neuer Nukleationszentren /179./. Die weitere Deposition von Adatomen hat daher nur das (zweidimensionale) Wachstum der bereits vorhandenen Keime zur Folge.

Die Längenskala auf der Oberfläche, auf der diese Prozesse ablaufen, wird durch die Einstein-Relation bestimmt /180.,181./:

$$\begin{aligned} s &= \sqrt{N_0 l^2} \\ &= \sqrt{4D\tau} \end{aligned} \quad [4.5]$$

N_0 bezeichnet die Zahl unkorrelierter Sprünge von isolierten Adatomen auf der Fläche, l den minimalen Abstand zweier Adsorptionsplätze („hopping-distance“), D den Diffusionskoeffizienten und τ ein typisches Zeitintervall. Wir werden die Größe s im weiteren Verlauf der Diskussion als „Diffusionslänge“ bezeichnen. Sie kann expe-

rimentell durch die Oberflächentemperatur T_s und die Depositionsrates R beeinflusst werden. Die Erhöhung der Oberflächentemperatur hat eine größere Diffusionslänge zur Folge, da die Adatome aufgrund ihrer erhöhten Mobilität (siehe Gl. 4.4) in gleichen Zeitintervallen längere Wege zurücklegen können. Da andererseits die Zeitkonstante τ proportional zu $1/R$ ist, führt eine Erniedrigung der Depositionsrates zu dem gleichen Verhalten: die Adatome haben „mehr Zeit“, um eine bestimmte Entfernung zurückzulegen. Man kann sich leicht vorstellen, daß die Dichte der auf der Fläche entstehenden Nukleationszentren durch die Diffusionslänge der Adatome bestimmt wird, da hierdurch der Bereich um einen Keim festgelegt wird, in dem die Adatome einen Keimrand erreichen können. Sowohl die Erhöhung der Oberflächentemperatur als auch die Erniedrigung der Depositionsrates führt also zu kleineren Nukleationsdichten auf der Fläche /177./ und somit zu der Entstehung von Strukturen größerer lateraler Dimensionen /30.,182.-184./.

4.3 Die Wachstumsmodi homoepitaktischer Systeme

Im letzten Abschnitt wurden die Frühstadien des Wachstums untersucht und die für die Entstehung stabiler Nukleationszentren maßgeblichen Prozesse diskutiert. Wir haben uns jedoch auf den Grenzfall sehr kleiner Bedeckungen beschränkt, da angenommen wurde, daß die aus der Gasphase auftreffenden Atome nur auf dem unbedeckten Teil der Oberfläche adsorbieren. Diese Betrachtung war offensichtlich unvollständig, da sich eine Variation der Wachstumsparameter R und T_s nur auf die Keimdichte, nicht jedoch auf die im Experiment beobachtete Ausbildung qualitativ unterschiedlicher Wachstumsmodi auswirkte. Um ein vollständiges Bild zu erhalten, ist es notwendig, auch die Ausheilmechanismen von Strukturen zu betrachten, die auf bereits bestehenden Keimen entstehen.

Bei einer (zunächst als ideal angenommenen) Oberfläche, auf der bereits stabile Keime vorhanden sind, können die aus der Gasphase adsorbierenden Atome entweder auf dem unbedeckten Teil der Oberfläche oder direkt auf einem Keim auftreffen. Atome, die auf dem unbedeckten Teil der Oberfläche auftreffen, können zu einem Keim migrieren, der sich auf der gleichen Terrasse gebildet hat und werden an den aufsteigenden Stufenkanten der Keimränder angelagert /178./. Wie bereits erwähnt wurde, ist dieser Prozeß maßgeblich für das zweidimensionale Wachstum der Keime direkt nach deren Entstehung verantwortlich /150./. Proportional zur Fläche des durch die wachsenden Inseln bedeckten Teils der Oberfläche wird jedoch auch die Wahrscheinlichkeit größer, daß ein Atom direkt auf einer bereits gebildeten Insel auftrifft.

Maßgeblich für das weitere Wachstum, also für den Wachstumsmodus, ist die Frage, ob die Adatome in höheren Schichten, die von oben auf einen Keimrand treffen, ebenfalls an den Stufenkanten angelagert werden. Es sei betont, daß hierzu ein anderer Prozeß notwendig ist als im ersten Fall. Adatome, die von unten auf einen Keimrand treffen, führen vor ihrer Anlagerung an den aufsteigenden Stufenkanten lediglich Diffusionsschritte *innerhalb* eines Niveaus durch. Im Gegensatz dazu können Adatome, die auf einem bereits bestehenden Keim adsorbieren und von oben auf einen Keimrand (d.h. eine absteigende Stufe) treffen, nur dann an diesem angelagert werden, wenn vorher ein Sprung über die Stufenkante auf die darunter liegende Terrasse erfolgte. Ist die Wahrscheinlichkeit für Adatome, über eine Stufe auf die tiefere Terrasse zu springen, nicht kleiner als die Diffusionswahrscheinlichkeit auf der Insel selbst, so werden alle von oben auf eine Stufenkante treffenden Adatome an den Inselrändern angelagert. Innerhalb des „Einzugsbereiches“ für Adatome um eine Stufenkante, die durch die Diffusionslänge s bestimmt wird, bleibt daher die Adatomkonzentration auf den bestehenden Inseln zu gering, als daß neue Keime entstehen könnten. Im Idealfall einer unendlichen Diffusionslänge der Adatome beobachtet man nur das zweidimensionale Wachstum einer einzigen Schicht: Nukleationszentren in neuen Lagen entstehen erst, wenn die darunter liegende Schicht vollkommen geschlossen ist. Dieser Wachstumsmodus wird im weiteren als ideales

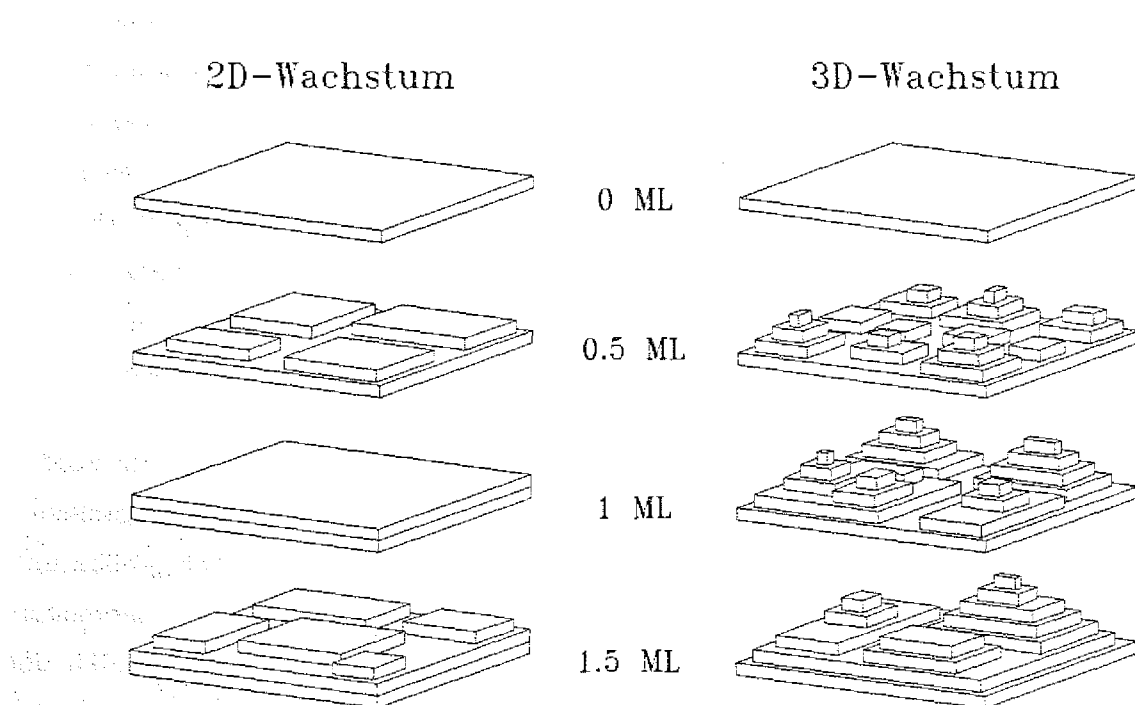


Abb. 26. Die Oberflächenmorphologie während eines idealen 2D- und 3D-Wachstums von Schichten

Schicht-für-Schicht- oder **2D-Wachstum** bezeichnet und ist im linken Teil von Abb. 26 schematisch dargestellt. Der rechte Teil der Abbildung zeigt schematisch den anderen Extremfall. Dieser ist dadurch gekennzeichnet, daß der Sprung der Adatome über absteigende Stufenkanten auf tiefere Terrassen mit verschwindender Wahrscheinlichkeit stattfindet. Dann bleiben die Adatome auf der Insel „gefangen“; es wird sich eine kritische Adatomkonzentration auf dem Keim aufbauen, die zum Entstehen neuer Nukleationszentren in höheren Schichten führt. Dieser Wachstumsmodus ist durch das simultane Wachstum mehrerer zweidimensionaler Schichten charakterisiert und wird im weiteren als Multilagen- oder **3D-Wachstum** bezeichnet werden.

4.4 He-Streuung und Wachstumsmodi einer realen Fläche

Nach der Definition der bei extremen Übersättigungen auftretenden Wachstumsmodi homoepitaktischer Systeme stellt sich die Frage, wie sich diese mit Hilfe der He-Streuung unterscheiden lassen. Wie im Kapitel „Die Untersuchung der Struktur von Oberflächen mittels He-Streuung“ auf Seite 5 ausführlich erläutert wurde, liefert die He-Streuung unter In- und Anti-Phase Bedingungen komplementäre Informationen über die Struktur der Oberfläche. Die Beobachtung der In-Phase Peakhöhe spiegelt die Entwicklung der Stufendichte auf der Oberfläche wieder, da die normierte Höhe des gespiegelten In-Phase Peaks ausschließlich durch die diffuse Streuung an den Inselrändern bestimmt wird. Aufschlüsse über die Zahl der simultan wachsenden Schichten können durch die Beobachtung der Höhe des gespiegelten Anti-Phase Peaks erhalten werden. Obwohl quantitative Aussagen über die Terrassenbreiteverteilung und die Verteilung sichtbarer Terrassen in unterschiedlichen Niveaus nur durch eine detaillierte Analyse der Form des gespiegelten Anti-Phase Peaks gewonnen werden können, lassen sich doch durch einfache Modelle qualitative Merkmale des Einflusses eines bestimmten Wachstumsmodus auf das Verhalten der beobachteten He-Reflektivität angeben. Diese sollen im folgenden diskutiert werden.

Im letzten Abschnitt wurde das ideale 2D-Wachstum einer Fläche durch die Forderung definiert, daß immer nur eine einzige Lage wächst. Wie bereits angedeutet wurde, kann ideales 2D-Wachstum nur auf einer idealen, d.h. unendlich großen und absolut defektfreien Oberfläche entstehen. Darüber hinaus muß die Adatomübersättigung η praktisch verschwinden, so daß die Diffusionslänge der Adatome, d.h. der Einzugsbereich für Adatome um eine Stufenkante, beliebig groß wird. Man kann sich leicht vorstellen, daß sich keine der beiden Bedingungen in einem realen Experiment erfüllen läßt: zum einen weist jede reale Oberfläche einen bestimmten Anteil von

Stufenkanten auf und zum anderen ist es kaum möglich, die Wachstumsbedingungen so einzustellen, daß beliebig große Diffusionslängen auftreten. Aus diesen Grund kann in einem realen Experiment kein ideales 2D-Wachstum erzeugt werden.

Dennoch führt gerade die Existenz von Stufenkanten auf der „perfekt“ präparierten realen Fläche unter bestimmten Bedingungen zu einem Wachstumsmodus, der dem idealen 2D-Wachstum sehr nahe kommt: das Wachstum durch Stufenwanderung. Diese Stufenkanten begrenzen die Diffusionslänge, da Adatome, die zu einer Stufenkante diffundieren, an dieser angelagert werden. Dies wurde bereits in den letzten Abschnitten diskutiert. Bei genügend hoher Oberflächentemperatur (bzw. genügend niedriger Depositionsrate) wird die Diffusionslänge der Adatome so groß, daß alle Adatome mit hoher Wahrscheinlichkeit die vor Beginn des Experimentes auf der Fläche vorhandenen Stufen erreichen und an ihnen angelagert werden können. In diesem Fall werden praktisch keine neuen Nukleationszentren gebildet; die Fläche wächst ausschließlich durch das Fortschreiten der ursprünglich vorhandenen Stufen. Dieser Wachstumsmodus zeigt bezüglich der He-Streuung ein sehr einfaches Verhalten: da sich während des Wachstums weder die Stufendichte der Oberfläche, noch die Verteilung der sichtbaren Terrassen ändert, bleibt die Reflektivität der Oberfläche für He-Atome im gesamten Bedeckungsbereich sowohl für In-Phase- als auch für Anti-Phase Bedingungen konstant: $I/I_0 = 1$.

Wählt man die Wachstumsbedingungen so, daß die Diffusionslänge der Adatome kleiner als der mittlere Abstand der ursprünglich auf der Fläche vorhandenen Stufenkanten ist (z.B. durch die Erniedrigung der Oberflächentemperatur), so können sich auf den Terrassen neue Nukleationszentren bilden. Bei hohen Oberflächentemperaturen entsteht ein 2D-Wachstum, welches wegen der endlichen Diffusionslänge der Adatome Abweichungen vom idealen Fall aufweist: nahe der Vollendung einer vollständigen Monoschicht können neue Nukleationszentren auf bereits bestehenden Inseln entstehen, bevor die darunter liegende Schicht vollkommen geschlossen ist. Im folgenden soll dieser im realen Experiment auftretende Fall als „quasi-ideales 2D-Wachstum“ bezeichnet werden.

Um zu untersuchen, wie sich die He-Reflektivität der Oberfläche während des quasi-idealsten 2D-Wachstums entwickelt, sei vereinfachend zunächst eine Situation betrachtet, bei der im gesamten Bedeckungsbereich ($0 \leq \theta \leq 1$) nur eine einzige Schicht wächst. In diesem Fall nimmt der Flächenanteil $x_1 = A_1(\theta)/A_0(0)$ der wachsenden Lage linear mit der Zahl deponierter Monolagen zu: $x_1 = \theta$. In gleichem Maße nimmt der

Flächenanteil x_0 des unbedeckten Teils der Oberfläche ab: $x_0 = 1 - \theta$. Betrachtet man nur den spekularen Deltapeak (siehe Abschnitt „Die Verteilung sichtbarer Terrassen auf unterschiedlichen Niveaus“ auf Seite 19), so variiert dessen Höhe $(I/I_0)_D$ unter Anti-Phase Bedingungen und Vernachlässigung diffuser Streuung an den Stufenkanten mit Gl. 2.12 wie [26.,34.]:

$$\left(\frac{I}{I_0}\right)_D = (x_0 - x_1)^2 = (1 - 2\theta)^2, \quad [4.6]$$

wenn man ein ideales Instrument voraussetzt. Als Ergebnis erhält man eine parabolische Variation der Höhe des Deltapeaks als Funktion der Bedeckung. Nach der Deposition einer halben Monoschicht ($\theta = 0.5$) sind die Flächenanteile beider aufgedeckter Schichten gleich groß, so daß sich vollständige destruktive Interferenz einstellt und der Deltapeak verschwindet. Bei $\theta = 1$ ist die Ausgangssituation wiederhergestellt, da die erste Schicht vollkommen geschlossen ist. Hier trägt wieder nur eine einzige Schicht zur Streuung bei, so daß sich die gleiche Reflektivität wie zu Beginn des Experimentes ergibt: $(I/I_0)_D = 1$. Dieser Vorgang wiederholt sich periodisch, so daß ungedämpfte Oszillationen entstehen, wie sie in Abb. 27 skizziert ist. Da jedoch das tatsächlich auftretende 2D-Wachstum nicht, wie zunächst angenommen, ideal ist, treten Abweichungen von dem nach Gl. 4.6 erwarteten Kurvenverlauf auf. Die nach der Deposition einer vollständigen Monoschicht vorliegenden Adatominseln in höheren Niveaus bzw. verbleibenden Fehlstelleninseln führen zu zusätzlichen Beiträgen zur destruktiven Interferenz und somit zu einer reduzierten Peakhöhe in den Maxima der Oszillationen. Ungeachtet dieser Abweichungen ist das Entstehen zeitlicher Oszillationen der He-Reflektivität während der Deposition typisch

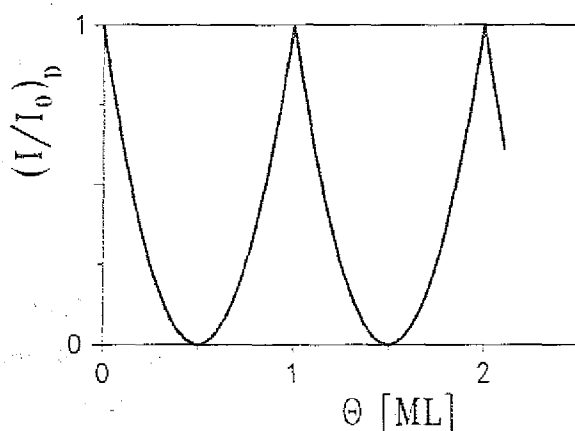


Abb. 27. Die Anti-Phase Peakhöhe während eines idealen 2D-Wachstums von Schichten

für ein 2D-Wachstum, d.h. für einen massiven Massentransport zwischen Schichten /10.,14.,26.,34./.

Betrachten wir abschließend den Fall eines idealen 3D-Wachstums. Hierbei wird der Sprung von Adatomen über Stufenkanten auf tiefere Terrassen vollkommen unterdrückt: die Adatome können die Terrasse, auf der sie adsorbiert wurden, nicht verlassen. Ausheilung kann demnach ausschließlich **innerhalb** der Schichten stattfinden. Die Änderung des Flächenanteils $x_{\ell+1}$ der $(\ell+1)$ -ten Lage mit der Bedeckung θ wird durch zwei Beiträge bestimmt. Zum einen ist die Wahrscheinlichkeit, daß ein Atom in der $(\ell+1)$ -ten Lage adsorbiert, proportional zu dem Flächenanteil der darunterliegenden ℓ -ten Lage. Da das gleiche jedoch genauso für die Adsorption von Atomen in der $(\ell+2)$ -ten Lage gilt, nimmt die Sichtbarkeit der $(\ell+1)$ -ten Schicht proportional mit deren Flächenanteil $x_{\ell+1}$ ab. Es gilt also:

$$\frac{dx_{\ell+1}}{d\theta} = x_{\ell} - x_{\ell+1} \quad [4.7]$$

Betrachtet man die sichtbaren Terrassen in allen möglichen Niveaus ($\ell \in \mathbb{N}^+$), so erhält man ein System gekoppelter Differentialgleichungen, dessen Lösung

$$x_{\ell} = \frac{\theta^{\ell}}{\ell!} \cdot e^{-\theta} \quad [4.8]$$

eine Poissonverteilung der Flächenanteile sichtbarer Terrassen in unterschiedlichen Niveaus ergibt /32.,34./. Die Entwicklung der Höhe des Deltapeaks unter Anti-Phase Bedingungen als Funktion der Zahl deponierter Monoschichten kann für ein ideales Instrument durch Einsetzen dieser Beziehung in Gl. 2.12 berechnet werden:

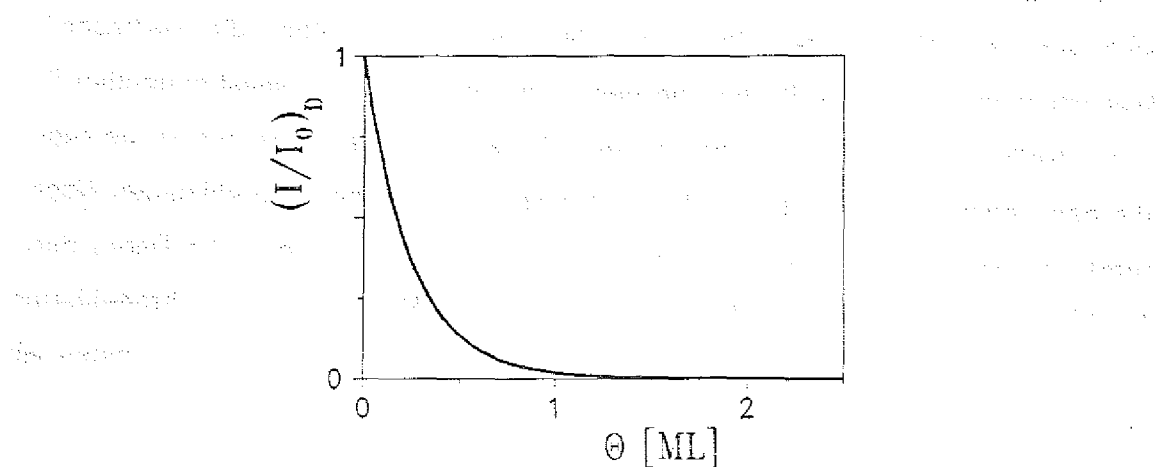


Abb. 28. Die Anti-Phase Peakhöhe während eines idealen 3D-Wachstums von Schichten

$$\left(\frac{1}{I_0}\right)_D = \left[\sum_{\ell=0}^{\infty} (-1)^\ell x_\ell \right]^2 = \left[\sum_{\ell=0}^{\infty} \frac{(-\theta)^\ell}{\ell!} \cdot e^{-\theta} \right]^2. \quad [4.9]$$

Hierbei wurde die diffuse Streuung an Stufenkanten vernachlässigt und eine im Prinzip beliebig große Zahl sichtbarer Niveaus angenommen. Als Ergebnis der Summation erhält man schließlich:

$$\left(\frac{1}{I_0}\right)_D = e^{-4\theta} \quad [4.10]$$

Der für diesen Fall erwartete Kurvenverlauf ist in Abb. 28 auf Seite 73 skizziert. Bei einem idealen 3D-Wachstum beobachtet man also einen exponentiellen Abfall der Anti-Phase Peakhöhe mit der Anfangssteigung -4, der aus der destruktiven Interferenz von Streubeiträgen der simultan wachsenden Schichten resultiert. Es sei übrigens vermerkt, daß dieser Kurvenverlauf in erster Näherung auch dann erwartet wird, wenn die diffuse Streuung berücksichtigt wird. Nimmt man nämlich an, daß das diffus streuende Band symmetrisch zu den Stufenkanten liegt, so trägt die diffuse Streuung in einem einfachen eindimensionalen Modell nicht zur gespiegelten Anti-Phase Peakhöhe bei.

Mit Hilfe dieser sehr einfachen Diffusionsmodelle ergeben sich also qualitativ unterschiedliche Oberflächenmorphologien während des Wachstums, die sich signifikant in der Entwicklung der Höhe des gespiegelten Peaks niederschlagen. Somit lassen sich aus dem Verlauf der He-Reflektivität Rückschlüsse über die vorliegenden Wachstumsmodi der Oberfläche und damit über die wachstumsbestimmenden Prozesse treffen. Um jedoch zu einem tieferen Verständnis der Ursachen zu gelangen, die beispielsweise für die beobachteten Übergänge zwischen den einzelnen Wachstumsmodi verantwortlich sind, ist es notwendig, die experimentellen Daten durch Modelle zu beschreiben. Ein hierfür gut geeignetes Verfahren ist die Modellierung des Wachstums von Schichten mittels Monte-Carlo Simulationen. Im nächsten Abschnitt wird dies näher beleuchtet.

4.5 Die Modellierung des Wachstums von Schichten durch Monte-Carlo Simulationen

Die Simulation kinetischer Prozesse mittels Monte-Carlo Methoden hat in der letzten Zeit eine große Bedeutung erlangt. Dies liegt nicht zuletzt an der stark gestiegenen Rechenkapazität der verwendeten Computer, wodurch die Betrachtung immer größerer Oberflächen ermöglicht wird. Obwohl die beschränkte Feldgröße auch heute noch den wesentlichen Nachteil dieser Methode bildet, hat die Simulation des Wachstums von Schichten gegenüber analytischen Verfahren viele Vorteile. Insbesondere bei extremen Übersättigungen ist eine exakte analytische Behandlung der Kinetik der auf der Fläche ablaufenden Prozesse aufgrund deren außerordentlicher Komplexität kaum möglich. Im Gegensatz dazu bieten Monte-Carlo Simulationen die Möglichkeit, die gegenseitige Abhängigkeit der möglichen Elementarprozesse auf atomarer Skala zu studieren. Durch einen Vergleich mit den experimentellen Ergebnissen ist man dann in der Lage, die für das Wachstum von Schichten maßgeblichen Diffusions- und Ausheilmechanismen zu identifizieren und die entsprechenden Wachstumsmodelle zu verifizieren. In diesem Abschnitt soll speziell ein Monte-Carlo Programm angeführt werden, welches parallel zu den im folgenden Kapitel erläuterten Experimenten zum Wachstum einer Pt(111)-Fläche entwickelt wurde. Da dessen detaillierte Beschreibung bereits in /185./ erfolgte, wollen wir uns lediglich auf eine Diskussion der wesentlichen Konzepte und Charakteristika beschränken.

Zur Simulation des Wachstums wurde ein Gitter von typischerweise 50x50 Atomen betrachtet, welches am Rand periodisch fortgesetzt wurde. Die Atome wurde nacheinander im Zeitintervall Δt auf einem zufällig gewählten Gitterplatz positioniert. Zur Vermeidung von Fehlstellen im Kristallinneren und unrealistischen Schwebezuständen (z.B. auf Stufenkanten) wurden bei der Adsorption und Diffusion der Adatome nur Gitterplätze erlaubt, die der SOS-Bedingung (Solid-On-Solid) genügen /167., 186.-189./. Hierbei geht man davon aus, daß die Adatome auf einem bestimmten Gitterplatz nur dann eine endliche Aufenthaltswahrscheinlichkeit haben, wenn sie durch eine Mindestzahl nächster Nachbarn an das Substrat gebunden sind. Ist diese Voraussetzung (im Falle der hier betrachteten fcc(111)-Fläche mindestens drei nächste Nachbarn) nicht erfüllt, so relaxieren die Adatome sofort in stabile Positionen. Jedem neu angekommenen Atom wurde eine bestimmte Zahl N_T von Sprüngen in zufällig gewählte Richtungen erlaubt, damit selbst bei völliger thermischer Immobilität der mögliche Einfluß erhöhter Beweglichkeit während der Akkommodation der Adatome

/12./ untersucht werden kann (siehe auch Abschnitt „Der Einfluß von Akkommodationssprüngen der Adatome auf das 2D-Wachstum“ auf Seite 124). Um die thermische Mobilität der bereits akkommodierten Adatome zu simulieren, konnten im Zeitintervall Δt zwischen der Adsorption zweier Atome alle anderen sichtbaren Atome N_b Sprungversuche in willkürlich gewählte Richtungen ausführen. Die Bestimmung der Wahrscheinlichkeit eines Adatoms, sich aus einer gegebenen Konfiguration auf der Oberfläche zu lösen, wurde auf der Basis der schon im Abschnitt „Wachstumsmodelle: Thermodynamik und Kinetik“ auf Seite 60 angesprochenen Atompositionen des TLK-Modells vorgenommen. Zur Simulation von Diffusionsprozessen wurde ein einfaches Paarpotential-Modell verwendet und zur Vereinfachung nur Nächste-Nachbar Wechselwirkungen berücksichtigt. Die Wahrscheinlichkeit $(P_B)^{\Delta n}$ für einen Diffusionsschritt, bei dem effektiv Δn Nächste-Nachbar Bindungen gebrochen werden, läßt sich dann durch die folgende Beziehung bestimmen:

$$(P_B)^{\Delta n} = e^{-\Delta n \frac{E_B}{kT_s}} \quad [4.11]$$

E_B bezeichnet die Aktivierungsbarriere für das Brechen einer Bindung, k die Boltzmann-Konstante und T_s die Oberflächentemperatur. Ein Diffusionsversuch ist immer erfolgreich, wenn $\Delta n \leq 0$ ist, d.h. wenn die Zahl der Bindungspartner in der neuen Position des diffundierenden Atoms größer wird oder konstant bleibt. Die Migration von Adatomen über die Oberfläche ist also mit der Wahrscheinlichkeit Eins möglich. Aufgrund dieser Vereinfachungen kann nicht erwartet werden, quantitativ richtige Resultate zu erhalten. Ein Vergleich zwischen den Simulationsergebnissen und dem Experiment hat daher nur qualitativen Charakter.

Als Simulationsergebnis erhält man eine „Momentaufnahme“ der Oberflächenstruktur bei einer bestimmten Bedeckung θ . Dieses Ergebnis ist für die Interpretation der Wachstumsprozesse zwar wichtig, vorerst jedoch für einen Vergleich zwischen Simulation und Experiment ungeeignet. Aus diesem Grund wurden die simulierten Strukturen in gestreute He-Intensitäten umgerechnet. Um die komplementären Informationen zu reproduzieren, die sich mit der He-Streuung unter unterschiedlichen Streubedingungen erhalten lassen, wurde aus den simulierten Oberflächenstrukturen sowohl die In-Phase als auch die Anti-Phase Peakhöhe berechnet. Dabei wurde lediglich der spekulare Deltapeak berücksichtigt; der Intensitätsbeitrag des inkohärenten Peaks unter Anti-Phase Bedingungen wurde vernachlässigt. Darüber hinaus wurde ein ideales Instrument und eine perfekt homogene Depositionsrate vorausgesetzt.

Unter In-Phase Bedingungen ist die Höhe des gespiegelten Peaks durch die Summe aller Streubeiträge in die gespiegelte Richtung bestimmt. Betrachtet man in der Simulation jeden Gitterplatz j im Niveau ℓ als Einheitszelle, die mit einem Beitrag $F_{\ell j}$ zur diffusen Streuung beiträgt, so läßt sich die normierte In-Phase Peakhöhe mit Hilfe von Gl. 2.10 folgendermaßen ermitteln:

$$\left(\frac{I}{I_0}\right)_{D,Sim}^{In} = \left[\sum_{\ell=0}^N \sum_{j=1}^M \frac{M_{\ell j} - F_{\ell j}}{M} \right]^2 \quad [4.12]$$

N bezeichnet hierbei die Zahl der sichtbaren Niveaus und M die Gesamtzahl der betrachteten Gitterplätze. $M_{\ell j}$ drückt aus, ob ein Atom am Gitterplatz j und im Niveau ℓ sichtbar ($M_{\ell j} = 1$) oder unsichtbar ($M_{\ell j} = 0$) ist. Analog wird auch die normierte Anti-Phase Peakhöhe unter Berücksichtigung der diffusen Streuung an Defekten errechnet (siehe Gl. 2.12):

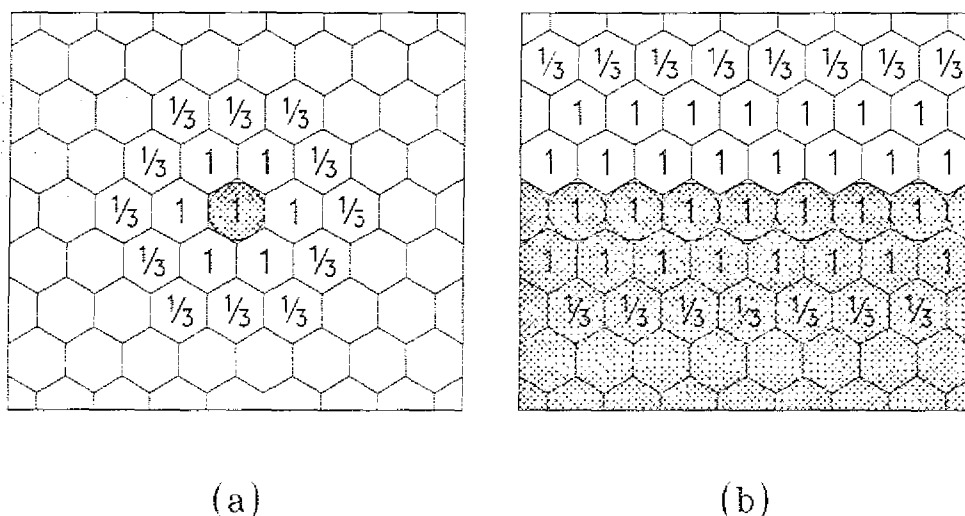


Abb. 29. Beispiele für simulierte geometrische Streuquerschnitte: Dargestellt sind die Einheitszellen, die in der Simulation jedem Gitterplatz zugeordnet sind. Die Zahlen in den Einheitszellen geben deren Beitrag $F_{\ell j}$ zur diffusen Streuung an (1=vollständig diffuser Streuer). In Figur (a) ist die Position eines Adatoms schraffiert dargestellt. Figur (b) zeigt die Konstruktion des diffus streuenden Bandes einer Stufenkante. Die Atome der höheren Lage sind schraffiert dargestellt (Nach N. Nagel /185./).

$$\left(\frac{I}{I_0}\right)_{D,Sim}^{Anti} = \left[\sum_{\ell=0}^N \sum_{j=1}^M (-1)^\ell \frac{M_{\ell j} - F_{\ell j}}{M} \right]^2 \quad [4.13]$$

Die diffusen Streubeiträge $F_{\ell j}$ der einzelnen Einheitszellen wurden in Abhängigkeit der Konfiguration der Defekte auf der Oberfläche bestimmt. Ohne auf Details einzugehen (es sei wiederum auf /185./ verwiesen), sollen nur kurz die wesentlichen Charakteristika bei der Berücksichtigung diffuser Streuung angegeben werden. Die Konstruktion der Streuquerschnitte basiert auf dem sogenannten Überlappungsmodell /34.,67./. Hierbei geht man davon aus, daß sich der Wirkungsquerschnitt für diffuse Streuung kleiner, vollständig diffus streuender Defektcluster aus der geometrischen Überlagerung der Streuquerschnitte der einzelnen Clusteratome ergibt. Mangels eines experimentell gesicherten Wertes wurde angenommen, daß der Streuquerschnitt eines isolierten Adatoms gleich zu dem einer Monofehlstelle ist ($\Sigma_F = 150 \text{ \AA}^2$) /190./. Wir werden im Abschnitt „Die Asymmetrie der In-Phase Oszillationen“ auf Seite 99 noch ausführlicher auf diesen Gesichtspunkt zurückkommen. Damit die konstruierten Streuquerschnitte symmetrisch zu Defekten (Fehlstellen, Adatome oder Stufenkanten) verlaufen, wurden den einzelnen Einheitszellen diffuse Streubeiträge von 0, 1/6, 1/3, 1 (vollständige diffuse Streuung) zugeordnet und für eine Anzahl auftretender Konfigurationen berechnet. In Abb. 29 auf Seite 77 ist dies am Beispiel eines isolierten Adatoms (a) bzw. einer Stufenkante (b) dargestellt. Man beachte, daß sich die gezeigten Streuquerschnitte auf die geometrischen Verhältnisse in der Simulation beziehen. Durch diese Konstruktion der diffusen Streubeiträge ist es möglich, die im Experiment beobachteten Streuquerschnitte zu reproduzieren. So ergibt sich beispielsweise für das Adatom in Figur (a) ein diffuser Streuquerschnitt von $\Sigma_A = 147 \text{ \AA}^2$; die Breite des diffus streuenden Bandes um die Stufenkante (Figur (b)) bestimmt sich zu $D = 11.2 \text{ \AA}$ /185./.

5.0 Die Struktur der Pt(111)-Fläche während ihres Wachstums

Das Studium des Wachstums einer Pt(111)-Fläche scheint auf den ersten Blick wenig interessant zu sein. Der Grund hierfür ist die große Zahl experimenteller und theoretischer Arbeiten, die sich gerade in den letzten Jahren sehr intensiv mit dieser Thematik beschäftigten /z.B. 9.-11.,191.-205./. Basierend auf dem durch diese Untersuchungen etablierten „traditionellen Bild“ vom homoepitaktischen Wachstum werden in Abhängigkeit der Adatomübersättigung η auf der Fläche drei unterschiedliche Wachstumsmodi erwartet. In der Nähe des thermodynamischen Gleichgewichtes ($\eta \approx 0$) entsteht ein Wachstum durch Stufenwanderung: die Fläche wächst ausschließlich durch die Inkorporation der Adatome in die vor Beginn des Experimentes vorhandenen Stufen. Erniedrigt man die Diffusionslänge der Adatome (z.B. durch eine Erniedrigung der Oberflächentemperatur), so hat die dadurch erhöhte Adatomübersättigung auf den Terrassen die Bildung von Nukleationskeimen zur Folge. Bei hohen Oberflächentemperaturen tritt ein 2D-Wachstum der Fläche auf, bei dem bis kurz vor Vollendung einer vollständigen Monolage jeweils nur eine einzige Schicht wächst (quasi-ideales 2D-Wachstum). Eine weitere Erniedrigung der Oberflächentemperatur führt zu der Entstehung dreidimensionaler Strukturen, d.h. zu dem simultanen Wachstum zweidimensionaler Keime in mehreren Schichten. Wie schon im Abschnitt „Die Wachstumsmodi homoepitaktischer Systeme“ auf Seite 68 erläutert wurde, wird dieser Wachstumsmodus oft auch als 3D- oder Multilagen-Wachstum bezeichnet. Im Rahmen des traditionellen Bildes werden die Gründe für diesen Wachstumsmodus der bei tiefen Temperaturen reduzierten Mobilität der Adatome zugeschrieben /10.,12.,19.,161.,162.,205./.

Neuere Untersuchungen des homoepitaktischen Wachstums einer Cu(100)-Fläche von Egelhoff und Jacob mittels RHEED warfen jedoch Zweifel nach der Gültigkeit dieses Bildes auf /12./. Im Gegensatz zu früheren Untersuchungen mittels He-Streuung, in denen bei diesem System bei Temperaturen unterhalb von $T_s \approx 227$ K auf ein 3D-Wachstum geschlossen wurde /10.,25./, beobachteten die Autoren noch bei sehr tiefen Oberflächentemperaturen ($T_s = 77$ K) ein Schicht-für-Schicht Wachstum. Sie erklärten ihre Beobachtungen im Rahmen des traditionellen Bildes, indem eine erhöhte Mobilität nicht akkommodierter Adatome postuliert wurde. Dies scheint zunächst plausibel zu sein, da die Atome, die mit einer Translationsenergie von typischerweise 0.2 eV auf die Oberfläche treffen, bei der Adsorption in Abhängigkeit von der Konfiguration zusätzlich die Kondensationsenergie von $\approx 3-6$ eV gewinnen

/164./ . Andererseits konnten Evans et al. auf der Basis von Monte-Carlo Simulationen zeigen, daß selbst bei vollständiger Immobilität der Adatome ein quasi-2D-Wachstum auftritt /206.-208./ . Die einzige Voraussetzung hierfür ist die Gültigkeit der SOS-Bedingung (siehe Abschnitt „Die Modellierung des Wachstums von Schichten durch Monte-Carlo Simulationen“ auf Seite 75), also die Vermeidung von Überhängen während der Adsorption der Atome. Dies belegt, daß einige Fragen nach den Ursachen für die bei homoepitaktischen Systemen auftretenden Wachstumsmodi weitgehend unbeantwortet sind.

In der vorliegenden Arbeit wurde das Wachstum einer Pt(111)-Fläche in einem weiten Depositionsraten- und Temperaturbereich mittels He-Streuung untersucht. Es wurden vier Temperaturbereiche beobachtet, die sich durch qualitativ unterschiedliche Wachstumsmodi auszeichnen: Stufenwanderung bei hohen Temperaturen ($T_s \gtrsim 850$ K), 2D-Wachstum ($460 \text{ K} \lesssim T_s \lesssim 800 \text{ K}$), 3D-Wachstum ($340 \text{ K} \lesssim T_s \lesssim 460 \text{ K}$) sowie überraschenderweise das Wiedereinsetzen eines 2D-Wachstums bei Temperaturen unterhalb $T_s \approx 340$ K. Dies ist in Abb. 30 auf Seite 81 anhand für die entsprechenden Temperaturbereiche typischer zeitlicher Entwicklungen der gespiegelten Anti-Phase Peakhöhe illustriert. Insbesondere die Entdeckung des Wiedereinsetzenden 2D-Wachstums bei tiefen Temperaturen ermöglicht es, den scheinbaren Widerspruch zwischen den im letzten Absatz angeführten Beobachtungen zum Wachstum der Cu(100)-Fläche aufzuklären. Dennoch belegt gerade das Auftreten dieses Wachstumsmodus, daß das traditionelle Bild vom homonuklearen Wachstum modifiziert werden muß, um das Temperaturverhalten des Wachstums der Pt(111)-Fläche beschreiben zu können.

In diesem Kapitel sollen die Prozesse untersucht werden, die auf atomarer Skala für die Entstehung der beobachteten Wachstumsmodi verantwortlich sind. Dazu werden die in den einzelnen Temperaturbereichen entstehenden Oberflächenstrukturen mit Hilfe plausibler Modelle auf die wachstumsbestimmenden Prozesse auf der Fläche zurückgeführt. Im folgenden werden die Wachstumsmodi der Pt(111)-Fläche im einzelnen vorgestellt und diskutiert. Dazu soll im Abschnitt 5.1 zunächst das Wachstum durch Stufenwanderung untersucht werden. Der darauf folgende Abschnitt (5.2) beschäftigt sich mit dem 2D-Wachstum bei hohen Temperaturen (im weiteren als 2D_h-Wachstum bezeichnet). Dort werden die für diesen Wachstumsmodus typischen Oszillationen der spekularen He-Peakhöhe detailliert untersucht. Darüber hinaus soll diskutiert werden, welche auf atomarer Skala ablaufenden Prozesse für diesen Wachstumsmodus bestimmend sind. Abschnitt 5.3 hat zum Ziel, die Ursachen für das

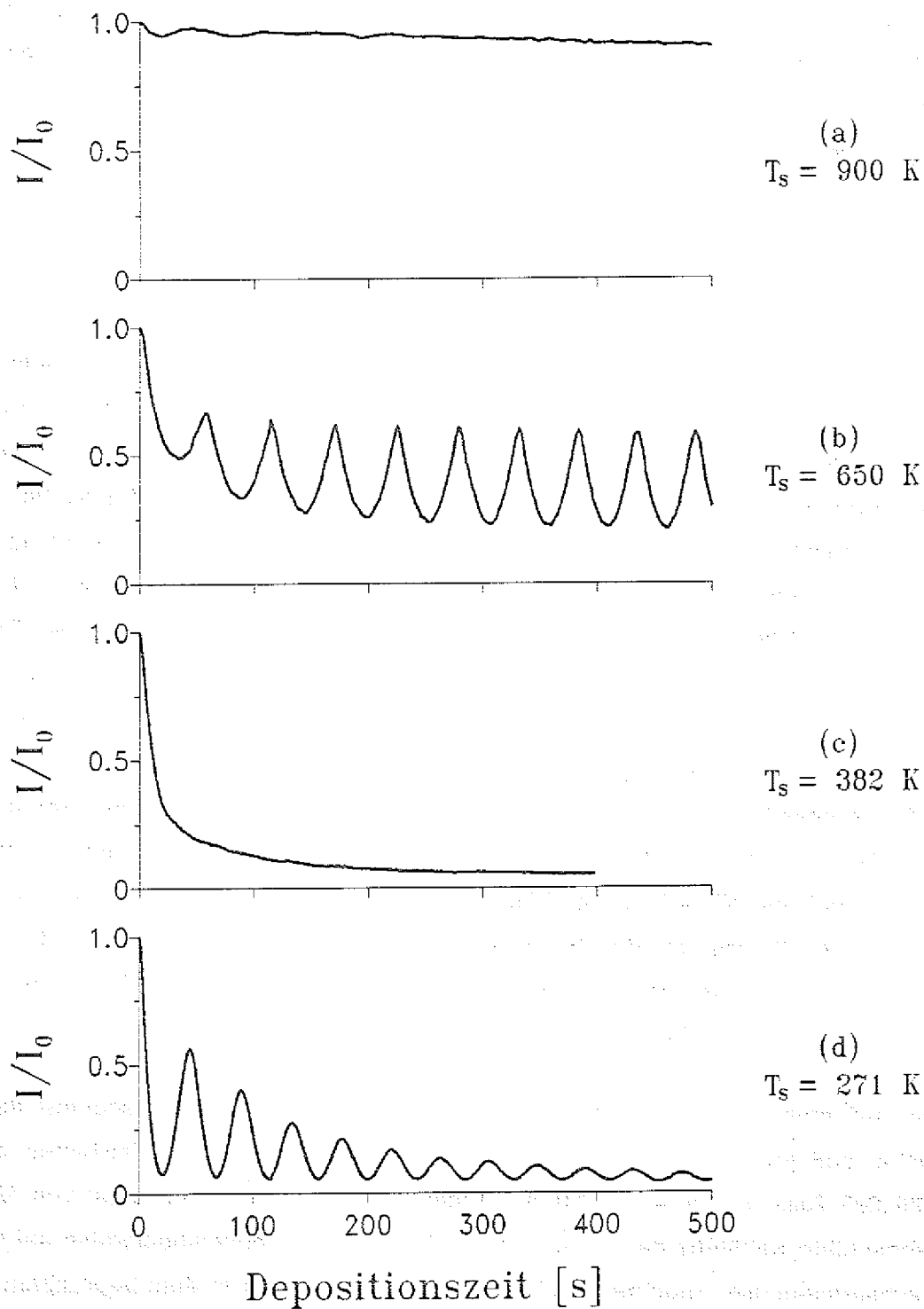


Abb. 30. Die Wachstumsmodi einer Pt(111)-Fläche: Die Abbildung zeigt den Verlauf der normierten Anti-Phase Peakhöhe ($n=2.5$, $\beta_1=72.2^\circ$) als Funktion der Depositionszeit bei unterschiedlichen Oberflächentemperaturen und nahezu gleichen Depositionsraten ($R=1 \text{ ML/min}$ (a), $R=1.1 \text{ ML/min}$ (b), $R=1.5 \text{ ML/min}$ (c) und $R=1.4 \text{ ML/min}$ (d)).

Auftreten des 3D-Wachstums im mittleren Temperaturbereich zu beleuchten. Dort wird nachgewiesen, daß die im Rahmen des traditionellen Bildes vom homonuklearen Wachstum geforderte mangelnde Adatommobilität nicht für das Entstehen des 3D-Wachstums verantwortlich sein kann. Das hier gefundene Wiedereinsetzen des 2D-Wachstums bei tiefen Temperaturen ($2D_c$ -Wachstum) wird schließlich im Abschnitt 5.4 diskutiert. Hier werden die für diesen Wachstumsmodus verantwortlichen Prozesse untersucht und mit früheren experimentellen Ergebnissen verknüpft.

5.1 Das Wachstum durch Stufenwanderung

In diesem Abschnitt wollen wir uns zunächst mit dem Wachstumsmodus der Pt(111)-Fläche beschäftigen, der dem des idealen 2D-Wachstums einer realen Oberfläche entspricht: das Wachstum durch Stufenwanderung. Wie bereits im Abschnitt „He-Streuung und Wachstumsmodi einer realen Fläche“ auf Seite 70 diskutiert wurde, tritt dieser Wachstumsmodus dann auf, wenn die effektive Diffusionslänge der Adatome bei entsprechender Wahl der Wachstumsbedingungen so groß wird, daß die deponierten Adatome mit großer Wahrscheinlichkeit eine der vor Beginn des Experimentes auf der Fläche vorhandenen Stufenkanten erreichen und an ihr angelagert werden können. In diesem Fall bleibt die Adatomübersättigung auf den Terrassen zu klein, als daß auf ihnen Nukleationskeime gebildet werden könnten; das Wachstum läuft ausschließlich durch die Wanderung der vor Beginn des Experimentes auf der Oberfläche vorhandenen Stufen ab. Da sich in diesem Fall weder die Stufendichte der Fläche noch die Verteilung der Flächenanteile von sichtbaren Terrassen in unterschiedlichen Niveaus mit der Deposition ändert, beobachtet man sowohl unter In- als auch unter Anti-Phase Bedingungen eine weitgehend konstante Peakhöhe, wie auch das in Figur (a) von Abb. 30 auf Seite 81 gezeigte Beispiel illustriert.

Das Auftreten des Wachstums durch Stufenwanderung ist die Konsequenz der Tatsache, daß jede reale Oberfläche ein bestimmtes Maß von Stufenkanten enthält /196.,203.,204./. Es sei jedoch darauf hingewiesen, daß die in Figur (a) von Abb. 30 beobachtete Konstanz der Anti-Phase Peakhöhe nicht notwendigerweise auf diesen Wachstumsmodus hindeuten muß. Der Grund hierfür liegt in dem begrenzten Auflösungsvermögen des Instrumentes für laterale Strukturen auf der Fläche (Transferbreite). Diese wurde bereits im Abschnitt „Der Einfluß instrumenteller Effekte auf die Beobachtung von Beugungspeaks“ auf Seite 23 eingehend betrachtet. Sind die entstehenden Strukturen erheblich größer als die Transferbreite des Instrumentes, so läßt sich eine Variation der Oberflächenmorphologie nicht mehr nachweisen, und es

wird eine während des Wachstums konstante Anti-Phase Peakhöhe beobachtet. Ähnliches gilt auch für In-Phase Bedingungen, da bei sehr großen Strukturen die Stufendichte auf der Fläche zu klein ist um nachgewiesen werden zu können. Mit dem verwendeten Instrument können Strukturen mit lateralen Dimensionen von einigen tausend Ångström aufgelöst werden. Der mittlere Abstand der vor Beginn des Experimentes auf der Fläche vorhandenen Stufenkanten ist jedoch erheblich kleiner ($\bar{\Delta} \approx 800 \text{ Å}$), so daß die in Figur (a) von Abb. 30 beobachtete annähernde Konstanz der Anti-Phase Peakhöhe nicht auf instrumentelle Effekte zurückgeführt werden kann: die Fläche wächst nahezu vollständig durch Stufenwanderung.

Reduziert man durch geeignete Wahl der Wachstumsbedingungen die effektive Diffusionslänge der Adatome, so können nicht mehr alle Adatome die Stufenkanten erreichen. Die Adatomübersättigung steigt dann mit der Deposition an und es entstehen Nukleationszentren auf den Terrassen. Man beobachtet in diesem Fall einen Übergang vom Wachstum durch Stufenwanderung zum $2D_r$ -Wachstum, der sich durch das Auftreten zeitlicher Oszillationen der gespiegelten Peakhöhe nachweisen läßt. Im Abschnitt „Die ersten Stadien des Wachstums von Schichten“ auf Seite 66 wurde bereits diskutiert, daß sowohl eine Erniedrigung der Oberflächentemperatur als auch eine Erhöhung der Depositionsrate zu kleineren effektiven Diffusionslängen der Adatome führt. Der Übergang zwischen den beiden Wachstumsmodi sollte daher durch die Variation jeweils eines dieser beiden Wachstumsparameter erzeugt werden können. Dies wird auch tatsächlich beobachtet. Die Figuren (a) und (b) in Abb. 30 auf Seite 81 illustrieren den Übergang vom Wachstum durch Stufenwanderung zum $2D_r$ -Wachstum, wenn bei konstanter Depositionsrate ($R \approx 1 \text{ ML/min}$) die Oberflächentemperatur T_s variiert wird. Die in Abb. 31 auf Seite 84 dargestellten experimentellen Ergebnisse belegen, daß die Variation der Depositionsrate bei konstanter Oberflächentemperatur ebenfalls zu einem Übergang vom Wachstum durch Stufenwanderung zum $2D_r$ -Wachstum führt. Bei einer Temperatur von $T_s = 800 \text{ K}$ und hohen Depositionsraten (Figur (d)) tritt ein $2D$ -Wachstum der Fläche auf, wie die ausgeprägten zeitlichen Oszillationen der Peakhöhe belegen. Die bei einer Erniedrigung der Depositionsrate auftretenden Oszillationen reduzierter Amplituden weisen auf einen graduellen Übergang zum Wachstum durch Stufenwanderung hin. Bei einer Depositionsrate von $R = 0.12 \text{ ML/min}$ (Figur (d)) werden keine Oszillationen mehr beobachtet und die Fläche wächst nur noch durch das Wandern der vor Beginn des Experimentes vorhandenen Stufen.

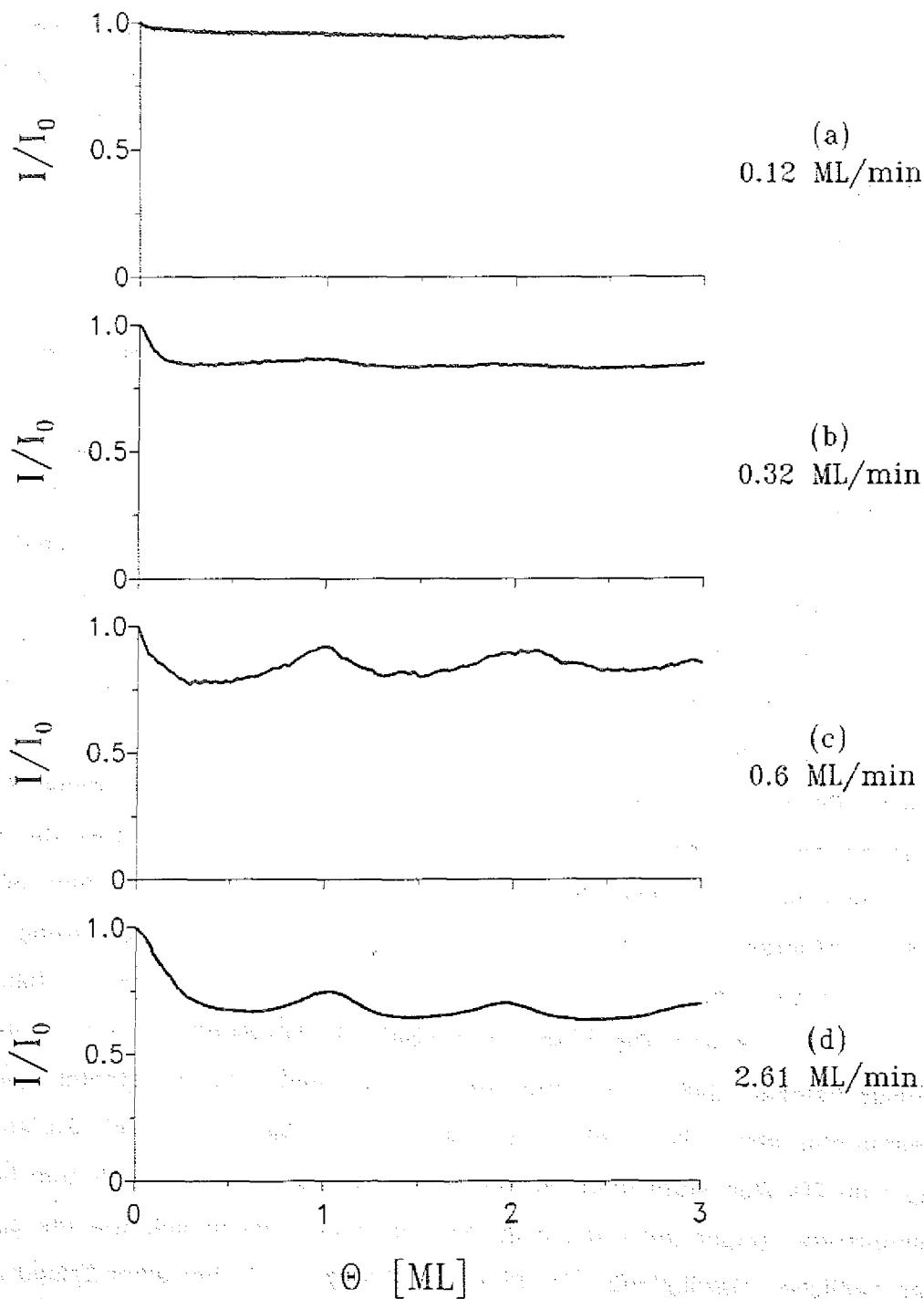


Abb. 31. Der Übergang vom Wachstum durch Stufenwanderung zum $2D_n$ -Wachstum bei einer Variation der Depositionsrates: Aufgetragen ist jeweils der Verlauf der normierten Anti-Phase Peakhöhe ($n=2.5$, $\vartheta_i=72.3^\circ$) als Funktion der Bedeckung θ . Die Experimente wurden bei gleicher Temperatur von $T_s=800$ K, aber unterschiedlichen Depositionsrates ($R=0.12$ ML/min (a), $R=0.32$ ML/min (b), $R=0.6$ ML/min (c) und $R=2.61$ ML/min (d)) durchgeführt.

5.2 Das $2D_n$ -Wachstum bei hohen Temperaturen

Seit der erstmaligen Beobachtung von Oszillationen der gestreuten Elektronenintensität (RHEED) während des Wachstums von Schichten Anfang der 80er Jahre /17./ wurde diesem Phänomen große Aufmerksamkeit gewidmet. Der Grund hierfür liegt vor allem in dessen praktischer Bedeutung, insbesondere bei der Kontrolle von Schichtdicken. Im Abschnitt „He-Streuung und Wachstumsmodi einer realen Fläche“ auf Seite 70 wurde nachgewiesen, daß das Auftreten zeitlicher Oszillationen der He-Peakhöhe charakteristisch für ein $2D$ -Wachstum der Fläche ist. Auch bei der Beugung von Elektronen (RHEED) wird das Auftreten zeitlicher Oszillationen oftmals mit einem $2D$ -Wachstum verknüpft, wobei diese Interpretation aufgrund der komplizierten Streumechanismen von Elektronen an Oberflächen problematisch ist /209./. Daher sind die Ursachen, die das Auftreten und die detaillierte Form der beobachteten RHEED-Oszillationen bestimmen, weitgehend unklar und werden kontrovers diskutiert.

In diesem Abschnitt wollen wir uns mit dem $2D_n$ -Wachstum der Pt(111)-Fläche bei hohen Temperaturen ($460\text{ K} \lesssim T_s \lesssim 850\text{ K}$) beschäftigen. Dazu werden zunächst die experimentellen Ergebnisse vorgestellt und die wesentlichen Merkmale der in diesem Temperaturbereich beobachteten Oszillationen der gespiegelten He-Peakhöhe diskutiert. Im Abschnitt 5.2.2 soll speziell die in allen Experimenten auftretende Dämpfung der Oszillationen untersucht werden. Das besondere Interesse liegt hierbei auf der Frage, ob die limitierte Zahl beobachtbarer Oszillationen aus physikalischen Gründen (z.B. zunehmender Anteil von Mehrschichteffekten) oder aus instrumentellen Effekten (Inhomogenitäten der Depositionsrate) resultiert. Im Abschnitt 5.2.3 wird schließlich die detaillierte Form der In-Phase Oszillationen diskutiert. Im Gegensatz zu den Anti-Phase Oszillationen, die einen symmetrischen Kurvenverlauf aufweisen, zeigen die In-Phase Oszillationen in Abhängigkeit von den Wachstumsbedingungen eine deutliche Asymmetrie. Dies soll quantifiziert und die möglichen Ursachen für dieses Phänomen näher beleuchtet werden.

5.2.1 Die Oszillationen der He-Reflektivität während des $2D_n$ -Wachstums

In diesem Abschnitt werden wir uns mit den wesentlichen Merkmalen der Oszillationen der He-Reflektivität während des $2D_n$ -Wachstums beschäftigen. In Abb. 32 auf Seite 86 ist der Verlauf der normierten Höhe des gespiegelten He-Peaks als Funktion der Depositionszeit dargestellt, den man erhält, wenn Pt-Atome bei einer Deposi-

tionsrate von $R = 1.1 \text{ ML/min}$ auf einer $\text{Pt}(111)$ -Fläche der Temperatur $T_s = 650 \text{ K}$ deponiert werden. Kurve (a) zeigt den Kurvenverlauf unter Anti-Phase Bedingungen; Kurve (b) wurde unter In-Phase Bedingungen beobachtet. In beiden Fällen beobachtet man ausgeprägte Oszillationen der Peakhöhe mit der Depositionszeit. Bei den hier gewählten Streu- und Wachstumsbedingungen lassen sich sowohl unter In- als auch unter Anti-Phase Bedingungen ungefähr 50 Oszillationen auflösen.

Untersuchen wir zunächst die Form der Oszillationen unter Anti-Phase Bedingungen. Obwohl der in Figur (a) von Abb. 32 dargestellte Kurvenverlauf qualitativ mit dem übereinstimmt, der nach Gl. 4.6 für ein ideales 2D-Wachstum erwartet wird, zeigt ein quantitativer Vergleich deutliche Abweichungen: die Reflektivität erreicht weder den ursprünglichen Wert von $I/I_0 = 1$ in den Maxima, noch verschwindet sie in den Minima der Oszillationen. Wie bereits im Abschnitt „He-Streuung und Wachstumsmodi einer realen Fläche“ auf Seite 70 diskutiert wurde, ist die reduzierte Peakhöhe in den Maxima der Oszillationen eine direkte Konsequenz des nicht vollkommen perfekten 2D-Wachstums: nahe der Vollendung einer vollständigen Monoschicht entstehen

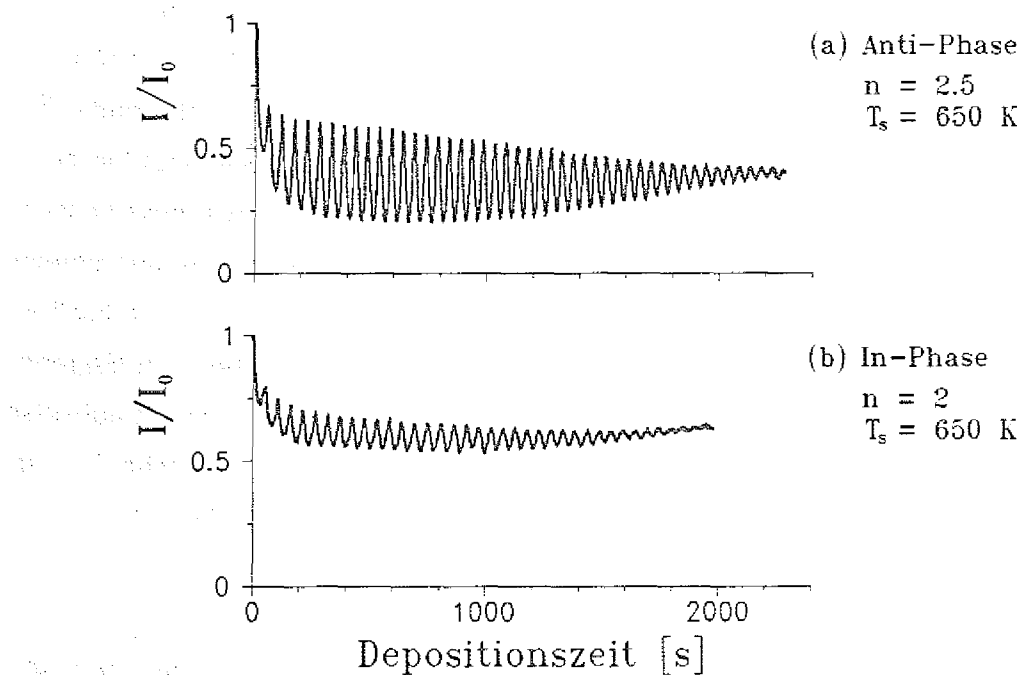


Abb. 32. He-Reflektivität während des Wachstums einer $\text{Pt}(111)$ -Fläche unter In- und Anti-Phase Bedingungen: Die Kurven wurden bei einer Oberflächentemperatur von $T_s = 650 \text{ K}$ und einer Depositionsrate von $R = 1.1 \text{ ML/min}$ beobachtet. Dargestellt ist jeweils der Verlauf der normierten Höhe des gespiegelten Peaks unter Anti-Phase (Figur (a): $n = 2.5$, $\vartheta_i = 72.2^\circ$) bzw. In-Phase Bedingungen (Figur (b): $n = 2$, $\vartheta_i = 75.9^\circ$) als Funktion der Depositionszeit.

neue Nukleationskeime in der nächsten Lage, **bevor** die darunter liegende Schicht vollkommen geschlossen ist. Die Höhe der Maxima der Oszillationen werden also durch einen erhöhten Anteil diffuser Streuung an den Stufenkanten der neuen Nukleationskeime bzw. der verbleibenden Fehlstelleninseln sowie aus den daraus entstehenden zusätzlichen Beiträgen zur destruktiven Interferenz bestimmt.

Im Gegensatz dazu liegt die Ursache für die nicht verschwindende Reflektivität in den Minima der Oszillationen ausschließlich in instrumentellen Effekten, d.h. in der limitierten Transferbreite des Instrumentes begründet /30./. Wie bereits im Abschnitt „Die Beugung von He-Atomen an gestuften Oberflächen“ auf Seite 12 ausführlich diskutiert wurde, kann das Profil des gespiegelten Anti-Phase Peaks in zwei Beiträge separiert werden: den Deltapeak und den verbreiterten inkohärenten Peak, dessen Breite durch die mittlere Terrassenbreite $\bar{\Delta}$ bestimmt wird. Ist die mittlere Terrassenbreite vernachlässigbar klein gegenüber der Transferbreite des Instrumentes, so ist die gespiegelte Peakhöhe ausschließlich durch den Deltapeak bestimmt, dessen Variation durch Gl. 4.6 beschrieben wird. In diesem Fall würde man tatsächlich eine verschwindende Intensität im Minimum der Oszillationen erwarten. Bei den hier gewählten Wachstumsbedingungen sind die lateralen Dimensionen der entstehenden Terrassen jedoch so groß (typischerweise größer als 300 Å), daß diese Voraussetzung nicht mehr erfüllt ist. Obwohl auch hier der Deltapeak im Minimum der Oszillationen verschwindet, beobachtet man eine resultierende Peakhöhe, die durch den inkohärenten Peak bestimmt wird. Da dessen Breite proportional zu $1/\bar{\Delta}$ ist (siehe Gl. 2.9), liefert die Höhe des gespiegelten Anti-Phase Peaks im Minimum der Oszillationen ein Maß für die mittlere Terrassenbreite der auf der Fläche vorhandenen Terrassen.

Abschließend sollen die in Figur (b) von Abb. 32 illustrierten Oszillationen der In-Phase Peakhöhe diskutiert werden. Im Gegensatz zu Anti-Phase Bedingungen, bei denen man empfindlich für die Verteilung der aufgedeckten Terrassen ist, wird die In-Phase Peakhöhe ausschließlich durch die diffuse Streuung an den Stufenkanten der wachsenden Fläche bestimmt. Die beobachteten Oszillationen resultieren also aus einer periodischen Variation der Dichte der auf der Fläche vorhandenen Stufen. Zu Beginn des Experimentes ist die Stufendichte minimal. Die Entstehung von Nukleationszentren während des Wachstums führt zu diffuser Streuung an den Inselrändern und zu einer Reduktion der In-Phase Peakhöhe. Diese Reduktion wird umso größer, je größer die wachsenden Inseln werden. Die minimale Peakhöhe wird erreicht, wenn die Rate der Erhöhung der Stufendichte aufgrund des lateralen Wachs-

tums der Inseln durch die Rate kompensiert wird, mit der die Stufendichte aufgrund zunehmender Koaleszenz von Inseln erniedrigt wird. Die In-Phase Peakhöhe steigt dann bei weiterer Deposition auf einen Maximalwert an, der, wie bereits erwähnt, durch die diffuse Streuung an den Stufenkanten der verbleibenden Fehlstelleninseln bzw. der neu entstandenen Adatominseln in höheren Schichten bestimmt wird. Die Amplitude der In-Phase Oszillationen spiegelt also die totale Variation der Stufendichte der Fläche wieder. Es sei vermerkt, daß die Form der Oszillationen durch die Größenverteilung der einzelnen Adatom- bzw. Fehlstelleninseln bestimmt wird. Wie in Abschnitt „Die Asymmetrie der In-Phase Oszillationen“ auf Seite 99 noch ausführlich diskutiert wird, können die Größenverteilungen der Adatom- und Fehlstelleninseln unterschiedlich sein, so daß bei geeigneter Wahl der Wachstumsbedingungen asymmetrische Oszillationen auftreten.

5.2.2 Die Form und Dämpfung der Oszillationen

Nachdem wir uns im letzten Abschnitt mit einer generellen Beschreibung der In- und Anti-Phase Oszillationen während des $2D_n$ -Wachstums beschäftigt haben, soll dieser Abschnitt einer detaillierten Diskussion der Prozesse dienen, die im gesamten Temperaturbereich des $2D_n$ -Wachstums strukturbestimmend sind. Betrachten wir dazu die Kurvenverläufe, die in Abb. 33 auf Seite 89 dargestellt sind. Die Abbildung zeigt die bei unterschiedlichen Oberflächentemperaturen und annähernd konstanten Depositionsraten beobachtete Entwicklung der normierten Anti-Phase Peakhöhe als Funktion der Bedeckung θ , d.h. der Zahl deponierter Monoschichten. Obwohl in allen Kurvenverläufen die für ein 2D-Wachstum charakteristischen Oszillationen auftreten, zeigt deren Vergleich doch einige signifikante Unterschiede. Dies betrifft zum einen das mittlere Intensitätsniveau, dem die Oszillationen überlagert sind. Für Oberflächentemperaturen oberhalb von $T_s \approx 550$ K ist dieses Niveau konstant und steigt mit der Temperatur an. Wie bereits im letzten Abschnitt erwähnt wurde, liegt der Grund hierfür in den bei höheren Temperaturen entstehenden Strukturen größerer lateraler Dimensionen. Dies führt zu einer größeren Reflektivität in den Minima der Oszillationen (der verbreiterte inkohärente Peak ist schmaler und höher) und aufgrund der kleineren Stufendichte zu einer geringeren Reduktion der Peakhöhe durch diffuse Streuung in deren Maxima. Bei Oberflächen unterhalb von $T_s \approx 550$ K ist das mittlere Intensitätsniveau nicht mehr konstant, sondern fällt monoton ab. Wie später im Abschnitt „Das 3D-Wachstum im mittleren Temperaturbereich“ auf Seite 104 noch ausführlich diskutiert wird, kann als Ursache hierfür der Aufbau von Strukturen großer

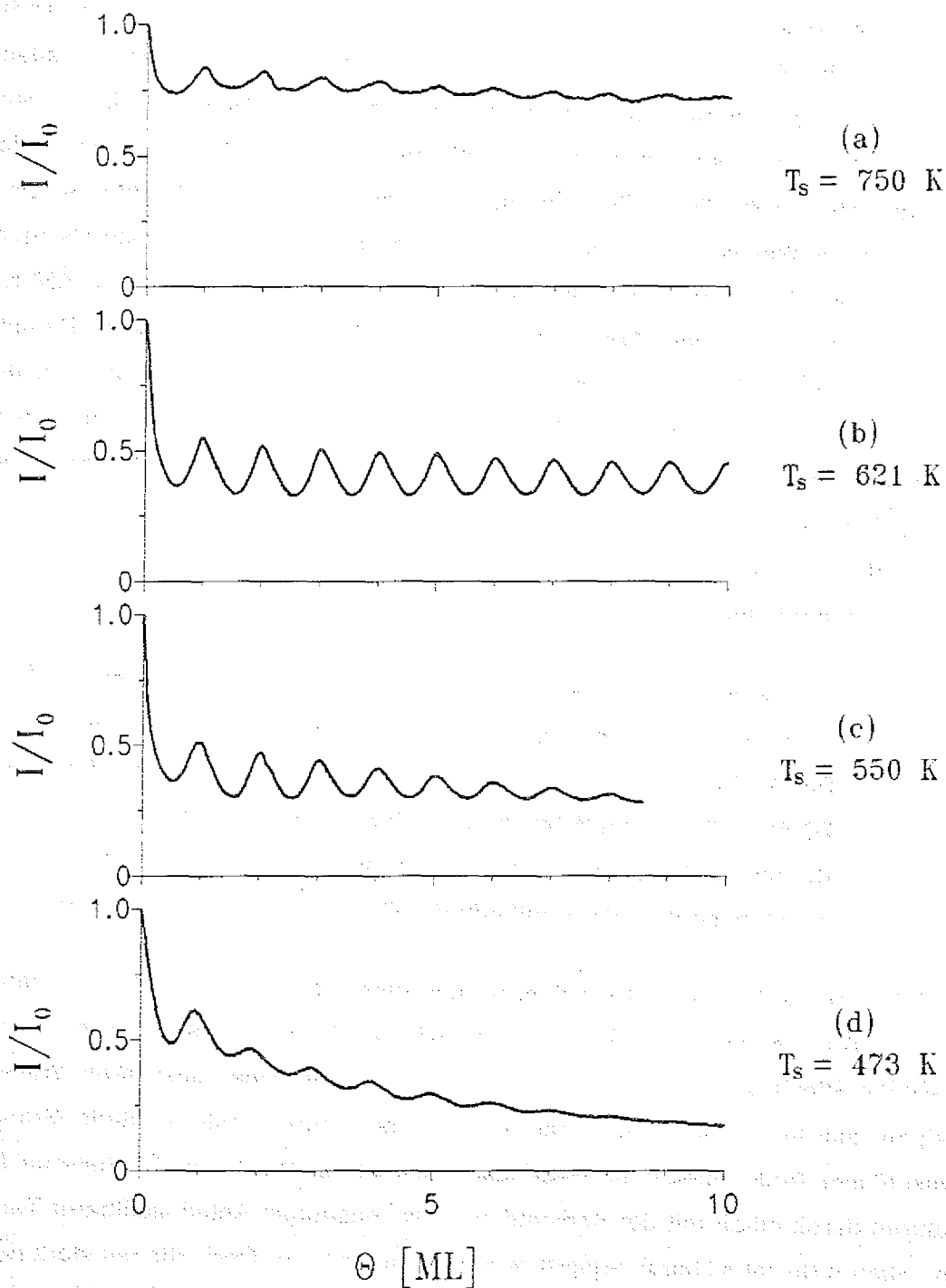


Abb. 33. Anti-Phase Oszillationen während des 2D_n-Wachstums einer Pt(111)-Fläche bei unterschiedlichen Oberflächentemperaturen: Dargestellt ist für unterschiedliche Oberflächentemperaturen jeweils der Verlauf der normierten Anti-Phase Peakhöhe ($n=2.5$, $\theta_1=72.2^\circ$) als Funktion der Bedeckung θ . Die Kurven wurden bei annähernd gleichen Depositionsraten beobachtet ($R=0.9 \text{ ML/min}$ (a), $R=1.0 \text{ ML/min}$ (b), $R=0.6 \text{ ML/min}$ (c) und $R=1.1 \text{ ML/min}$ (d)).

„Rauhigkeit“, d.h. der beginnende Übergang vom 2D-Wachstum zum 3D-Wachstum angegeben werden.

Der weitere Verlauf dieses Abschnittes soll jedoch der Untersuchung einer anderen Eigenschaft der Kurvenverläufe dienen: der Dämpfung der Oszillationen. In allen Experimenten wird eine monotone Abnahme der Oszillationsamplitude mit der Depositionszeit beobachtet, so daß ab einer bestimmten Schichtdicke keine Oszillationen mehr auftreten. Abb. 33 auf Seite 89 illustriert, daß die Zahl beobachtbarer Oszillationen von den Wachstumsbedingungen abhängig ist. Sowohl die Anzahl als auch die Amplitude der Oszillationen sind bei einer Oberflächentemperatur von $T_s \approx 650$ K maximal; eine Erhöhung oder Erniedrigung von T_s führt zu einer stärkeren Dämpfung. Dies stellt notwendigerweise die Frage nach den physikalischen Ursachen, die zu diesem Verhalten führen. Die Zahl beobachtbarer Oszillationen wird jedoch auch durch die Streubedingungen beeinflusst, bei denen das Wachstumsexperiment durchgeführt wurde. Also spielen instrumentelle Effekte ebenfalls eine Rolle. Zusammenfassend lassen sich drei mögliche Gründe für das Auftreten der Dämpfung der Oszillationen angeben:

- a) Die Dämpfung wird hervorgerufen durch instrumentelle Effekte, d.h. durch Inhomogenitäten der Depositionsrates im beobachteten Teil der Fläche.
- b) Das Verschwinden der Oszillationen resultiert aus einem Übergang vom 2D_n-Wachstum zum Wachstum durch Stufenwanderung.
- c) Da das 2D-Wachstum nicht ideal ist, wächst der Anteil von Mehrschichteffekten, so daß die Amplitude der Oszillationen gedämpft wird.

Im folgenden soll diskutiert werden, welche dieser drei Ursachen für die Dämpfung der Oszillationen verantwortlich ist. Dazu wird zunächst untersucht, wie sich instrumentelle Effekte auf die Zahl der beobachteten Oszillationen auswirken. Wir werden zeigen, daß für die Dämpfung bei hohen Temperaturen instrumentelle Gründe die wesentliche Rolle spielen. Im Gegensatz dazu ist das Wachstum bei tieferen Temperaturen durch einen mit der Schichtdicke anwachsenden Anteil sichtbarer Terrassen in höheren Niveaus charakterisiert, wodurch die Zahl der Oszillationen stark reduziert wird. Dies wird im zweiten Abschnitt untersucht und anhand der Ergebnisse von Monte-Carlo Simulationen belegt.

5.2.2.1 Instrumentelle Effekte bei der Dämpfung der Oszillationen

In diesem Abschnitt sei der Einfluß instrumenteller Effekte auf die Dämpfung der Oszillationen diskutiert. Untersucht man die Zahl der auftretenden Oszillationen unter gleichen Wachstumsbedingungen, d.h. identischer Depositionsrates, Oberflächentemperatur und -beschaffenheit, so macht man die zentrale Beobachtung, daß die Dämpfung vom Spiegelwinkel ϑ_i der He-Atome abhängig ist. In Abb. 34 auf Seite 92 ist ein experimentelles Beispiel angegeben. Aufgetragen ist dort jeweils die normierte Höhe des gespiegelten He-Peaks unter In-Phase Bedingungen als Funktion der Depositionszeit für eine Oberflächentemperatur von $T_s = 650$ K und eine Depositionsrates von $R = 1.1$ ML/min. Figur (a) zeigt die zeitliche Entwicklung der Peakhöhe bei einem Spiegelwinkel von $\vartheta_i = 83.4^\circ$ ($n = 1$); der Kurvenverlauf von Figur (b) wurde bei einem Spiegelwinkel von $\vartheta_i = 61.2^\circ$ ($n = 4$) beobachtet. Obwohl die Wachstumsbedingungen in beiden Experimenten identisch waren, weisen die Kurvenverläufe eine unterschiedliche Zahl von Oszillationen auf: während die Oszillationen in Figur (a) nach der Deposition von ungefähr 18 Monoschichten vollständig verschwunden sind, treten in Figur (b) selbst nach dem Wachstum von 48 Monoschichten noch starke zeitliche Oszillationen auf.

Der einzige Parameter, der in den beiden Experimenten variiert wurde, ist der Spiegelwinkel ϑ_i der He-Atome, d.h. die Größe der durch den He-Strahl beobachteten Fläche auf der Probe. Wie bereits im Abschnitt „Die Inhomogenität des Teilchenflusses im beobachteten Teil der Probe“ auf Seite 50 ausführlich diskutiert wurde, haben Inhomogenitäten des Pt-Flusses ein mit der Schichtdicke anwachsendes Ausschmieren definierter Phasenbeziehungen der Streubeiträge von sichtbaren Terrassen und somit eine Dämpfung der Oszillationen zur Folge /23.,26.,196./. In den in Abb. 34 dargestellten Experimenten sind die nach Gl. 3.17 berechneten Intensitätsverteilungen der auf die Probe treffenden Pt-Atome nahezu identisch. Bei einem Spiegelwinkel von $\vartheta_i = 83.4^\circ$ ist jedoch die Länge der großen Halbachse des elliptischen He-Strahlflecks auf der Probe erheblich größer als bei einem Spiegelwinkel von $\vartheta_i = 61.2^\circ$ (1.7 mm gegenüber 0.4 mm). Daher ergibt sich nach Mittelung über den Strahlfleck eine größere Inhomogenität der Depositionsrates und somit eine stärkere Dämpfung der Oszillationen. Auf der Basis dieser Erklärung würde man erwarten, daß die „Dämpfungskonstante“ der Oszillationen bei streifendem Einfall der He-Atome deutlich größer als bei kleineren Streuwinkeln ist. Wie Abb. 35 auf Seite 92 zeigt, ist dies auch tatsächlich der Fall. In der Abbildung ist die mittlere Amplitude der in Abb. 34 angeführten Kurvenverläufe bei $n=1$ bzw. $n=4$ als Funktion von θ in

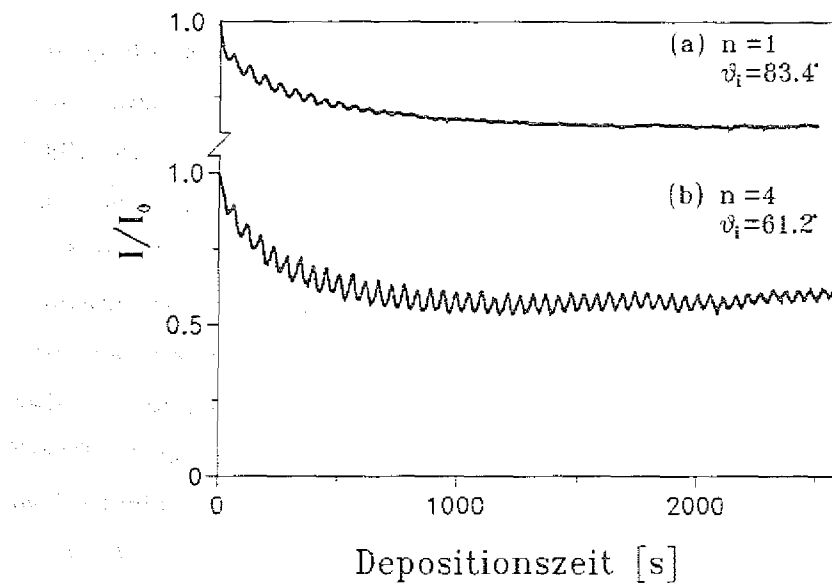


Abb. 34. He-Reflektivität während des Wachstums von Pt(111) für verschiedene Spiegelwinkel: Aufgetragen ist jeweils die normierte Höhe des gespiegelten In-Phase Peaks als Funktion der Depositionszeit. Beide Kurvenverläufe wurden bei einer Oberflächentemperatur von $T_s = 650$ K und nahezu gleichen Depositionsraten ($R = 1.0$ ML/min (a), $R = 1.1$ ML/min (b)) beobachtet. Figur zeigt den Verlauf der Peakhöhe bei einem Spiegelwinkel von 83.4° ($n=1$), Figur (b) den bei einem Spiegelwinkel von 61.2° ($n=4$).

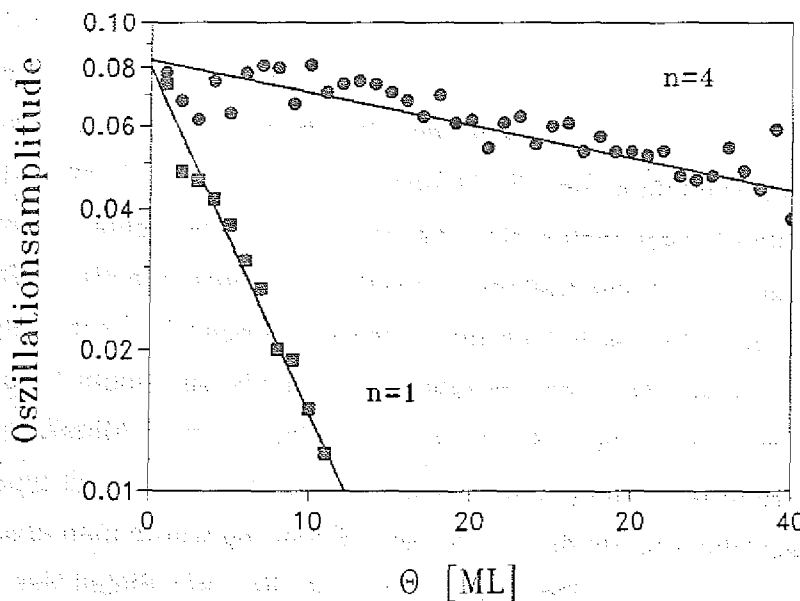


Abb. 35. Die Dämpfung der Oszillationen bei unterschiedlichen Spiegelwinkeln: Die Abbildung zeigt jeweils den Verlauf der Amplitude der in Abb. 34 dargestellten Oszillationen als Funktion der Bedeckung θ .

halblogarithmischer Skala aufgetragen. Die Amplitude wurde jeweils aus der Differenz der mittleren Höhe zweier benachbarter Maxima und der Peakhöhe im Minimum der Oszillationen ermittelt. Aus dieser Auftragung geht klar hervor, daß die „Dämpfungskonstante“ der Oszillationsamplituden in beiden Fällen tatsächlich unterschiedlich ist: bei $n=1$ klingt die Amplitude nach ungefähr 4 Oszillationen auf die Hälfte ab, während bei $n=4$ erst nach ca. 40 Oszillationen die Hälfte der Anfangsamplitude beobachtet wird. Vergleicht man dieses experimentelle Resultat mit der im Abschnitt „Die Inhomogenität des Teilchenflusses im beobachteten Teil der Probe“ auf Seite 50 durchgeführten Berechnung der Homogenität des Teilchenflusses, so stellt man eine gute Übereinstimmung fest. Nach Abb. 21 auf Seite 52 würde man bei einem Spiegelwinkel von $\vartheta_i=61.2^\circ$ eine etwa zehnmal höhere Homogenität erwarten als bei einem Spiegelwinkel von $\vartheta_i=83.4^\circ$, was sehr gut dem experimentell beobachteten Verhalten entspricht. Es läßt sich daher schließen, daß die Dämpfung der Oszillationen unter den hier betrachteten experimentellen Bedingungen maßgeblich durch instrumentelle Effekte bestimmt wird.

Ein zusätzliches Beispiel für den Einfluß der Homogenität des Pt-Flusses auf die beobachteten Kurvenverläufe ist in Abb. 36 auf Seite 94 dargestellt. Die Abbildung zeigt die zeitliche Entwicklung der normierten Peakhöhe unter Anti-Phase Bedingungen, bei denen empfindlicher auf das Wachstum ist. In dem Experiment wurde ein relativ kleiner Spiegelwinkel von $\vartheta_i=47.1^\circ$ gewählt, um eine möglichst hohe Homogenität des Pt-Flusses zu erzielen. Hier können ungefähr 170 Oszillationen beobachtet werden, was zeigt, daß ein quasi-ideales 2D-Wachstum der Fläche vorliegt.

Die hier vertretene Interpretation der Gründe für das vollständige Verschwinden der Oszillationen bei einer bestimmten Schichtdicke ist, zumindest unter den betrachteten Bedingungen, nicht verträglich mit der Annahme, daß das Verschwinden der Oszillationen durch einen Übergang von 2D_n-Wachstum zum Wachstum durch Stufenwanderung hervorgerufen wird. Diese Ursache wurde von Ferrer, de Miguel und Mitarbeitern bei der Untersuchung des Wachstums einer Cu(100)-Fläche vorgeschlagen [9.,11.,199./]. Dort wurde beobachtet, daß die Oszillationen der Höhe des gespiegelten He-Peaks unter In-Phase Bedingungen einem konstant abfallenden mittleren Intensitätsniveau überlagert sind. Die Autoren führten das vollständige Verschwinden der Oszillationen auf eine Situation zurück, bei der die Stufendichte der Oberfläche so groß wird, daß alle auftreffenden Atome den Rand einer bereits bestehenden Adatominsel erreichen, so daß keine neuen Nukleationskeime entstehen können. Das Verschwinden der Oszillationen entspricht dann einem Übergang

zum Wachstum durch Stufenwanderung. Obwohl nicht ausgeschlossen werden kann, daß die im Experiment beobachtete Abhängigkeit der Dämpfung von den Wachstumsbedingungen (T_s , R) aus dem Einfluß der vor Beginn des Experimentes auf der Fläche vorhandenen Stufenkanten resultiert, muß das Verschwinden der Oszillationen bei einer bestimmten Schichtdicke andere Ursachen haben. Der Grund hierfür ist, daß der Übergang zum Wachstum durch Stufenwanderung bei fester Oberflächentemperatur und Depositionsrate lediglich durch die Stufendichte der Fläche bestimmt sein sollte. Man würde daher erwarten, daß die Zahl der beobachtbaren Oszillationen unabhängig von der gewählten Streugeometrie ist. Dies steht jedoch im Widerspruch zu den hier vorliegenden experimentellen Resultaten.

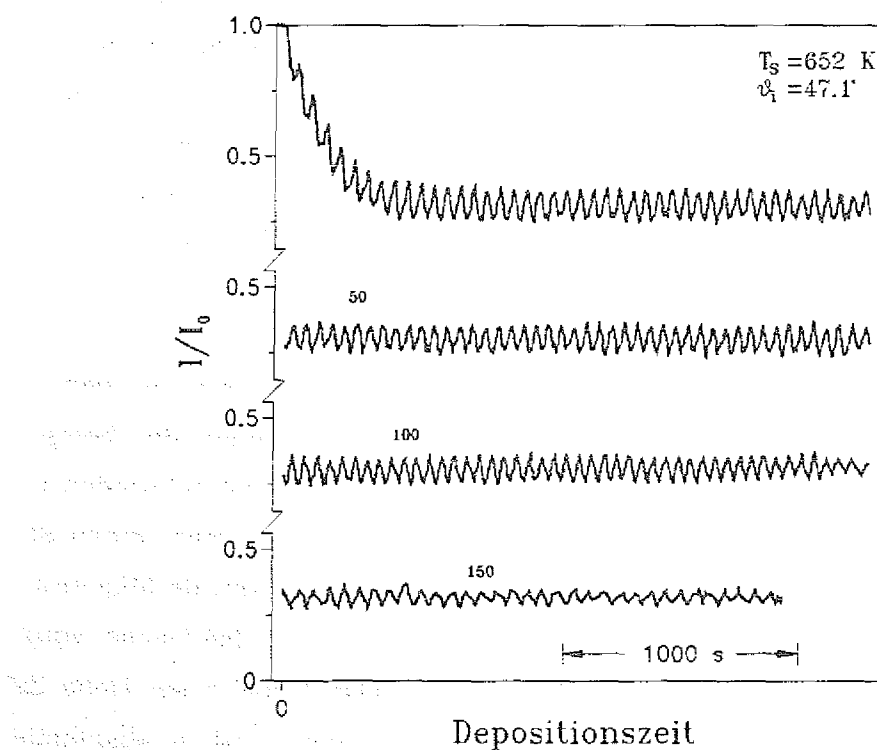


Abb. 36. He-Reflektivität während des Wachstums der Pt(111)-Fläche bei kleinen Spiegelwinkeln: Die Figur zeigt den Verlauf der normierten Höhe des gespiegelten Peaks unter Anti-Phase Bedingungen bei einem Spiegelwinkel von $\phi_i = 47.1^\circ$ ($n = 5.5$) als Funktion der Depositionszeit. Das Experiment wurde bei einer Oberflächentemperatur von $T_s = 652 \text{ K}$ und einer Depositionsrate von $R = 1.0 \text{ ML/min}$ durchgeführt.

5.2.2.2 Der Einfluß von Mehrschichteffekten auf die Dämpfung

Im letzten Abschnitt wurde nachgewiesen, daß Inhomogenitäten der Depositionsrate im beobachteten Teil der Probe einen wesentlichen Beitrag zur Dämpfung der während des 2D-Wachstums auftretenden Peakhöhenoszillationen leisten. Wäre dies die einzige Ursache für die Dämpfung, so müßte die Zahl beobachtbarer Oszillationen unabhängig von den Wachstumsbedingungen sein. Dies entspricht jedoch nicht den experimentellen Beobachtungen. Wie aus Abb. 33 auf Seite 89 hervorgeht, wird die Dämpfung auch durch die Wachstumsbedingungen beeinflusst: sowohl oberhalb als auch unterhalb einer Oberflächentemperatur von $T_s \approx 650$ K nimmt die Zahl der beobachteten Oszillationen ab. Die Dämpfung wird demnach nicht ausschließlich durch instrumentelle Effekte hervorgerufen, sondern hat auch physikalische Ursachen.

Eine mögliche und häufig vorgeschlagene Erklärung für die Dämpfung der Oszillationen ist eine mit der Schichtdicke anwachsende „Rauigkeit“ der Fläche [18., 90., 200., 202.]. Diese Erklärung beruht auf der Tatsache, daß das 2D-Wachstum nicht vollkommen ideal ist. Nach der Deposition vollständiger Monoschichten sind Adatom- und Fehlstelleninseln auf der Fläche vorhanden, die das weitere Wachstum nachhaltig beeinflussen können. Man nimmt daher an, daß dies zu einem mit der Schichtdicke anwachsenden Anteil sichtbarer Terrassen in höheren Niveaus und somit zu einer Dämpfung der Oszillationen führt. Die Zahl der beobachtbaren Oszillationen sollte in diesem Bild durch die Adatomübersättigung, d.h. durch die Oberflächentemperatur bestimmt werden. Bei hohen Oberflächentemperaturen nähert man sich dem idealen Schicht-für-Schicht Wachstum. Hier sollte die Wahrscheinlichkeit zur Entstehung von Nukleationskeimen in höheren Niveaus relativ gering sein. Bei tieferen Temperaturen wird zum einen die Diffusionslänge der Adatome kleiner, so daß Strukturen kleinerer lateraler Dimensionen entstehen. Da zum anderen auch die Wahrscheinlichkeit kleiner wird, mit der sich Adatome aus einer gegebenen Konfiguration auf der Fläche lösen können, sind schon kleinere Adatomcluster stabil und können einen Nukleationskeim bilden. Man würde also erwarten, daß die Erniedrigung der Oberflächentemperatur zu einer erhöhten Keimbildungswahrscheinlichkeit in höheren Niveaus und somit zu einer stärkeren Dämpfung der Oszillationen führt.

Um dieses Bildes zu verifizieren, wurde die Temperaturabhängigkeit des 2D_r-Wachstums mittels Monte-Carlo Rechnungen simuliert. Wie bereits im Abschnitt „Die Modellierung des Wachstums von Schichten durch Monte-Carlo Simulationen“ auf Seite 75 diskutiert wurde, läßt sich dies durch die Variation von zwei Simulationspa-

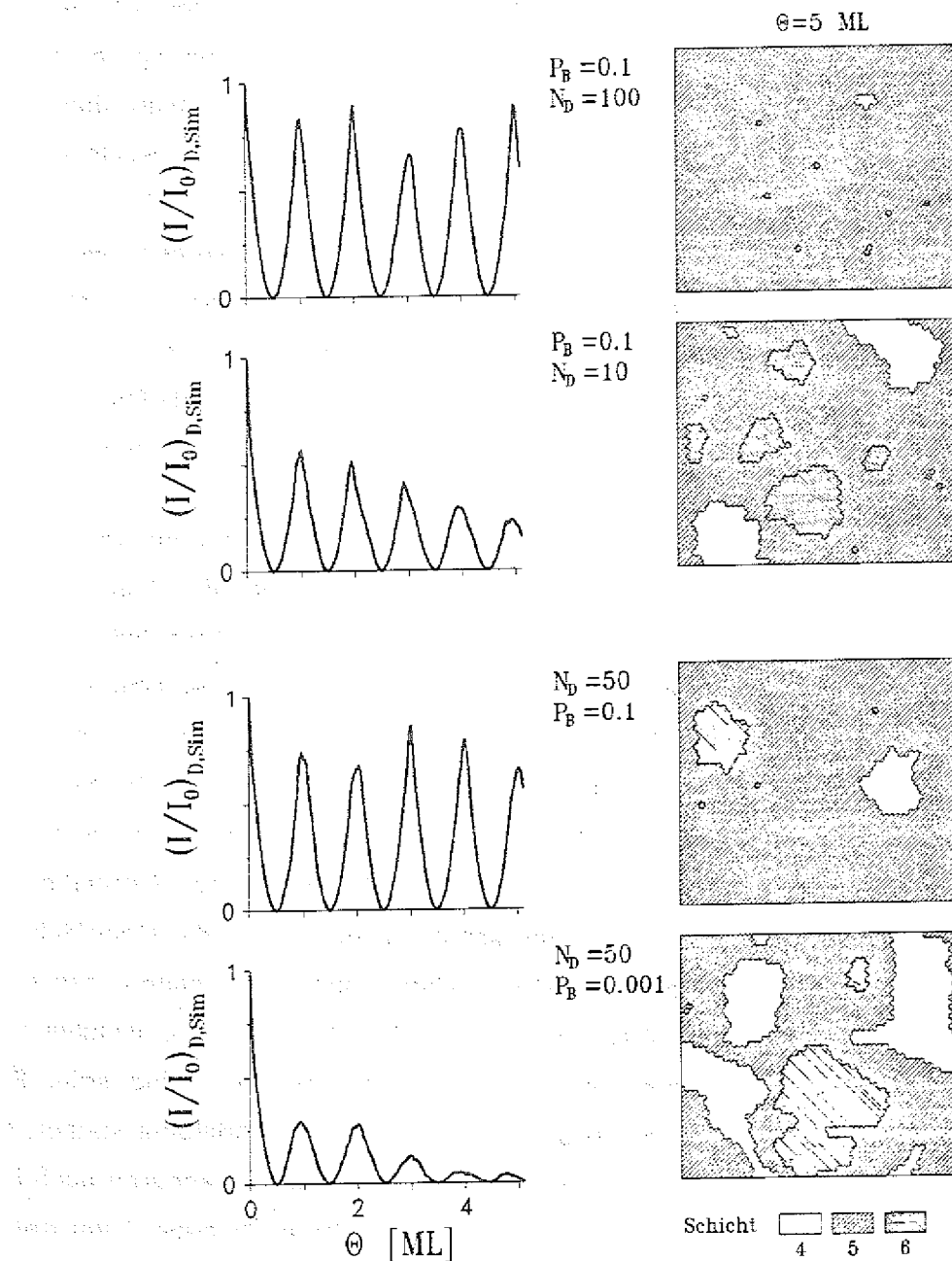


Abb. 37. Simulierte Temperaturabhängigkeit des $2D_n$ -Wachstums: Die Abbildung zeigt das Ergebnis von Monte-Carlo Rechnungen, in denen auf einem Feld von 50×50 Gitterplätzen die Temperaturabhängigkeit des $2D_n$ -Wachstums simuliert wurde. Dies wurde in den oberen beiden Figuren durch die Variation von N_D realisiert. N_T und P_B wurden konstant gehalten ($N_T = 0$, $P_B = 0.1$). In den unteren beiden Figuren wurde die Temperaturabhängigkeit durch die Änderung der Wahrscheinlichkeit P_B zum Brechen einer Bindung simuliert. Hierbei wurden $N_T = 0$ und $N_D = 50$ fest gehalten. Der linke Teil der Abbildung zeigt den Verlauf der normierten Höhe des Deltapeaks unter Anti-Phase Bedingungen als Funktion der Bedeckung θ . Im rechten Teil der Abbildung sind die entsprechenden Oberflächenstrukturen bei einer Bedeckung von $\theta = 5 \text{ ML}$ angegeben.

rametern realisieren. Die Änderung der Zahl N_b der Diffusionsschritte der Adatome spiegelt die Variation der Diffusionslänge wieder /180./, welche durch die Oberflächentemperatur und die Depositionsrate bestimmt wird (siehe Gl. 4.5). Die Variation der Wahrscheinlichkeit P_b zum Brechen einer Bindung beeinflusst die Rate, mit der sich Atome aus einer gegebenen Konfiguration auf der Fläche lösen können. Dadurch wird auch die kritische Clustergröße i^* beeinflusst. Obwohl diese, in der Simulation unabhängigen Variablen, im realen Experiment miteinander verknüpft sind, lassen sich durch die Variation jeweils einer der beiden Größen wichtige qualitative Aussagen über die auf der realen Fläche ablaufenden Prozesse gewinnen. Abb. 37 auf Seite 96 zeigt das Ergebnis der Simulationsrechnungen. In den oberen beiden Figuren wurde die Temperaturabhängigkeit des Wachstums durch die Variation von N_b simuliert. Die Zahl N_T der Sprungversuche nicht akkommodierter Adatome sowie P_b wurden hierbei nicht verändert. Die für $N_b = 100$ durchgeführte Simulation ergibt praktisch ungedämpfte Oszillationen. Obwohl nach der Deposition ganzzahliger Monoschichten Adatom- und Fehlstelleninseln auf der Fläche vorhanden sind (dies ist im rechten Teil der Abbildung illustriert), werden während des Wachstums keine „rauen“ Strukturen aufgebaut: Mehrschichteffekte haben unter diesen Bedingungen wenn überhaupt, dann nur einen vernachlässigbaren Einfluß auf die Dämpfung der Oszillationen. Die für $N_b = 10$ durchgeführte Rechnung weist hingegen eine verstärkte Dämpfung auf, die, wie die entsprechende Oberflächenstruktur zeigt, auf einen erhöhten Anteil sichtbarer Terrassen in höheren Niveaus zurückzuführen ist. Die unteren beiden Figuren von Abb. 37 belegen, daß das gleiche Verhalten entsteht, wenn P_b variiert, N_b und N_T jedoch konstant gehalten werden.

Das Ergebnis dieser Rechnungen läßt den Schluß zu, daß eine geringere Mobilität der deponierten Adatome einen mit der Schichtdicke anwachsenden Anteil sichtbarer Terrassen in höheren Niveaus zur Folge hat. Man würde daher bei abnehmender Oberflächentemperatur eine erhöhte Dämpfung der Oszillationen erwarten. Dies entspricht auch den experimentellen Beobachtungen, wie ein Vergleich der Figuren (b) und (c) aus Abb. 33 auf Seite 89 zeigt. Es sei allerdings betont, daß das vollständige Verschwinden der Oszillationen bei tiefen Temperaturen, also der Übergang zum 3D-Wachstum, nicht durch diese Mobilitätsargumente erklärt werden kann. Dies wird jedoch im Abschnitt „Das 3D-Wachstum im mittleren Temperaturbereich“ auf Seite 104 ausführlich diskutiert.

Obwohl durch diese Betrachtungen die stärkere Dämpfung der Oszillationen bei tiefen Temperaturen ($T_s \lesssim 650$ K) erklärt werden kann, muß die geringere Zahl

beobachtbarer Oszillationen bei hohen Temperaturen ($T_s \geq 650$ K) andere Ursachen haben. Das geht aus dem in Abb. 36 auf Seite 94 gezeigten Kurvenverlauf hervor, bei dem 170 Oszillationen beobachtet werden können. Bei den dort gewählten Wachstumsbedingungen liegt mindestens während dieser Zahl von Schichten ein sehr perfektes 2D-Wachstum vor. Daraus läßt sich schließen, daß Mehrschichteffekte bei einer Temperatur von $T_s \approx 650$ K, und umso weniger bei höheren Temperaturen, nahezu keinen Einfluß auf das Wachstum der Pt(111)-Fläche haben. Die Ursachen der bei hohen Temperaturen verstärkten Dämpfung der Oszillationen könnten zum einen in dem mit der Oberflächentemperatur steigenden Einfluß der vor Beginn des Experimentes auf der Fläche vorhandenen Stufen auf das Wachstum liegen. Dies geht aus früheren Untersuchungen mittels Monte-Carlo Simulationen hervor [196.,197.,204./]. Wird die Diffusionslänge der deponierten Adatome bei hohen Temperaturen sehr groß, so kann ein Teil der Adatome eine der bereits vorhandenen Stufenkanten erreichen und es entsteht eine Mischung zwischen 2D_n-Wachstum und dem Wachstum durch Stufenwanderung. Eine andere Erklärung für die erhöhte Dämpfung der Oszillationen bei hohen Temperaturen findet sich in Verunreinigungen, die während des Experimentes auf der Fläche adsorbieren. Diese können entweder als bevorzugte Nukleationskeime wirken oder die Wanderung der Keimränder hemmen. Gerade bei hohen Temperaturen ist die Nukleationsdichte sehr klein, so daß schon kleinste Konzentrationen von Verunreinigungen zu einer erheblichen Störung der Nukleationsprozesse führen können. In diesem Fall würde man ebenfalls eine erhöhte Dämpfung der Oszillationen erwarten [204./], worauf auch ein Vergleich der in Abb. 23 auf Seite 56 gezeigten Kurvenverläufe hindeutet.

In den letzten Abschnitten haben wir uns mit den Ursachen beschäftigt, die für die Dämpfung der während des 2D_n-Wachstums der Pt(111)-Fläche auftretenden Oszillationen verantwortlich sind. Die limitierte Anzahl der bei hohen Temperaturen beobachteten Oszillationen wurde auf den Einfluß der vor Beginn des Experimentes auf der Fläche vorhandenen Stufen bzw. kleinste Mengen an adsorbierten Verunreinigungen zurückgeführt. Aus den Ergebnissen von Monte-Carlo Simulationen konnte geschlossen werden, daß die Dämpfung der Oszillationsamplituden bei tiefen Temperaturen ($T_s \leq 650$ K) durch einen mit der Schichtdicke anwachsenden Anteil von Mehrschichteffekten verursacht wird. Das zentrale Resultat dieser Betrachtungen liegt jedoch in der Aussage, daß die maximale Zahl beobachtbarer Oszillationen durch die Inhomogenität der Depositionsrate in beobachteten Teil der Oberfläche, d.h. durch instrumentelle Effekte limitiert wird. Bei geeigneter Wahl der Wachstumsbedingungen und perfekter Homogenität des Pt-Flusses auf die Probe sollte es daher

möglich sein, eine beliebig große Anzahl von ausschließlich zweidimensional gewachsenen Monoschichten zu erzeugen.

5.2.3 Die Asymmetrie der In-Phase Oszillationen

Den Abschluß der Diskussion des $2D_h$ -Wachstums der Pt(111)-Fläche soll eine Untersuchung der In-Phase Oszillationen bilden. Deren Form weist eine Eigenschaft auf, die in den bisherigen Untersuchungen des homo- und heteroepitaktischen Wachstums von Schichten nicht beobachtet wurde: im Gegensatz zu den Anti-Phase Oszillationen, die einen symmetrischen und parabelförmigen Kurvenverlauf aufweisen, entstehen unter In-Phase Bedingungen asymmetrische Oszillationen. Dies sei anhand von Abb. 38 auf Seite 100 illustriert. Die Abbildung zeigt auf einer vergrößerten Skala jeweils die achte bis elfte Oszillation der in Abb. 32 auf Seite 86 dargestellten Kurven als Funktion der Bedeckung θ . Die Anti-Phase Oszillationen (Figur (a)) weisen, wie auch nach Gl. 4.6 erwartet, ein symmetrisches Verhalten auf: minimale Reflektivität wird exakt nach der Deposition halbzahliger Monoschichten beobachtet. Die In-Phase Oszillationen (Figur (b)) zeigen hingegen einen asymmetrischen Verlauf: die minimale Reflektivität wird bei den hier gewählten Bedingungen schon nach der Deposition von $\theta = 0.43 \pm 0.02$ ML erreicht. Darüber hinaus ist der Abfall der Peakhöhe bei kleinen Bedeckungen ungefähr zweimal größer als der Anstieg der Reflektivität kurz vor Vollendung der Schicht.

Die Form der In-Phase Oszillationen während des $2D_h$ -Wachstums wurde in einem weiten Depositionsraten- und Temperaturbereich untersucht und nach deren Asymmetrie ausgewertet. Das Maß ε der Asymmetrie der In-Phase Oszillation während des Wachstums der m -ten Schicht wurde dabei folgendermaßen definiert (siehe Abb. 39 auf Seite 100):

$$\varepsilon = \frac{\Delta\theta}{0.5} \quad [5.1]$$

$\Delta\theta$ bezeichnet die Verschiebung des Minimums der Oszillation gegenüber halbzahligen Bedeckungen /185/. Nach dieser Definition ergibt sich bei vollkommen symmetrischen Oszillationen eine Asymmetrie von $\varepsilon = 0$; maximale Asymmetrie ist durch $\varepsilon = 1$ gekennzeichnet. Die quantitative Auswertung der In-Phase Oszillationen zeigt, daß deren Asymmetrie typisch für das $2D_h$ -Wachstum der Pt(111)-Fläche ist und von den Wachstumsbedingungen, d.h. von der Oberflächentemperatur und der Depositionsrate abhängt. In Abb. 40 auf Seite 102 ist die bei konstanter Oberflächen-

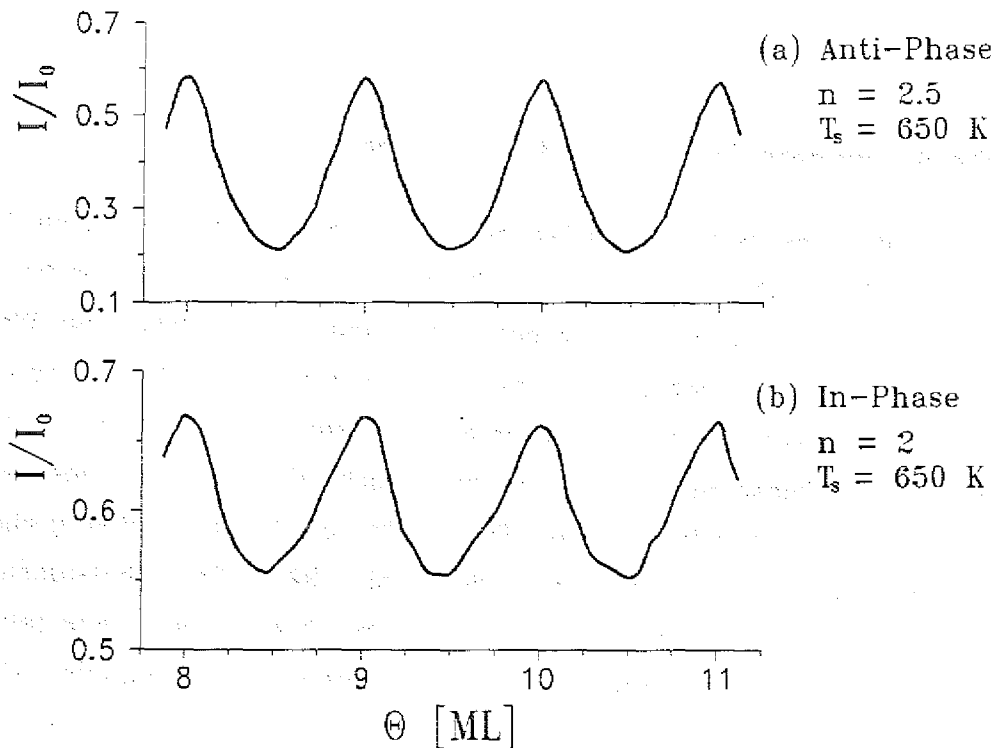


Abb. 38. Symmetrische und asymmetrische Oszillationen der He-Reflektivität: Dargestellt ist ein vergrößerter Ausschnitt des in Abb. 32 auf Seite 86 gezeigten Verlaufs der normierten Höhe des gespiegelten Peaks für Anti-Phase (a) bzw. In-Phase Bedingungen (b) als Funktion der Zahl deponierter Monoschichten.

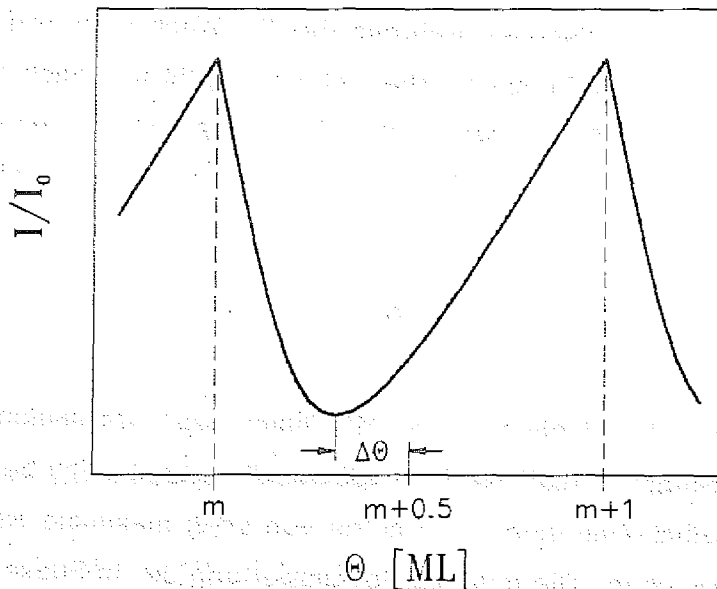


Abb. 39. Definition der Asymmetrie ϵ der In-Phase Oszillationen: m bezeichnet jeweils eine volle Monoschicht, die in erster Näherung dem Maximum der Oszillationen zugeordnet werden kann.

temperatur von $T_s = 700$ K beobachtete Asymmetrie als Funktion der Depositionsrate R dargestellt. Man findet mit steigender Depositionsrate einen monotonen Abfall der Asymmetrie, wobei der Verlauf der Kurve von der Wahl der Oberflächentemperatur abhängt: bei höheren Oberflächentemperaturen verschiebt sich der Abfall der Asymmetrie zu höheren Raten /185./. Abb. 41 auf Seite 102 zeigt die Abhängigkeit der Asymmetrie von der Oberflächentemperatur bei einer konstanten Depositionsrate von $R = 2.4$ ML/min. Hier wird das umgekehrte Verhalten beobachtet, entsprechend dem umgekehrten Einfluß von T_s und R auf die Diffusionslänge der Adatome: λ steigt mit der Oberflächentemperatur an. Im folgenden soll diskutiert werden, welche Ursachen für das Auftreten der Asymmetrie der In-Phase Oszillationen und für deren Abhängigkeit von den Wachstumsbedingungen verantwortlich sind. Es sei jedoch vorausgeschickt, daß dieses Phänomen in Einzelheiten noch nicht verstanden ist, so daß weitere Untersuchungen notwendig sind.

Wie im Abschnitt „Die diffuse Streuung an Stufen“ auf Seite 21 bereits diskutiert wurde, ist die In-Phase Peakhöhe nur empfindlich für diffuse Streuung an den Stufenkanten. Die Peakhöhenoszillationen entstehen aus einer periodischen Variation der Stufenkonzentration. Der Abfall der In-Phase Peakhöhe bei kleinen Bedeckungen resultiert aus einem erhöhten Anteil diffuser Streuung an den wachsenden **Adatominseln**. Ist hingegen die wachsende Schicht nahezu geschlossen, so weist die Oberfläche nur noch eine Anzahl von Löchern auf (Mehrschichteffekte werden zunächst vernachlässigt). Der Anstieg der In-Phase Peakhöhe nahe der Vollendung einer vollständigen Monoschicht resultiert somit aus der Reduktion diffuser Streuung an den schrumpfenden **Fehlstelleninseln**. Diese Überlegung macht deutlich, daß asymmetrische Oszillationen genau dann auftreten, wenn die diffuse Streuung an den Rändern von Adatom- bzw. Fehlstelleninseln bei gleichen Bedeckungen (θ_A bzw. $\theta_F = 1 - \theta_A$) unterschiedlich ist. Nach Gl. 2.13 wird die Abnahme der spekularen In-Phase Peakhöhe durch die Breite D des diffus streuenden Bandes senkrecht zu den Stufenkanten sowie durch die Länge der auf der Fläche vorhandenen Stufenkanten bestimmt. Das Auftreten von asymmetrischen Oszillationen kann daher zwei mögliche Ursachen haben: zum einen unterschiedliche Wirkungsquerschnitte für diffuse Streuung von Adatom- und Fehlstelleninseln gleicher Größe und Form oder zum anderen unterschiedliche Stufenkonzentrationen bei gleichen Bedeckungen.

Der in Abb. 42 auf Seite 103 dargestellte Kurvenverlauf gibt einen ersten experimentellen Hinweis auf die Ursachen der Asymmetrie. Die Abbildung zeigt den Verlauf der normierten In-Phase Peakhöhe als Funktion der Bedeckung bei einer Oberflä-

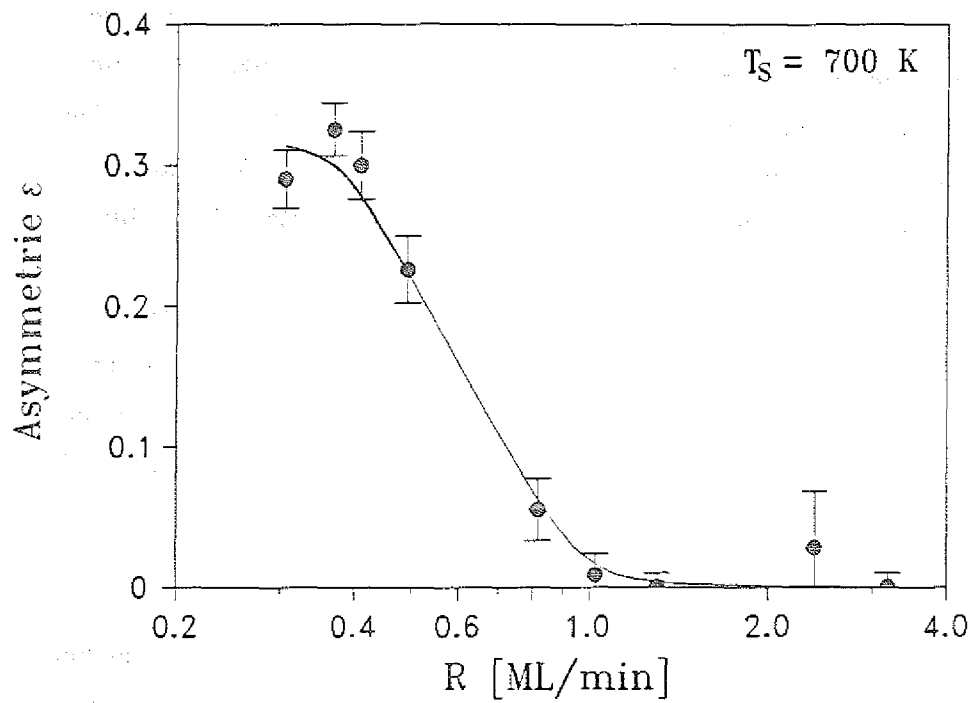


Abb. 40. Asymmetrie der In-Phase Oszillationen als Funktion der Depositionsrate

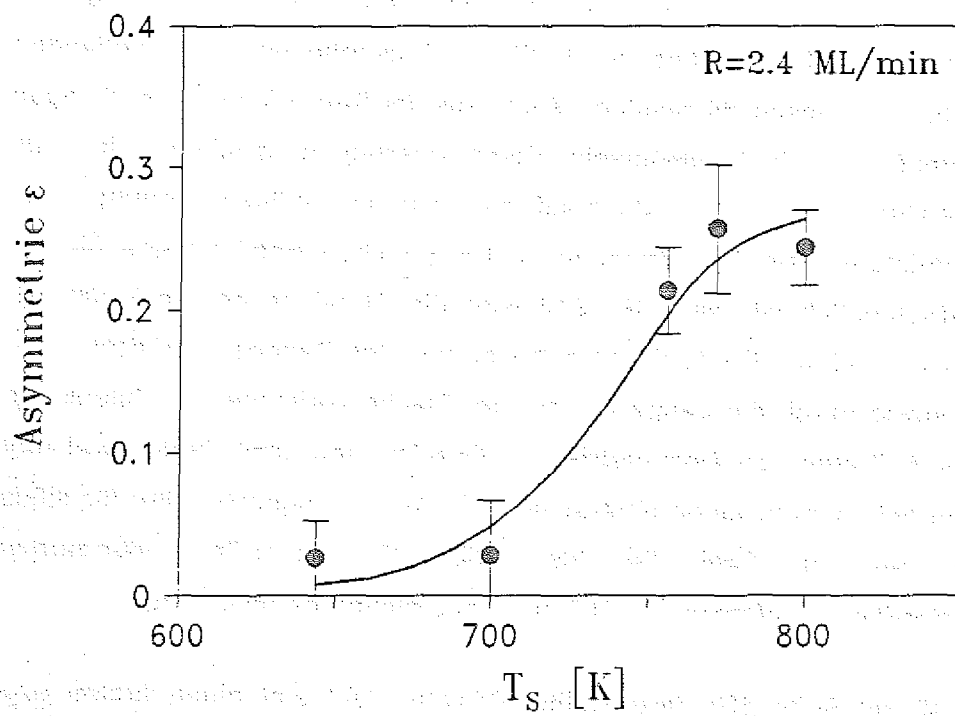


Abb. 41. Asymmetrie der In-Phase Oszillationen als Funktion der Oberflächentemperatur

chentemperatur 274 K. Unter diesen Bedingungen wird keine Asymmetrie der Oszillationen beobachtet. Wären die Streuquerschnitte der Stufenkanten von Adatominseln und Fehlstelleninseln gleicher Größe und Form verschieden, so müßten auch bei tiefsten Temperaturen asymmetrische Oszillationen auftreten. Dies entspricht jedoch nicht den experimentellen Beobachtungen. Die Ursachen für das Entstehen asymmetrischer In-Phase Oszillationen liegen daher in unterschiedlichen Stufendichten von Adatom- und Fehlstelleninseln bei gleichen Bedeckungen (θ_A bzw. θ_F), d.h. in deren unterschiedlichen Größenverteilungen.

Aus der Form der Oszillationen kann geschlossen werden, daß die bei kleinen Bedeckungen vorhandenen Adatominseln eine größere Stufendichte aufweisen als die bei großen Bedeckungen vorhandenen Fehlstelleninseln: die Adatominseln sind bei gleichen Bedeckungen „kleiner“ als die Fehlstelleninseln. Diese Aussage wird auch durch die Ergebnisse von Monte-Carlo Simulationen unterstützt. Bei geeigneter Wahl der Simulationsparameter konnten asymmetrische In-Phase Oszillationen erzeugt werden; die simulierten Oberflächenstrukturen bei θ_A bzw. $1 - \theta_A$ zeigten deutliche Unterschiede der Größenverteilungen von Adatom- und Fehlstelleninseln. Die Reproduzierbarkeit der Asymmetrie durch Monte-Carlo Simulationen ermöglichte es, die Ursachen für die Entstehung der Asymmetrie näher zu untersuchen. Dies wurde durch die Unterdrückung bestimmter Prozesse, die mit einer effektiven Änderung von $\Delta n = 1, 2, 3, \dots$ Nächste-Nachbar Bindungen verbunden sind, realisiert. Die Analyse der mit diesen modifizierten Wachstumsprozessen erzeugten simulierten In-Phase

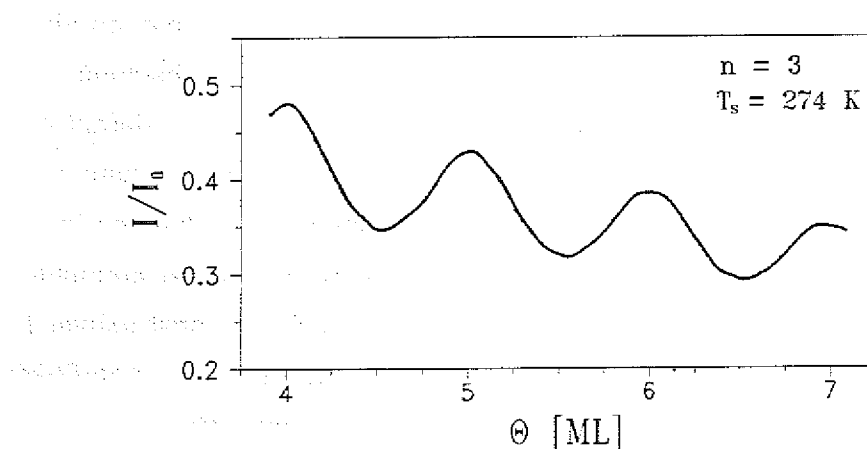


Abb. 42. Symmetrische In-Phase Oszillationen: Die Abbildung zeigt den Verlauf der Höhe des gespiegelten In-Phase Peaks ($n=3$; $\theta_i=68.8^\circ$) als Funktion der Zahl deponierter Pt(111)-Monoschichten. Das Experiment wurde bei einer Oberflächentemperatur von $T_s=274 \text{ K}$ und einer Depositionsrate von $R=2.3 \text{ ML/min}$ durchgeführt.

Oszillationen ergab ein fast völliges Verschwinden der Asymmetrie, wenn Diffusionsschritte ausgeschlossen werden, die mit einer effektiven Änderung von $\Delta n = 2$ Nächste-Nachbar Bindungen verbunden sind [185]./. Dieses Ergebnis deutet an, daß die Asymmetrie im wesentlichen durch das Lösen von Kantenadatomten (siehe Abb. 25 auf Seite 63) hervorgerufen wird. Die Raten, mit denen diese Diffusionsprozesse auf der Fläche ablaufen, wachsen mit der Größe des Einzugsbereiches von Adatomen um eine Stufenkante, d.h. mit der effektiven Diffusionslänge der Adatome. Diese wird jedoch durch die Wachstumsbedingungen beeinflusst, so daß man eine Erhöhung der Asymmetrie erwarten würde, wenn entweder die Oberflächentemperatur erhöht oder die Depositionsrate erniedrigt wird. Abb. 40 und Abb. 41 illustrieren, daß dieses Verhalten auch experimentell beobachtet wird. Diese ersten Untersuchungen scheinen also mit dem experimentellen Befund verträglich zu sein. Für ein detailliertes Verständnis der für die Asymmetrie verantwortlichen Diffusions- und Ausheilmechanismen sind jedoch weitere Untersuchungen notwendig.

5.3 Das 3D-Wachstum im mittleren Temperaturbereich

Untersucht man das Wachstum einer Pt(111)-Fläche bei Oberflächentemperaturen unterhalb von $T_s \approx 460$ K, so beobachtet man im Vergleich zu dem bei hohen Temperaturen auftretenden Verhalten der He-Reflektivität einen qualitativ unterschiedlichen Kurvenverlauf. Dies sei anhand von Abb. 43 auf Seite 105 illustriert. Die Abbildung zeigt den zeitlichen Verlauf der normierten Höhe des gespiegelten He-Peaks unter In-Phase bzw. Anti-Phase Bedingungen während des Wachstums bei einer Oberflächentemperatur von $T_s = 453$ K. Beide Kurvenverläufe weisen einen monotonen Abfall der spekularen Peakhöhe auf, Oszillationen treten nicht mehr auf. Im Abschnitt „He-Streuung und Wachstumsmodi einer realen Fläche“ auf Seite 70 wurde darauf hingewiesen, daß dieses Verhalten der He-Reflektivität typisch für ein 3D-Wachstum der Oberfläche ist, welches durch das simultane Wachstum mehrerer Schichten in unterschiedlichen Niveaus charakterisiert ist. Dies führt einerseits zu einer kontinuierlichen Erhöhung der Stufendichte und andererseits zu zunehmender destruktiver Interferenz von Streubeiträgen der sichtbaren Terrassen. Die In- und Anti-Phase Peakhöhe nimmt daher monoton mit der Zahl deponierter Pt-Atome ab.

Ein 3D-Wachstum von Schichten entsteht, wenn der Sprung von Adatomen über absteigende Stufen auf die darunter liegende Terrasse nicht oder nur mit geringer Wahrscheinlichkeit möglich ist (siehe Abschnitt „Die Wachstumsmodi homoepitaktischer Systeme“ auf Seite 68). Dadurch kann schon lange vor der Vollendung der

ersten wachsenden Schicht, d.h. schon lange vor der Koaleszenz der wachsenden Inseln, eine kritische Adatomdichte in der nächst-höheren Schicht aufgebaut werden, so daß neue Keime auf bereits bestehenden Inseln gebildet werden können. Der zentrale Aspekt bei der Untersuchung des 3D-Wachstums ist die Aufklärung der Ursachen, die für den behinderten oder sogar vollkommen unterdrückten Massentransport zwischen Schichten verantwortlich sind. Dies sei in den nächsten Abschnitten diskutiert.

5.3.1 Der Übergang vom 2D_n-Wachstum zum 3D-Wachstum

In diesem Abschnitt sollen die Ursachen untersucht werden, die für das vollständige Verschwinden der Oszillationen verantwortlich sind. Um dies näher zu beleuchten, werden wir zunächst den Übergang vom 2D_n-Wachstum zum 3D-Wachstum betrachten. Dieser Übergang setzt nicht abrupt ein. Untersucht man das Wachstum einer Pt(111)-Fläche im Temperaturintervall zwischen $T_s \approx 550$ K und $T_s \approx 450$ K, so beobachtet man eine mit abnehmender Temperatur zunehmende Dämpfung der Oszillationen. Darüber hinaus sind die Oszillationen einem monoton fallenden mittleren Intensitätsniveau überlagert, wie auch der in Figur (d) von Abb. 33 auf Seite 89

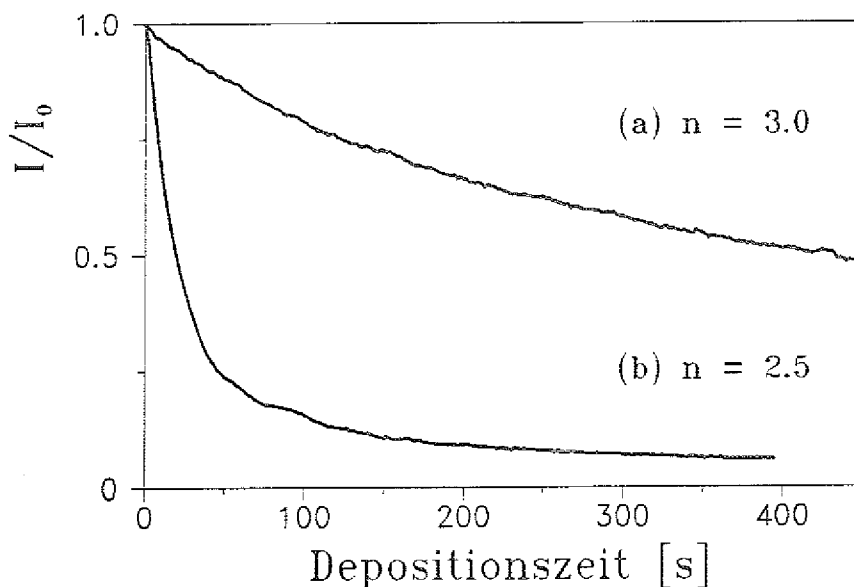


Abb. 43. Zeitlicher Verlauf der In- und Anti-Phase Peakhöhe bei $T_s = 453$ K: Die Kurven geben jeweils den Verlauf der normierten Höhe des gespiegelten He-Peaks unter In-Phase (Figur (a): $n=3$, $\vartheta_i = 68.8^\circ$) bzw. Anti-Phase Bedingungen (Figur (b): $n=2.5$, $\vartheta_i = 72.2^\circ$) als Funktion der Pt-Depositionszeit wieder. Beide Experimente wurden bei einer Depositionsrate von $R = 1.1$ ML/min und einer Oberflächentemperatur von $T_s = 453$ K durchgeführt.

dargestellte Kurvenverlauf zeigt. Bei Oberflächentemperaturen unterhalb von $T_s \approx 460$ K treten keine Oszillationen mehr auf und die zeitliche Entwicklung der Peakhöhe weist nur noch den erwähnten kontinuierlichen Abfall auf. Ein zentrales Resultat der Untersuchungen ist die Beobachtung, daß die Übergangstemperatur praktisch unabhängig von der gewählten Depositionsrate ist: selbst bei einer Variation der Depositionsrate um zwei Größenordnungen ($0.02 \text{ ML/min} \lesssim R \lesssim 2 \text{ ML/min}$) werden im Rahmen des experimentellen Fehlers identische Übergangstemperaturen beobachtet.

Im traditionellen Bild vom homoepitaktischen Wachstum wird das Verschwinden der Oszillationen der bei tiefen Temperaturen reduzierten Mobilität der Adatome zugeordnet [10.,12.,19.,162.,205./]. Wäre dies die Ursache für das 3D-Wachstum der Pt(111)-Fläche, so sollte die Übergangstemperatur von der Depositionsrate abhängen. Dies ist jedoch nicht der Fall. Auch die im Abschnitt „Der Einfluß von Mehrschichteffekten auf die Dämpfung“ auf Seite 95 diskutierten Simulationsrechnungen belegen, daß eine geringere Adatommobilität lediglich zu einer erhöhten Dämpfung der Oszillationen führt. Es ist jedoch nicht möglich, ein völliges Verschwinden der Oszillationen zu erzeugen. Bei einer sehr kleinen Wahrscheinlichkeit P_B zum Brechen einer

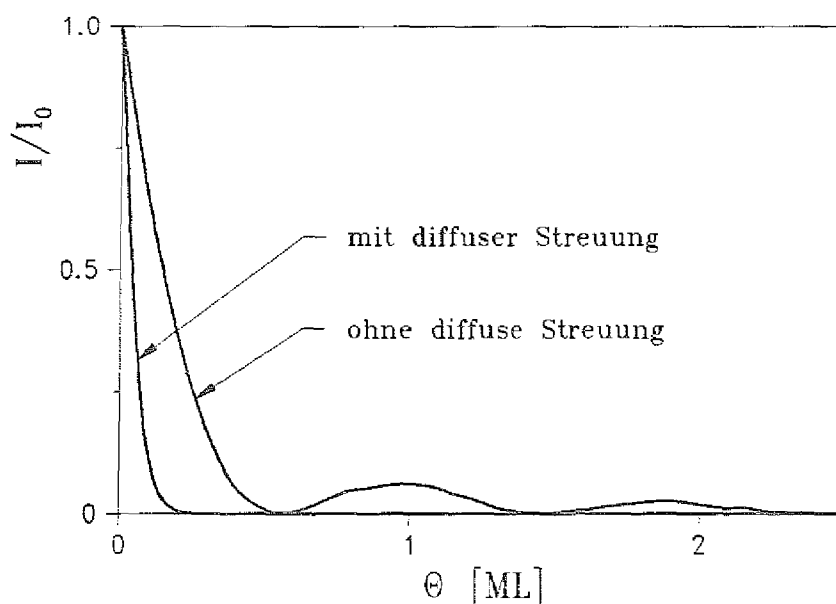


Abb. 44. Anti-Phase Peakhöhe während des Wachstums bei immobilen Adatomen: Die Abbildung zeigt das Resultat einer auf einem Feld von 50×50 Gitterplätzen durchgeführten Monte-Carlo Simulation, in der jegliche Mobilität der deponierten Adatome ausgeschlossen wurde: $P_B=0$, $P_A=0$, $N_D=0$, $N_T=0$. Die Kurven geben jeweils den Verlauf der normierten Anti-Phase Höhe des gespiegelten Deltapeaks als Funktion der Zahl deponierter Monoschichten mit bzw. ohne Berücksichtigung der diffusen Streuung an Defekten wieder.

Bindung ist ein Dimer bereits ein stabiler Keim. Selbst bei dieser „minimalen“ kritischen Clustergröße treten klare Oszillationen der Peakhöhe auf, wie die simulierten Kurvenverläufe in Abb. 37 auf Seite 96 belegen. Eine Reduktion der Zahl N_b der Diffusionsschritte führt ebenfalls nur zu einer erhöhten Dämpfung, nicht jedoch zu dem experimentell beobachteten Verschwinden der Oszillationen.

Es sei jedoch bemerkt, daß die Oszillationen im Extremfall vollkommen immobilisierte Adatome verschwinden. Dies soll anhand der in Abb. 44 auf Seite 106 dargestellten Monte-Carlo Simulation verdeutlicht werden, bei der P_b , N_b und N_t zu Null gesetzt, also jegliche Mobilität ausgeschlossen wurde. Die nach Gl. 4.13 berechnete Höhe des gespiegelten Deltapeaks als Funktion der Bedeckung weist mit wachsender Bedeckung nur einen monotonen Abfall der Reflektivität auf. Der Grund hierfür liegt in der großen Empfindlichkeit der He-Reflektivität für diffuse Streuung. Da die lateralen Dimensionen der entstehenden Strukturen bei völligem Fehlen thermischer Adatommobilität kleiner als $\bar{\Delta} = 12 \text{ \AA}$ sind, wird die gespiegelte He-Peakhöhe ausschließlich durch diffuse Streuung bestimmt. Dies bedeutet jedoch **nicht**, daß dabei kein Massentransport zwischen Schichten möglich ist. Vernachlässigt man nämlich die diffuse Streuung an den Stufenkanten und betrachtet nach Gl. 2.12 lediglich die destruktive Interferenz von den Streubeiträgen der sichtbaren Terrassen, so wird ein 2D-Wachstum festgestellt. Der entsprechende Kurvenverlauf ist in Abb. 44 angedeutet. Die Ursachen für den auftretenden Massentransport zwischen Schichten liegen ausschließlich in der SOS-Bedingung, also in der Vermeidung von Überhängen während der Adsorption der Atome begründet. Ähnliche Beobachtungen wurden übrigens auch in früheren Monte-Carlo Studien gemacht, in denen, allerdings ohne diffuse Streuung zu berücksichtigen, der Einfluß der Depositionsdynamik auf das Wachstum bei fehlender thermischer Mobilität untersucht wurde [206.-208./]. Die detaillierte Untersuchung des Einflusses einzelner Elementarprozesse während der Akkommodation der Adatome zeigte, daß der für das Auftreten der Oszillationen maßgebliche Prozeß das sogenannte „downward-funneling“, d.h. der Sprung von Adatomen auf stabile Bindungsplätze ist. Dies ist gleichbedeutend mit der oben erwähnten SOS-Bedingung.

Wir haben gesehen, daß der während des 3D-Wachstums behinderte Massentransport zwischen Schichten nicht durch die ausschließliche Berücksichtigung mangelnder Mobilität deponierter Adatome erklärt werden kann. Das läßt sich auch qualitativ verstehen, da bei abnehmender Oberflächentemperatur die effektive Diffusionslänge der Adatome und die lateralen Dimensionen der entstehenden

Strukturen in gleichem Maße kleiner werden. Die Wahrscheinlichkeit von Adatomen, die auf einer bereits bestehenden Insel adsorbieren, eine Stufe zu erreichen und auf die nächst-tiefere Terrasse zu springen, sollte daher in erster Näherung unabhängig von der Oberflächentemperatur sein. Berücksichtigt man ausschließlich die Mobilität der Adatome, so würde man bei allen Oberflächentemperaturen einen massiven Massentransport zwischen Schichten, d.h. ein 2D-Wachstum erwarten. Für das Entstehen des 3D-Wachstums müssen also andere Gründe verantwortlich sein.

Eine Möglichkeit, den im Experiment beobachteten monotonen Abfall der gespiegelten He-Peakhöhe zu simulieren, ist die Einführung einer Potentialbarriere, die den Sprung von Adatomen über Stufenkanten auf nächst-tiefere Terrassen unterdrückt. Dazu wurde in der Simulation ein zusätzlicher Parameter P_A eingeführt, der die Wahrscheinlichkeit beschreibt, daß ein Diffusionsversuch auf eine nächst-tiefere Terrasse erfolgreich verläuft: $P_A=0$ entspricht also einer unendlich hohen Potentialbarriere. In Abb. 45 ist ein Simulationsergebnis für $P_A=0$, $P_B=0.1$, $N_D=100$ und $N_T=0$ skizziert. Der im linken Teil der Abbildung dargestellte Kurvenverlauf ist sehr ähnlich zu dem, der bei einer Oberflächentemperatur von $T_s \approx 450$ K experimentell beobachtet wird (siehe Abb. 43 auf Seite 105). Es sei vermerkt, daß die im rechten Teil der Abbildung gezeigte Oberflächenstruktur bei $\theta = 1.5$ ML trotz der relativ hohen Mobilität

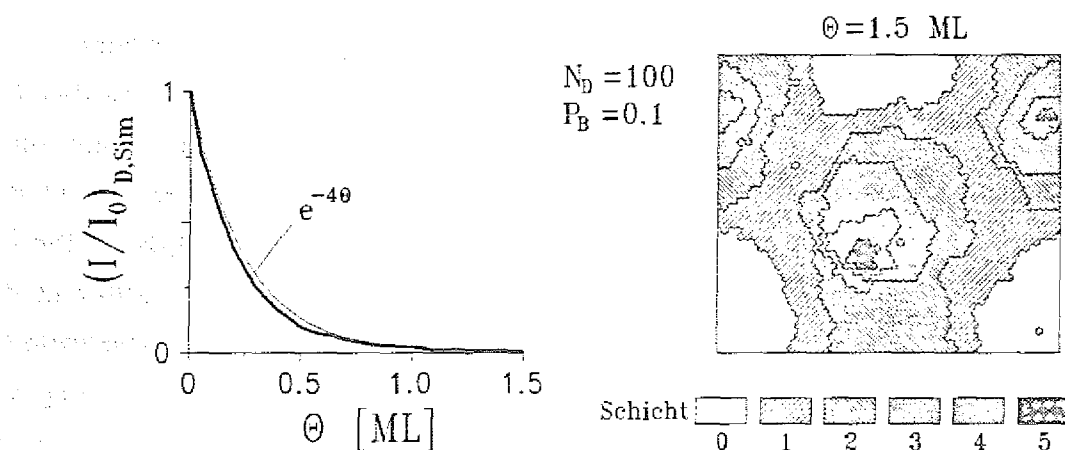


Abb. 45. Die Simulation eines idealen 3D-Wachstums: Der linke Teil der Abbildung zeigt den simulierten Verlauf der normierten Höhe des Deltapeaks unter Anti-Phase-Bedingungen als Funktion der Bedeckung θ . Die dünner gezeichnete Linie gibt den nach Gl. 4.10 erwarteten Verlauf der Peakhöhe für ein ideales 3D-Wachstum wieder. Im rechten Teil der Abbildung ist die Oberflächenstruktur bei $\theta = 1.5$ ML skizziert. Die Simulation wurde auf einem Gitter von 50×50 Bindungsplätzen mit $P_A=0.1$, $N_D=100$ sowie $N_T=0$ durchgeführt. Sprünge von Adatomen über Stufenkanten auf die nächst-tiefere Terrasse wurden durch die Einführung einer unendlich hohen Aktivierungsbarriere unterdrückt ($P_A=0$).

der Adatome eine deutlich höhere Anzahl sichtbarer Niveaus aufweist als die, welche nach $\theta = 5$ ML und geringer Mobilität (oberstes Bild von Abb. 37 auf Seite 96) vorhanden sind.

Diese Ergebnisse zeigen, daß der während des 3D-Wachstums einer Pt(111)-Fläche beobachtete monotone Abfall der spekularen He-Peakhöhe zwanglos durch eine Aktivierungsbarriere erklärt werden kann, die den Sprung von Adatomen über Stufenkanten auf die nächst-tiefere Terrasse (teilweise oder vollkommen) unterdrückt. Für die Existenz der Aktivierungsbarriere gibt es auch andere experimentelle Hinweise. So wurde beispielsweise schon vor einiger Zeit bei der Untersuchung der Diffusion von W-Adatomen auf einer W(110)-Oberfläche mittels Feldionen-Mikroskopie (FIM) eine Reflexion der von oben auf eine Stufenkante treffenden Adatome beobachtet /210.-213./. Diese Reflexion wurde auf die Existenz einer Potentialbarriere an den Stufenkanten zurückgeführt, deren Höhe zu $E_A \approx 200$ meV bestimmt wurde /212./. Ähnliche Beobachtungen wurden übrigens auch bei der Diffusion von Ta-, Re- und Ir-Atomen auf dieser Fläche gemacht. Neuere Untersuchungen der Struktur einer Pt(111)-Fläche während des Zerstäubens von Schichten mittels Rastertunnel-Mikroskopie (RTM) zeigten, daß in dem Temperaturbereich, bei dem ein 3D-Wachstum der Fläche auftritt, Adatomcluster auf den verbleibenden Terrassen in höheren Niveaus entstehen /214./. Diese Cluster verschwinden bei Temperaturen, bei denen ein 2D-Wachstum der Fläche entsteht. Also deuten auch diese Untersuchungen auf die Existenz einer Aktivierungsbarriere an den Stufenkanten hin.

5.3.2 Der Einfluß der Potentialbarriere auf das 3D-Wachstum der Pt(111)-Fläche

In diesem Abschnitt soll der Einfluß der Aktivierungsbarriere auf den Massentransport zwischen Schichten während des 3D-Wachstums einer Pt(111)-Fläche anhand der vorliegenden experimentellen Daten näher betrachtet werden. Wir haben bereits gesehen, daß bei einer praktisch unendlich hohen Potentialbarriere kein Massentransport zwischen Schichten stattfinden kann. In diesem Fall, also bei einem idealen 3D-Wachstum (siehe „He-Streuung und Wachstumsmodi einer realen Fläche“ auf Seite 70), würde man nach Gl. 4.9 einen exponentiellen Abfall der Anti-Phase Peakhöhe als Funktion der Bedeckung mit der Anfangssteigung -4 erwarten. Der Vergleich des im mittleren Temperaturbereich tatsächlich beobachteten Intensitätsabfalls mit dem für den idealen Fall erwarteten erlaubt es daher, Aussagen über den Einfluß der Barriere auf die Morphologie der Oberfläche während des Wachstums zu machen.

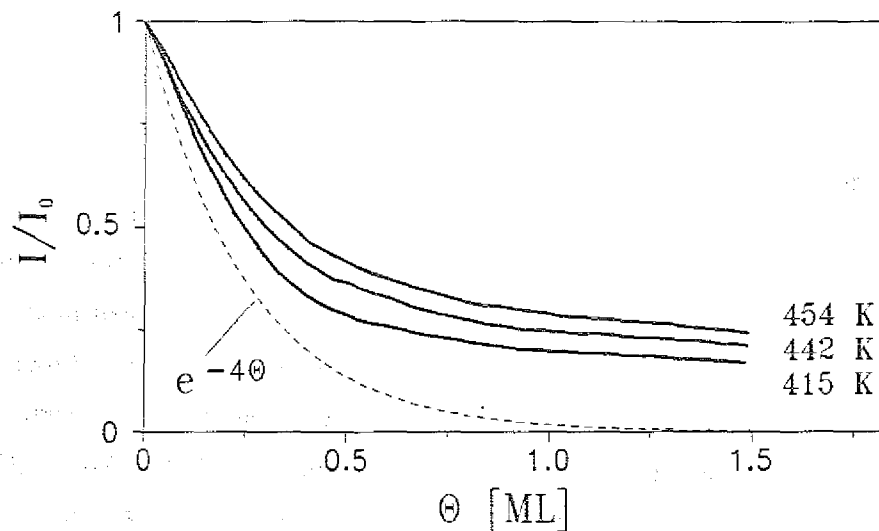


Abb. 46. Der Einfluß der Aktivierungsbarriere auf das 3D-Wachstum: In der Abbildung ist der Verlauf der Anti-Phase Peakhöhe als Funktion der Zahl deponierter Pt(111)-Monoschichten für unterschiedliche Oberflächentemperaturen dargestellt. Die Experimente wurden bei einem Spiegelwinkel von $\vartheta_i = 72.2^\circ$ ($n=2.5$) und einer Depositionsrate von $R=2.1$ ML/min durchgeführt.

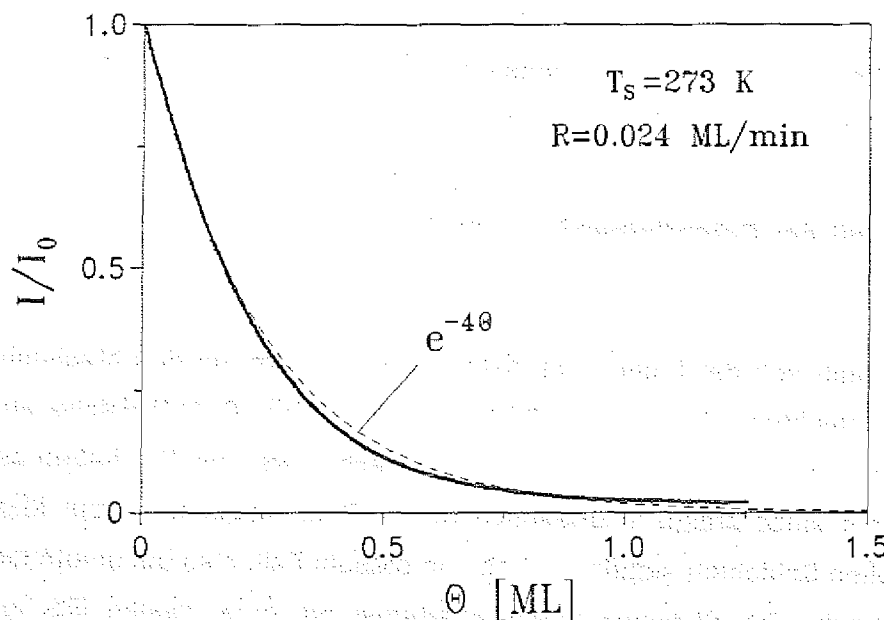


Abb. 47. Experimentelle Beobachtung des idealen 3D-Wachstums: Die durchgezogene Linie zeigt den Verlauf der Höhe des gespiegelten He-Peaks unter Anti-Phase Bedingungen als Funktion der Bedeckung. Das Experiment wurde bei einer Oberflächentemperatur von $T_s = 273$ K und einer Depositionsrate von $R = 0.024$ ML/min durchgeführt. Die gestrichelte Linie gibt die nach Gl. 4.10 für ein ideales 3D-Wachstum erwartete Entwicklung der Höhe des Deltapeaks wieder.

In Abb. 46 auf Seite 110 ist die normierte Anti-Phase Peakhöhe für drei verschiedene Oberflächentemperaturen im mittleren Temperaturbereich als Funktion der Zahl deponierter Monoschichten aufgetragen. Die Experimente wurden bei einer identischen Depositionsrate von $R=2.1$ ML/min durchgeführt. Man beobachtet klare Abweichungen der beobachteten Kurvenverläufe von dem, der bei einem idealen 3D-Wachstum erwartet wird. Diese Abweichungen deuten an, daß während des 3D-Wachstums bei Temperaturen oberhalb $T_s \approx 400$ K ein limitierter Massentransport zwischen Schichten vorliegt. Die Aktivierungsbarriere an den Stufenkanten ist hier nicht unüberwindlich; der Sprung der Adatome auf tiefere Terrassen ist behindert aber nicht vollkommen unterdrückt. Die Wahrscheinlichkeit für das Überwinden der Barriere sollte mit der Oberflächentemperatur ansteigen, so daß man einen mit steigender Temperatur kleiner werdenden Intensitätsabfall mit der Bedeckung erwartet. Wie Abb. 46 auf Seite 110 zeigt, wird dies auch tatsächlich beobachtet. Es sei jedoch vermerkt, daß diese Aussage streng genommen nur für größere Bedeckungen gültig ist. Es ist nicht auszuschließen, daß der Anfangsbereich der Kurvenverläufe durch die endliche Wahrscheinlichkeit beeinflusst wird, mit der sich Adatome an die vor Beginn des Experiments vorhandenen Stufenkanten anlagern, wo sie nicht mehr nachgewiesen werden können. Da die Diffusionslänge der Adatome, und daher die Wahrscheinlichkeit zum Erreichen einer Stufenkante mit der Temperatur größer wird, erwartet man ebenfalls einen mit steigender Temperatur kleiner werdenden Intensitätsabfall. Dieser Effekt spielt jedoch nur bei kleinen Bedeckungen eine Rolle: sind einmal stabile Keime auf der Fläche vorhanden, so wird die Anlagerung der Adatome an Keimränder viel wahrscheinlicher als die Anlagerung an Stufenkanten. Der Vergleich der Kurvenverläufe bei größeren Bedeckungen erlaubt also eine Aussage über die „Überwindbarkeit“ der Aktivierungsbarriere.

Wie wir gesehen haben, wird der Massentransport zwischen Schichten bei $T_s \gtrsim 400$ K nicht vollkommen unterdrückt. Es stellt sich daher die Frage, ob durch geeignete Wahl der Wachstumsbedingungen eine Situation erzeugt werden kann, bei der die Aktivierungsschwelle eine nahezu unüberwindliche Barriere für den Sprung auf tiefere Schichten darstellt. Dies ist tatsächlich möglich, wie Abb. 47 auf Seite 110 zeigt. Untersucht man das Wachstum einer Pt(111)-Fläche bei einer Oberflächentemperatur von $T_s = 273$ K und einer Depositionsrate von $R = 0.024$ ML/min, so wird ein Kurvenverlauf beobachtet, der nahezu identisch zu dem für ein ideales 3D-Wachstum erwarteten ist. Es sei betont, daß keinerlei Anpassung notwendig war, um diese sehr gute Übereinstimmung zu erzielen, da die einzige unbekannte Größe, nämlich die Depositionsrate, durch eine unabhängige Messung bei höheren Oberflä-

chentemperaturen bestimmt wurde. Das Ergebnis dieses Experimentes läßt den Schluß zu, daß die Aktivierungsschwelle an den Stufenkanten unterhalb einer Oberflächentemperatur von $T_s = 275$ K keine Sprünge von Adatomen auf tiefere Schichten zuläßt. Das Wachstum läuft dann ausschließlich durch den Massentransport **innerhalb** der Schichten ab.

Fassen wir die Ergebnisse der letzten beiden Abschnitte in denen das 3D-Wachstum der Pt(111)-Fläche untersucht wurde, noch einmal zusammen. Es wurde gezeigt, daß der für diesen Wachstumsmodus charakteristische monotone Abfall der Peakhöhe nur durch eine Potentialbarriere für den Sprung der Adatome über Stufenkanten auf tiefere Terrassen erklärt werden kann. Experimentell wurde festgestellt, daß diese Barriere bei Temperaturen unterhalb von $T_s \approx 275$ K und niedrigen Depositionsraten praktisch unüberwindlich ist. Der Massentransport läuft dann ausschließlich innerhalb der Schichten ab. Oberhalb einer Oberflächentemperatur von $T_s \approx 300$ K findet der Massentransport zwischen Schichten mit geringer Wahrscheinlichkeit statt. Erst ab Temperaturen oberhalb von $T_s \approx 460$ K werden Oszillationen der He-Reflektivität, d.h. ein 2D-Wachstum beobachtet. Hier wird die thermische Energie der Adatome zu hoch, um von der Aktivierungsbarriere an dem Sprung auf tiefere Terrassen gehindert zu werden: der Massentransport zwischen Schichten wird wachstumsbestimmend. Der Übergang vom 2D-Wachstum zum 3D-Wachstum wird demnach ausschließlich durch thermische Effekte verursacht; er kann **nicht** durch die Größe der entstehenden Inseln, d.h. durch die Depositionsrate beeinflusst werden.

5.4 Das Wiedereinsetzende 2D-Wachstum bei tiefen Temperaturen

In den letzten Abschnitten dieses Kapitels wurden die Wachstumsmodi der Pt(111)-Fläche diskutiert, die auf der Basis des durch eine Vielzahl früherer Untersuchungen geprägten traditionellen Bildes vom homoepitaktischen Wachstum von Schichten erwartet wurden. Die im bisherigen Verlauf der Diskussion vorgestellten Ergebnisse scheinen darauf hinzudeuten, daß das traditionelle Bild vom Wachstum auch für die Pt(111)-Fläche gültig ist, wenn man es entscheidend modifiziert: das 3D-Wachstum entsteht nicht durch mangelnde Mobilität der Adatome, sondern wird durch eine Aktivierungsbarriere an den Stufenkanten verursacht, durch die der Sprung von Adatomen auf tiefere Terrassen behindert oder sogar vollkommen unterdrückt wird. Auf der Grundlage dieser Vorstellung würde man unterhalb einer Oberflächentemperatur von $T_s \approx 460$ K ausschließlich das Wachstum dreidimensionaler Strukturen erwarten.

Im Experiment wird jedoch ein anderes Verhalten festgestellt. Untersucht man das Wachstum der Pt(111)-Fläche bei Oberflächentemperaturen unterhalb von $T_s \approx 340$ K, so treten entgegen den Erwartungen ausgeprägte zeitliche Oszillationen der Peakhöhe auf. Dies ist in Abb. 48 auf Seite 113 für eine Oberflächentemperatur von $T_s \approx 275$ K und eine Depositionsrates von $R \approx 2$ ML/min dargestellt. Vergleicht man die hier beobachteten Oszillationen mit denen, die bei hohen Temperaturen beobachtet werden (siehe Abb. 33 auf Seite 89), so stellt man eine deutlich höhere Amplitude der ersten Oszillationen fest. Aus diesem Verhalten läßt sich schließen, daß die Pt(111)-Fläche bei $T_s = 275$ K und $R \approx 2$ ML/min ein 2D-Wachstum zeigt, also der massive Massentransport zwischen Schichten strukturbestimmend wird. Dieser Wachstumsmodus soll im weiteren als 2D_r-Wachstum bezeichnet werden.

Im Abschnitt „Der Übergang vom 2D_r-Wachstum zum 3D-Wachstum“ auf Seite 105 wurde gezeigt, daß man auch bei völligem Fehlen von Adatommobilität einen Massentransport zwischen Schichten erwarten würde. Dieser führt jedoch nicht zu dem Auftreten von Oszillationen der He-Peakhöhe, da die entstehenden Strukturen

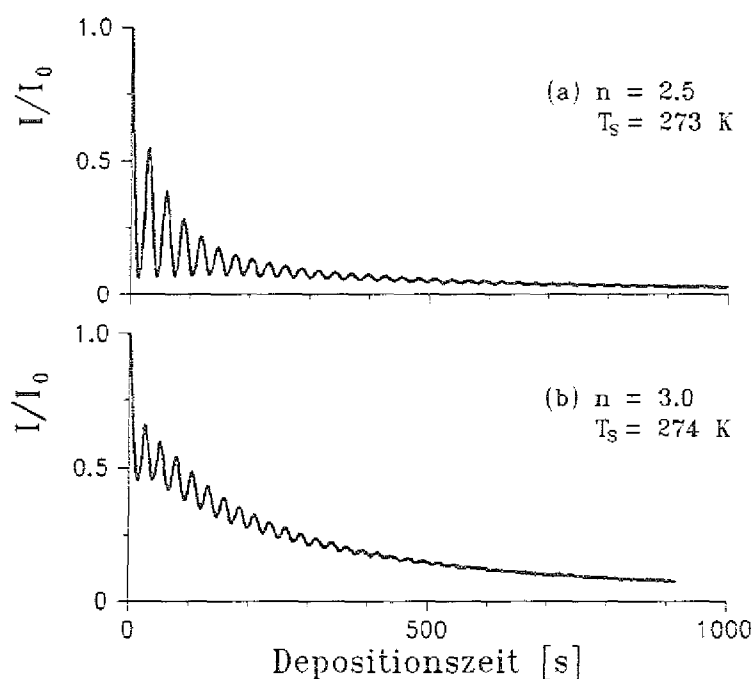


Abb. 48. He-Reflektivität während des Wiedereinsetzenden 2D-Wachstums der Pt(111)-Fläche: Die Abbildung zeigt den Verlauf der Höhe des gespiegelten He-Peaks unter Anti-Phase (Figur (a): $n=2.5$, $\vartheta_i=72.2^\circ$) bzw. In-Phase Bedingungen (Figur (b): $n=3$, $\vartheta_i=68.1^\circ$) als Funktion der Depositionszeit. Die Experimente wurden bei einer Oberflächentemperatur von $T_s=274$ K und einer Depositionsrates von $R=2.1$ ML/min (a) bzw. $R=2.3$ ML/min (b) durchgeführt.

ausschließlich diffus streuen. Hier liegt jedoch eine andere Situation vor: zum einen sind die Adatome bei den betrachteten Oberflächentemperaturen hochmobil und zum anderen streuen die während des Wachstums entstehenden Inseln nicht ausschließlich diffus, wie die unterschiedlichen Kurvenverläufe für In- und Anti-Phase Bedingungen zeigen. Das Wiedereinsetzen des 2D-Wachstums bei tiefen Temperaturen stellt also einen neuen Effekt dar.

Der Übergang vom 3D-Wachstum zum 2D_c-Wachstum setzt bei der hier gewählten Depositionsrate bei Oberflächentemperaturen von $T_s \approx 340$ K ein. In Analogie zu den beiden anderen Übergängen (Stufenwanderung $\rightarrow$ 2D_n bzw. 2D_n $\rightarrow$ 3D) ist auch dieser Übergang kontinuierlich, wie es auch in Abb. 49 zu erkennen ist. Die Abbildung zeigt den Verlauf der Höhe des gespiegelten Anti-Phase Peaks ($n=2.5$, $\vartheta_i=72.2^\circ$) als

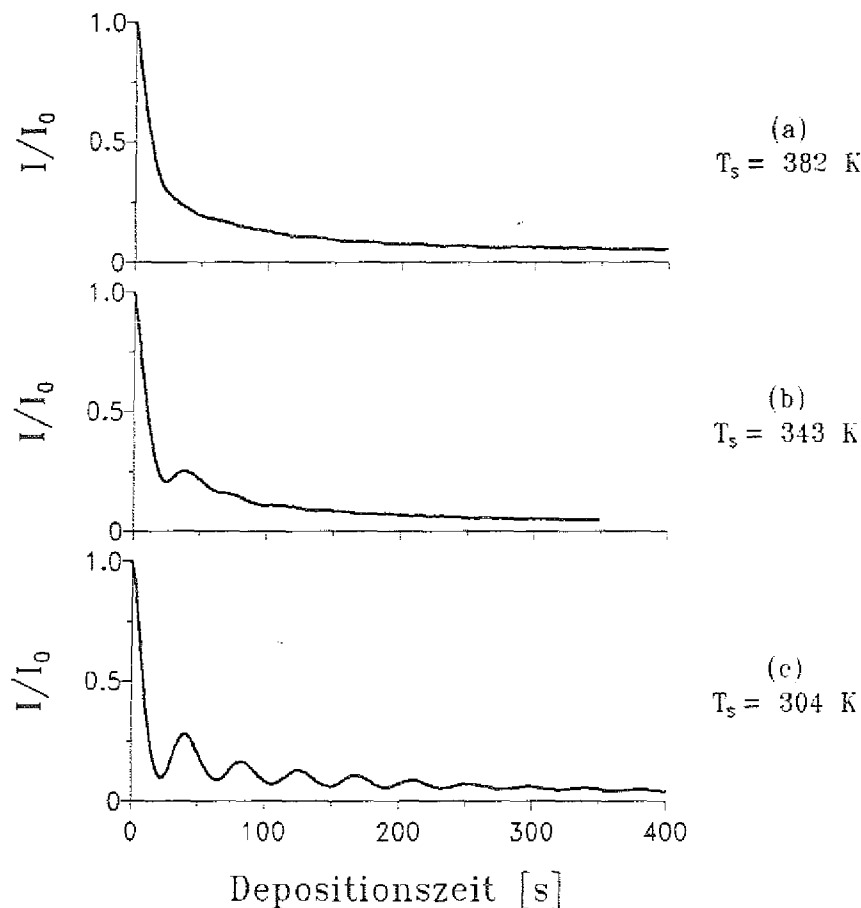


Abb. 49. Zeitliche Entwicklung der Anti-Phase Peakhöhe während des Übergangs vom 3D- zum 2D_c-Wachstum: Dargestellt ist der Verlauf der normierten Höhe des gespiegelten Anti-Phase Peaks ($n=2.5$, $\vartheta_i=72.2^\circ$) als Funktion der Depositionszeit für unterschiedliche Oberflächentemperaturen ($T_s=382$ K (a), $T_s=343$ K (b) und $T_s=304$ K (c)). Alle Experimente wurden bei einer Depositionsrate von $R=1.4$ ML/min durchgeführt.

Funktion der Pt-Depositionszeit für drei verschiedene Oberflächentemperaturen. Der monotone Abfall der Peakhöhe bei $T_s = 382$ K (Figur (a)) deutet ein 3D-Wachstum der Oberfläche an. Eine Erniedrigung der Oberflächentemperatur führt zu der Entstehung ausgeprägter Oszillationen der He-Reflektivität, die mit fallender Temperatur eine größere Amplitude aufweisen. Bei $T_s \approx 275$ K und der hier gewählten Depositionsrate wird eine maximale Oszillationsamplitude von etwa 60 % beobachtet (siehe Abb. 48 auf Seite 113). Bei einer weiteren Erniedrigung der Temperatur nimmt die Amplitude der Oszillationen wieder ab; dennoch treten auch bei der niedrigsten hier untersuchten Temperatur von $T_s \approx 80$ K noch Oszillationen auf.

Das hier beobachtete Verhalten ist selbst durch das oben modifizierte traditionelle Bild vom homoepitaktischen Wachstum nicht zu erklären, da die Aktivierungsbarriere an den Stufenkanten bei Temperaturen unterhalb von $T_s \approx 340$ K den Sprung von Ad-atomen auf tiefere Terrassen relativ effektiv unterdrücken müßte. Es ist daher notwendig, weitere Modifikationen des traditionellen Bildes vom Wachstum vorzunehmen. In den folgenden Abschnitten soll untersucht werden, welche Prozesse für das Auftreten des $2D_e$ -Wachstums verantwortlich sind.

5.4.1 Der Einfluß von Verunreinigungen auf das $2D_e$ -Wachstum

Bevor wir uns in den nächsten Abschnitten näher mit den Ursachen für das Auftreten des $2D_e$ -Wachstums beschäftigen, soll zunächst der Einfluß von Verunreinigungen auf das Wachstum von Schichten diskutiert werden. Das Ziel hierbei ist der Nachweis, daß das hier beobachtete $2D_e$ -Wachstum charakteristisch für die reine Pt(111)-Fläche ist, also nicht durch minimale Konzentrationen adsorbierter Verunreinigungen hervorgerufen wird.

Betrachtet man die Gesamtkonzentration θ_K der aus dem Restgas adsorbierten Kontaminationen auf einer Zeitskala t_{exp} , während der die Experimente durchgeführt werden, so ist θ_K durch die Partialdrücke p_i der Moleküle der Spezies i mit der Masse m_i bestimmt [215]:

$$\theta_K = \sum_i \theta_i = t_{exp} \cdot \sum_i \frac{S_i p_i}{\sqrt{2\pi m_i k T}} \quad [5.2]$$

T bezeichnet hier die Gastemperatur, k die Boltzmann-Konstante und S_i die Haftwahrscheinlichkeit der Gasmoleküle der Spezies i auf der Oberfläche. Letztere ist im allgemeinen von der Molekülspezies sowie von der Struktur, der chemischen Zusammensetzung und der Temperatur der Oberfläche abhängig. Da sich gerade die Struktur während eines Wachstumsexperimentes sehr stark ändern kann, läßt sich nur eine Abschätzung der Zahl adsorbierender Fremdatome angeben. Dies ist in der folgenden Tabelle für typische Verunreinigungen der Pt(111)-Fläche und Partialdrücke unter Aufdampfbedingungen durchgeführt. Die Werte für θ_i beziehen sich dabei auf eine maximale Meßdauer von $t_{\text{exp}} = 300$ s.

	H ₂ O	H ₂	CO	O ₂
T_{Des} [K]	~200 /216./	~400 /80./	~500 /217./	~1000 /124./
S_i	~0.7 /218./	~0.1 /34./	0.79 /217./	0.038 /219./
p_i [mbar]	10^{-10}	10^{-10}	10^{-10}	$< 10^{-13}$
θ_i ($t_{\text{exp}} = 300$ s)	$5.0 \cdot 10^{-3}$	$2.2 \cdot 10^{-3}$	$4.5 \cdot 10^{-3}$	$< 2.0 \cdot 10^{-6}$

Abschätzung der während der Zeit t_{exp} inkorporierten Kontaminationen für typische Verunreinigungen und Partialdrücke: T_{Des} gibt die Temperatur an, ab der die jeweiligen Spezies mit erheblicher Rate desorbieren können. Die Werte für S_{CO} und S_{O_2} wurden für eine Oberflächentemperatur von $T_s = 300$ K, S_{H_2} für $T_s = 155$ K und eine Stufenkonzentration von $\theta_0 \approx 4$ % bestimmt.

Die berechneten Konzentrationen zeigen, daß gerade bei den hier betrachteten Temperaturen ($T_s \leq 350$ K) eine sorgfältige Kontrolle des Einflusses der Restgasadsorption auf das Wachstum von Schichten erfolgen muß, da die Zahl der adsorbierenden Spezies größer als die bei hohen Temperaturen ist. Aus diesem Grund wurde der Einfluß der während eines Experimentes aus dem Restgas adsorbierten Verunreinigungen gezielt untersucht.

Das Ergebnis des in Abb. 50 auf Seite 117 illustrierten Experimentes belegt, daß koadsorbierte Verunreinigungen tatsächlich zu einer Beeinflussung des Wachstumsmodi führen können. In der Abbildung ist jeweils der Verlauf der normierten Anti-Phase Peakhöhe als Funktion der Depositionszeit dargestellt. Bei der hier gewählten Oberflächentemperatur von $T_s = 380$ K wird unter „reinen“ Bedingungen ein 3D-Wachstum der Fläche beobachtet. Dies geht aus der dünner gezeichneten Linie hervor, bei der während des Wachstums lediglich das Restgas druckbestimmend war. Die dicker gezeichnete Linie wurde während des Wachstums in einer Atmosphäre von $p_{\text{O}_2} = 8 \cdot 10^{-9}$ mbar O₂ beobachtet. Die dabei auftretenden Oszillationen der

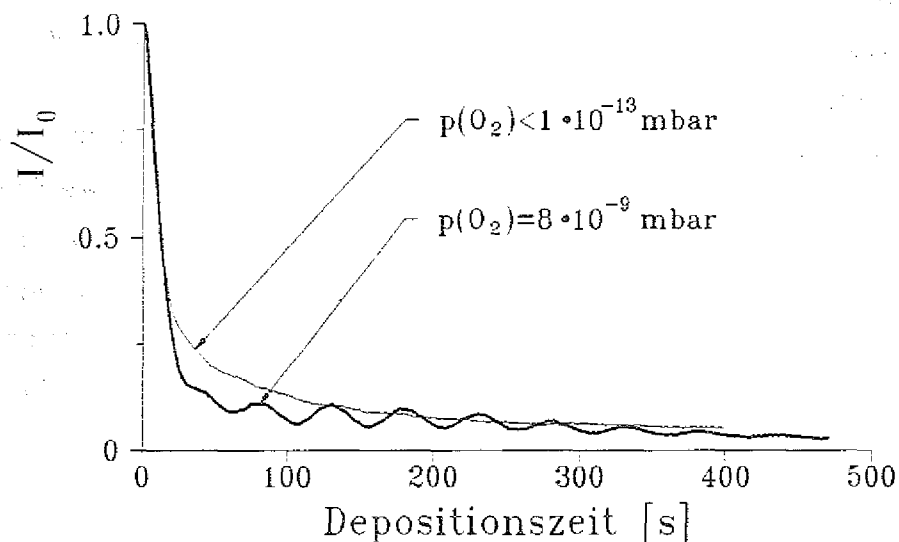


Abb. 50. Der Einfluß koadsorbierten Sauerstoffs auf das Wachstum einer Pt(111)-Fläche: Die Abbildung zeigt den Verlauf der normierten Höhe des gespiegelten Anti-Phase Peaks ($n=2.5$, $\vartheta_i=72.2^\circ$) als Funktion der Depositionszeit bei einer Oberflächentemperatur von $T_s=380$ K. Dargestellt ist die zeitliche Variation der He-Reflektivität, welche unter „reinen“ Bedingungen ($p_{O_2} < 10^{-13}$ mbar) sowie in einer Sauerstoffatmosphäre von $p_{O_2}=8 \cdot 10^{-9}$ mbar beobachtet wird.

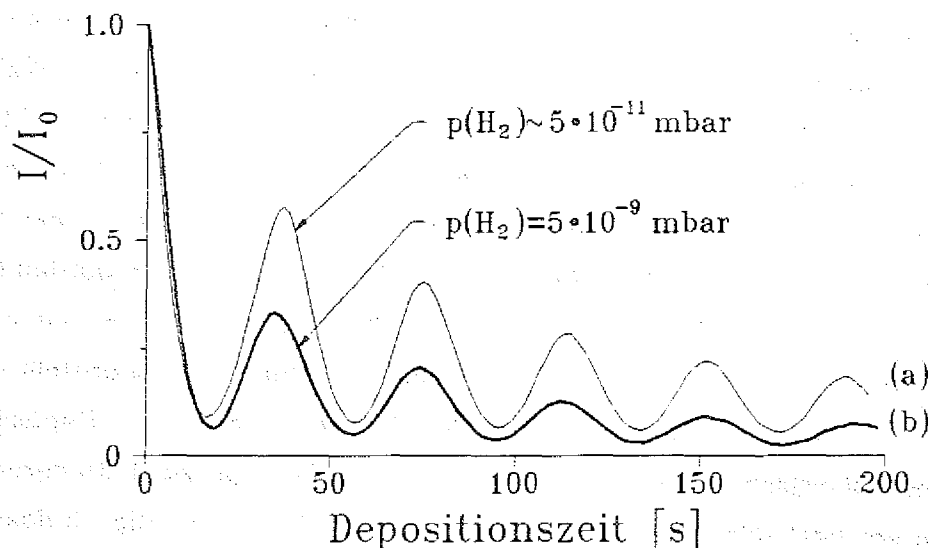


Abb. 51. Der Einfluß koadsorbierten Wasserstoffs auf das $2D_2$ -Wachstum einer Pt(111)-Fläche: Dargestellt ist die zeitliche Entwicklung der normierten Höhe des gespiegelten He-Peaks ($n=2.5$, $\vartheta_i=72.2^\circ$) bei einer Oberflächentemperatur von $T_s=274$ K. Während die mit (a) bezeichnete Figur den Kurvenverlauf widerspiegelt, der ohne zusätzlich Begasung von Wasserstoff beobachtet wird, wurde die Oberfläche bei dem mit (b) bezeichneten Experiment während des Wachstums einer Atmosphäre von $5 \cdot 10^{-9}$ mbar H_2 ausgesetzt.

He-Reflektivität zeigen, daß die Anwesenheit koadsorbierten Sauerstoffs zu einem erhöhten Massentransport zwischen Schichten führt. Dieses Verhalten läßt sich auf der Basis der bisher diskutierten Ergebnisse gut erklären, wenn man annimmt, daß die vorzugsweise an Stufenkanten gebundenen Sauerstoffatome /220.,221./ die Aktivierungsbarriere reduzieren, so daß der Sprung von Adatomen auf tiefere Terrassen erheblich wahrscheinlicher wird. Der Grund hierfür könnte entweder in einer adsorbatinduzierten Absenkung der Potentialbarriere an den Stufenkanten liegen, die durch die Änderung der lokalen Elektronendichteverteilung der Fläche entsteht, oder, wie in den nächsten Abschnitten näher diskutiert wird, mit einer „Aufräuhung“ der Stufenkanten verknüpft sein. Ähnliche Experimente hinsichtlich des Einflusses von koadsorbiertem CO auf das Wachstum der Pt(111)-Fläche zeigten übrigens den gegenteiligen Effekt: der Massentransport zwischen Schichten wird durch adsorbiertes CO unterdrückt.

Die Resultate dieser Untersuchungen könnten die Vermutung nahelegen, daß auch das $2D_s$ -Wachstum der Pt(111)-Fläche durch die Anwesenheit von Kontaminationen induziert wird. Der Einfluß koadsorbierten Sauerstoffs kann hier jedoch keine Rolle spielen, da der O_2 -Partialdruck sehr klein ist. Auch koadsorbiertes CO kann nicht für das Auftreten von Oszillationen verantwortlich sein, da CO zu einer Behinderung des Massentransportes zwischen Schichten führt. Die einzig mögliche Spezies, die also als Ursache für den Übergang vom 3D-Wachstum zum $2D_s$ -Wachstum in Frage kommt, ist koadsorbiertes Wasserstoff. Wie aus der Tabelle hervorgeht, adsorbiert Wasserstoff gerade unterhalb der Temperatur, bei der die ersten Anzeichen von Oszillationen beobachtet werden ($T_s \approx 340$ K). Darüber hinaus ist Wasserstoff die druckbestimmende Spezies im Restgas, so daß während eines Experimentes ein nicht vernachlässigbarer Anteil von Wasserstoff auf der Fläche akkumuliert werden kann. Um zu überprüfen, ob dies die Ursache für das $2D_s$ -Wachstum ist, wurde das in Abb. 51 auf Seite 117 skizzierte Kontrollexperiment durchgeführt. Dargestellt ist jeweils der Verlauf der normierten Anti-Phase Peakhöhe als Funktion der Depositionszeit bei einer Oberflächentemperatur von $T_s = 274$ K. Figur (a) zeigt wiederum die Entwicklung der Peakhöhe unter „reinen“ Bedingungen, bei dem lediglich das Restgas unter Aufdampfbedingungen druckbestimmend ist ($p \approx 10^{-10}$ mbar). Der in Figur (b) dargestellte Kurvenverlauf hingegen wurde während des Wachstums in einer Atmosphäre von $p_{H_2} = 5 \cdot 10^{-9}$ mbar H_2 beobachtet. Die Unterschiede der beiden Kurven belegen, daß koadsorbiertes Wasserstoff tatsächlich zu einer Beeinflussung des $2D_s$ -Wachstums führt. Die Wasserstoffadsorption führt jedoch zu Oszillationen mit **kleinerer** Amplitude: der Massentransport zwischen Schichten wird nicht gefördert,

sondern behindert. Dieses Ergebnis läßt den Schluß zu, daß das Wiedereinsetzen eines Schicht-für-Schicht Wachstums bei tiefen Temperaturen charakteristisch für die reine Pt(111)-Fläche ist.

5.4.2 Der Einfluß der Inselgröße auf das 2D_s-Wachstum

Nachdem gezeigt wurde, daß das 2D_s-Wachstum charakteristisch für die reine Pt(111)-Fläche ist, sollen im weiteren Verlauf der Diskussion die Ursachen untersucht werden, die für diesen Wachstumsmodus verantwortlich sind. Im Abschnitt „Die Wachstumsmodi homoepitaktischer Systeme“ auf Seite 68 wurde bereits diskutiert, daß es für das Entstehen eines 3D- bzw. 2D-Wachstums entscheidend ist, ob die Adatome neue Nukleationszentren auf bereits bestehenden Keimen bilden können. Die Beobachtung eines 3D-Wachstums bei Temperaturen unterhalb von $T_s \approx 460$ K zeigt, daß unter diesen Bedingungen die Nukleation auf höheren Terrassen möglich ist. Als Ursache hierfür wurde die Existenz einer Aktivierungsbarriere postuliert, die den Sprung von Adatomen auf tiefere Terrassen behindert. Adatome in höheren Niveaus werden mit hoher Wahrscheinlichkeit an den Stufenkanten reflektiert, so daß der Massentransport zwischen Schichten behindert wird. Eine Erniedrigung der Oberflächentemperatur hätte dann zur Folge, daß der Sprung von Adatomen auf tiefere Schichten immer effektiver unterdrückt wird, so daß schließlich kein Massentransport zwischen Schichten mehr stattfinden kann. Diese Erwartung steht jedoch im Widerspruch zu den experimentellen Beobachtungen, in denen selbst bei einer Oberflächentemperatur von $T_s = 80$ K noch ein massiver Massentransport zwischen Schichten, also ein 2D-Wachstum festgestellt wurde.

Der Schlüssel zum Verständnis der Ursachen für das Auftreten des 2D_s-Wachstums liegt in der Betrachtung der lateralen Dimensionen der während des Wachstums bei unterschiedlichen Temperaturen entstehenden Strukturen. Im Abschnitt „Die ersten Stadien des Wachstums von Schichten“ auf Seite 66 wurde bereits diskutiert, daß die Dichte der in den Frühstadien des Wachstums entstehenden Nukleationskeime durch die Diffusionslänge der Adatome, d.h. durch die Oberflächentemperatur und die Depositionsrates bestimmt wird. Bei niedrigeren Temperaturen sind die deponierten Adatome weniger mobil. Das führt zu größeren Nukleationsdichten und somit zu der Entstehung von Strukturen kleinerer lateraler Dimensionen, wie auch ein Vergleich der Minima in den Anti-Phase Oszillationen bei $T_s = 650$ K und $T_s = 275$ K zeigt (siehe Abb. 32 auf Seite 86 und Abb. 48 auf Seite 113). Ein ähnliches Verhalten entsteht auch, wenn die Depositionsrates R erhöht wird, da die Zeitkonstante τ (siehe Gl. 4.5)

proportional zu $1/R$ ist. Ein experimentelles Beispiel hierfür sind die in Abb. 31 auf Seite 84 dargestellten Kurvenverläufe bei hohen Temperaturen. Zusammenfassend führt also sowohl die Erniedrigung der Oberflächentemperatur als auch die Erhöhung der Depositionsrate zu kleineren lateralen Dimensionen der während des Wachstums entstehenden Strukturen.

Diese Überlegungen lassen vermuten, daß das Wiedereinsetzen des Schicht-für-Schicht Wachstums bei tiefen Temperaturen mit der Existenz kleiner Inseln verknüpft ist. Die Ursachen für das Entstehen des $2D_s$ -Wachstums wären dann in einer im weitesten Sinne erhöhten „Durchlässigkeit“ der Aktivierungsbarriere an den Stufenkanten kleiner Inseln zu suchen, so daß massiver Massentransport zwischen Schichten stattfinden kann. Das naheliegende Kontrollexperiment zur Überprüfung dieser Hypothese ist die Untersuchung des Wachstums bei einer Variation der mittleren Terrassenbreite der entstehenden Strukturen. Dies läßt sich durch eine Ände-

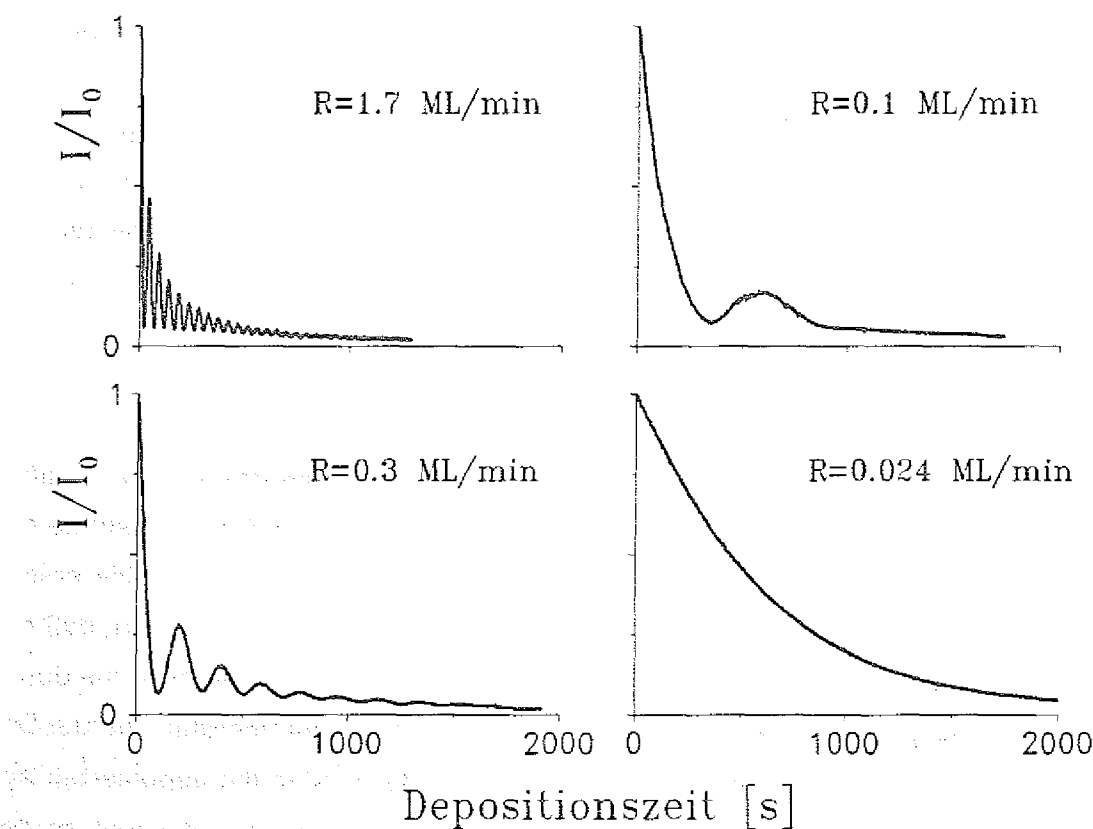


Abb. 52. Der Übergang vom $2D_s$ -Wachstum zum $3D$ -Wachstum durch die Erniedrigung der Depositionsrate: Aufgetragen ist jeweils die normierte Höhe des gespiegelten He-Peaks unter Anti-Phase Bedingungen ($n = 2.5$, $\vartheta_i = 72.2^\circ$) als Funktion der Depositionszeit für eine Oberflächentemperatur von $T_s = 273 \pm 2 \text{ K}$ und unterschiedliche Depositionsraten.

rung der Depositionsrates in einem weiten Bereich realisieren; die Oberflächentemperatur sollte hierbei konstant gehalten werden, um den Einfluß thermischer Effekte auf die Durchlässigkeit der Aktivierungsbarriere auszuschließen. Als Ergebnis würde man einen graduellen Übergang vom 2D-Wachstum bei hohen Depositionsraten (kleinen Inseln) zu einem 3D-Wachstum bei niedrigeren Depositionsraten (großen Inseln) erwarten. Das in Abb. 52 auf Seite 120 dargestellte Ergebnis dieses Kontrollexperimentes weist tatsächlich das erwartete Verhalten auf. Die ausgeprägten Oszillationen der Anti-Phase Peakhöhe bei $R \approx 2$ ML/min zeigen, daß bei hohen Depositionsraten ein 2D-Wachstum entsteht. Die Erniedrigung der Depositionsrates führt zu einem kontinuierlichen Übergang von einem oszillierenden Verhalten zu einem monotonen Abfall der Peakhöhe, d.h. zu einem 3D-Wachstum bei $R \approx 0.02$ ML/min. Die bei einer Depositionsrates von $R = 0.024$ ML/min beobachtete Kurve wurde bereits bei der Untersuchung des 3D-Wachstums im mittleren Temperaturbereich diskutiert (siehe Abb. 47 auf Seite 110). Dort wurde nachgewiesen, daß unter diesen Bedingungen ein ideales 3D-Wachstums vorliegt, bei dem die Aktivierungs-

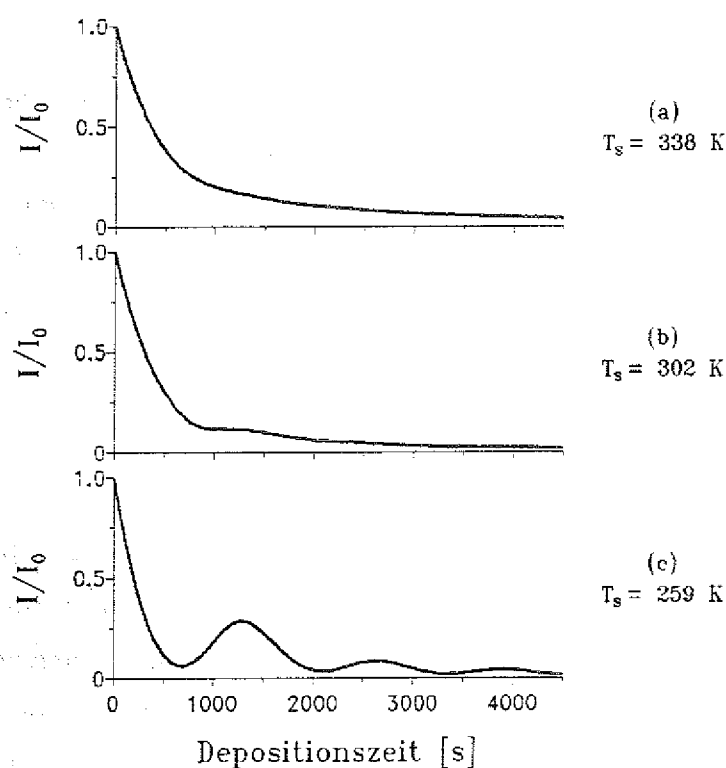


Abb. 53. Der Übergang vom 3D- zum 2D-Wachstum durch die Variation von T_s bei niedrigen Depositionsrates: Für unterschiedliche Oberflächentemperaturen ist die bei konstanter Depositionsrates ($R = 0.045$ ML/min) beobachtete Höhe des gespiegelten He-Peaks unter Anti-Phase Bedingungen ($n = 2.5$, $\vartheta_i = 72.2^\circ$) als Funktion der Depositionszeit dargestellt.

barriere an den Stufenkanten für die Adatome praktisch unüberwindlich ist. Das Resultat dieses Kontrollexperimentes zeigt eindeutig, daß die Ursachen für das Auftreten des $2D_{\text{r}}$ -Wachstums in einer bei kleinen Inseln erhöhten „Durchlässigkeit“ der Aktivierungsbarriere liegen.

Wegen der zentralen Bedeutung dieses experimentellen Ergebnisses hinsichtlich der Aufklärung der für das $2D_{\text{r}}$ -Wachstum verantwortlichen Prozesse kommen wir noch einmal auf den Einfluß von Verunreinigungen auf das Wachstum zurück. Betrachtet man die in Abb. 52 dargestellten Kurvenverläufe, so stellt man fest, daß die Oszillationen auch bei höheren Depositionsraten, bei denen sie deutlich in Erscheinung treten, nach ungefähr 1000-1500 s verschwinden. Man könnte vermuten, daß die Ursache hierfür in einer Akkumulation von Verunreinigungen (CO , H_2) zu suchen ist, die nach einiger Zeit zu einer vollständigen Unterdrückung des $2D$ -Wachstums führt. Diese Möglichkeit wurde durch die Beobachtung des Wachstums bei unterschiedlichen Oberflächentemperaturen, aber sehr kleinen Depositionsraten von $R = 0.046$ ML/min überprüft. Das in Abb. 53 auf Seite 121 dargestellte experimentelle Ergebnis zeigt, daß die Erniedrigung der Oberflächentemperatur auch bei niedrigen Depositionsraten einen kontinuierlichen Übergang vom $3D$ -Wachstum ($T_s = 338$ K) zum $2D_{\text{r}}$ -Wachstum ($T_s = 259$ K) zur Folge hat. Die bei $T_s = 259$ K entstehenden Oszillationen werden über einen Zeitraum von wenigstens 4000 s beobachtet. Dieser Zeitraum ist mindestens einen Faktor drei länger als der, nach dem die Oszillationen in Abb. 52 verschwunden sind. Das bedeutet, daß der Übergang von $2D_{\text{r}}$ -Wachstum zum $3D$ -Wachstum, d.h. das Verschwinden der Oszillationen bei einer Erniedrigung der Depositionsrate, ebenfalls charakteristisch für die **reine** Pt(111)-Fläche ist.

5.4.3 Die Durchlässigkeit der Potentialbarriere

Das zentrale experimentelle Ergebnis bei der Untersuchung des $2D_{\text{r}}$ -Wachstums der Pt(111)-Fläche ist der Nachweis, daß bei tiefen Oberflächentemperaturen nur bei kleinen lateralen Dimensionen der während der Deposition entstehenden Strukturen ein massiver Massentransport zwischen Schichten einsetzen kann. Das bedeutet, daß die Aktivierungsbarriere, die bei Temperaturen unterhalb von $T_s \approx 340$ K den Sprung von Adatomen über die Stufenkanten von großen Inseln effektiv unterdrückt, bei kleinen Inseln im weitesten Sinne „durchlässig“ wird. Um diese „Durchlässigkeit“ der Aktivierungsbarriere zu verstehen, sollen in diesem Abschnitt zwei mögliche Erklärungen diskutiert werden.

Eine naheliegende Erklärung für das Auftreten des 2D-Wachstums ist eine Abhängigkeit der Höhe der Aktivierungsbarriere von den lateralen Dimensionen der entstehenden Inseln. Nimmt man an, daß die Potentialbarriere an den Stufenkanten kleiner Inseln verschwindet, so könnten die auf bestehenden Inseln adsorbierten Adatome ohne weiteres auf die nächst-tieferen Terrassen springen. Der dadurch mögliche Massentransport zwischen Schichten führt dann, wie im Experiment beobachtet, zu einem 2D-Wachstum. Wir werden im Abschnitt 5.4.3.2 noch ausführlich auf dieses Modell eingehen.

Es ist jedoch auch eine alternative Erklärung für das 2D-Wachstum vorstellbar. Wie bereits erwähnt wurde, beobachteten Egelhoff und Jacob bei der Untersuchung des Wachstums einer Cu(100)-Fläche mittels RHEED, daß selbst bei nahezu völligem Fehlen thermischer Adatommobilität ein 2D-Wachstum auftritt [12.]. Sie erklärten diese Beobachtung durch eine erhöhte Adatommobilität aufgrund der freiwerdenden Kondensationsenergie (3-6 eV) und der Translationsenergie der auf die Probe treffenden Atome (≈ 0.2 eV), so daß die Adatome einige Sprünge über die Oberfläche ausführen und vorzugsweise an den wachsenden Inselrändern angelagert werden können. Diese, verglichen mit den für Diffusionsvorgänge typischen Aktivierungsbarrieren sehr viel höhere Energie wird über die Anregung von Phononen oder Elektron-Loch Paaren an die Oberfläche abgegeben, was auch als Akkommodation bezeichnet wird. Andererseits wurde bei dem gleichen System bei höheren Temperaturen ein 3D-Wachstum beobachtet [10.,25.], welches, wie bereits diskutiert wurde, auf den Einfluß der Potentialbarriere an den Stufenkanten zurückzuführen ist. Das bedeutet jedoch, daß der Einfluß der während der Akkommodation erhöhten Adatommobilität auf das Wachstum mit steigender Oberflächentemperatur geringer werden bzw. verschwinden muß.

Diese Überlegungen legen ein alternatives Modell zur Erklärung des hier beobachteten 2D-Wachstums nahe. Es sei angenommen, daß die Aktivierungsbarriere an den Stufenkanten auch bei tiefsten Temperaturen existiert und deren Höhe **nicht** von der Größe und Form der wachsenden Inseln abhängt. Der Sprung thermisch diffundierender, also schon akkommodierter Adatome über Stufenkanten auf nächst-tiefere Terrassen wird durch die Aktivierungsbarriere sehr effektiv unterdrückt. Der Idee von Egelhoff und Jacob folgend sei weiterhin angenommen, daß die Akkommodation der Adatome nicht instantan abläuft: die Adatome können eine bestimmte, in erster Näherung temperaturunabhängige Zahl N_T von Sprüngen über die Oberfläche ausführen, ehe deren überschüssige Energie vollkommen abgegeben ist. Da die Ad-

atome während ihrer Akkommodation eine erhöhte Energie besitzen, können sie die Aktivierungsbarriere ohne weiteres passieren und auf nächst-tiefere Terrassen springen. Der Massentransport zwischen Schichten resultiert also in diesem Bild aus der Durchlässigkeit der Barriere für noch nicht akkommodierte Adatome.

5.4.3.1 Der Einfluß von Akkommodationssprüngen der Adatome auf das $2D_z$ -Wachstum

In diesem Abschnitt wollen wir uns mit der zuletzt angegebenen Erklärung für das Auftreten des $2D_z$ -Wachstums der Pt(111)-Fläche beschäftigen. Dazu betrachten wir den Extremfall einer für akkommodierte Adatome praktisch unüberwindlichen Aktivierungsbarriere, so daß der Massentransport zwischen Schichten ausschließlich durch die noch nicht akkommodierten Adatome bestimmt wird. Wie bereits diskutiert wurde, sollte diese Bedingung für Oberflächentemperaturen unterhalb von $T_s \approx 275$ K in sehr guter Näherung erfüllt sein.

Durch das in Abb. 54 auf Seite 125 illustrierte Experiment und die obigen Annahmen läßt sich eine Abschätzung für die Zahl N_T der Akkommodationssprünge von Adatomen auf der Pt(111)-Fläche angeben. Die Abbildung zeigt den bei einer Oberflächentemperatur von $T_s = 100$ K beobachteten Verlauf der normierten Höhe des gespiegelten He-Peaks unter In- und Anti-Phase Bedingungen als Funktion der Depositionszeit. Beide Kurven sind im Rahmen des experimentellen Fehlers identisch. Das bedeutet, daß die normierte Höhe des gespiegelten He-Peaks nahezu ausschließlich durch diffuse Streuung an den Stufenkanten bestimmt wird: die mittlere Breite der während des Wachstums entstehenden Inseln ist kleiner als $\bar{\Delta} \approx 12$ Å. Nimmt man an, daß die Größe der entstandenen Strukturen ausschließlich durch die Akkommodation der Adatome bestimmt wird, so läßt sich eine obere Grenze für N_T angeben. Mit Hilfe von Gl. 4.5 erhält man als Ergebnis $N_T \lesssim 10$, einen Wert, der gleich zu dem ist, der von Egelhoff und Jacob für die Cu(100)-Fläche abgeschätzt wurde [12]. Es kann angenommen werden, daß diese Zahl von Sprüngen in guter Näherung unabhängig von der Oberflächentemperatur ist, da die Energie, welche die Adatome während ihrer Akkommodation an die Oberfläche abgeben, erheblich größer als die für Diffusionsprozesse maßgeblichen Aktivierungsbarrieren ist.

Eine erste Überprüfung dieses Modells kann mit Hilfe von Monte-Carlo Simulationen durchgeführt werden. Dazu betrachten wir zunächst eine Situation, bei der die akkommodierten Adatome vollkommen immobil sind, so daß ausschließlich Akkommo-

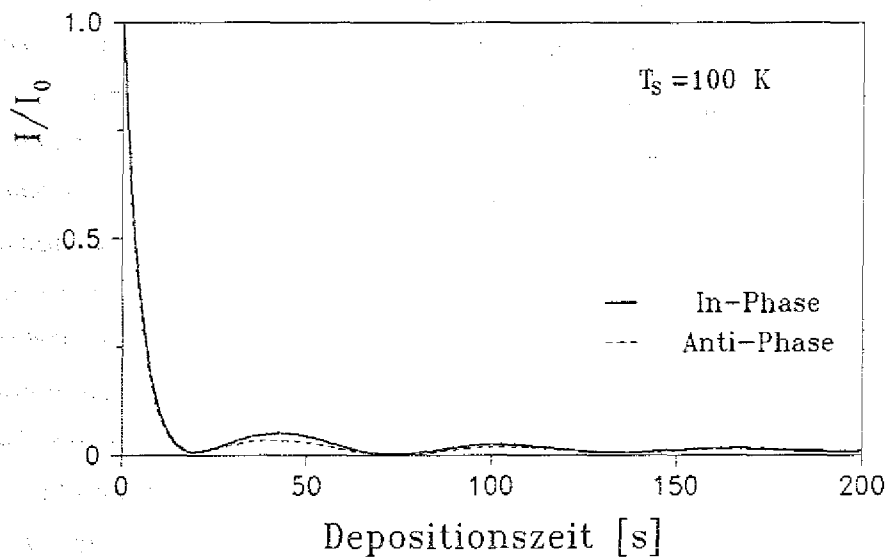


Abb. 54. Oszillationen der He-Reflektivität bei $T_s = 100$ K: Die Abbildung zeigt die zeitliche Variation der Höhe des gespiegelten Peaks während des Wachstums einer Pt(111)-Fläche für In-Phase (durchgezogene Linie) bzw. Anti-Phase Bedingungen (gestrichelte Linie) bei einer Oberflächentemperatur von $T_s = 100$ K.

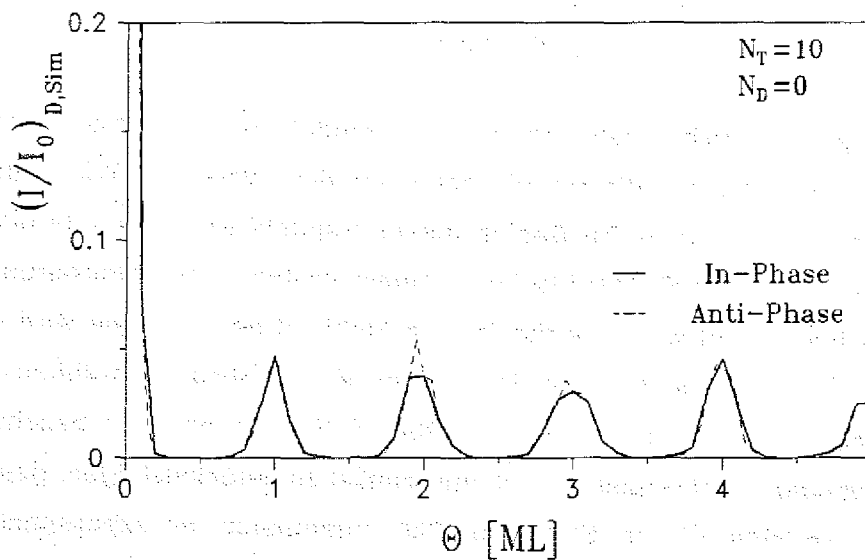


Abb. 55. Simulierte Oszillationen bei thermisch immobilen Adatomen: Die Abbildung zeigt die simulierte Entwicklung der Höhe des gespiegelten Deltapeaks als Funktion der Bedeckung für In- (durchgezogene Linie) bzw. Anti-Phase Bedingungen (gestrichelte Linie). Die Simulation wurde auf einem Feld von 50×50 Gitterplätzen mit $P_A = 0$, $P_B = 0$ sowie $N_D = 0$ durchgeführt. Es wurden $N_T = 10$ Akkommodationssprünge der Adatome erlaubt, während denen ein Sprung auf tiefere Terrassen erfolgen kann.

dationssprünge möglich sind. Auf der Basis des oben diskutierten Experimentes wurden jedem neu adsorbierten Atom $N_T = 10$ zusätzliche Diffusionsschritte in zufällig gewählte Richtungen erlaubt. Während dieser Phase wurden an einen Diffusionsschritt lediglich zwei Bedingungen erfüllt gestellt: zum einen mußte die SOS-Bedingung, also die Diffusion auf Gitterplätze mit mindestens drei Nächste-Nachbar Bindungen erfüllt sein und zum anderen wurden Sprünge über Stufenkanten auf höhere Terrassen verboten. Der Sprung von Adatomen über die Aktivierungsbarriere auf nächst-tiefere Terrassen ist also während dieser zusätzlichen Diffusionsschritte ohne weiteres möglich. Darüber hinaus werden noch nicht akkommodierte Adatome nur mit geringer Wahrscheinlichkeit an Stufenkanten angelagert. Das Ergebnis der unter diesen Bedingungen ($N_b = 0$, $N_T = 20$, $P_b = 0$, $P_A = 0$) durchgeführten Simulationsrechnung ist in Abb. 55 auf Seite 125 dargestellt. Die Abbildung zeigt auf einer vergrößerten Ordinate den Verlauf der normierten Höhe des gespiegelten In- bzw. Anti-Phase Peaks als Funktion der Bedeckung. Vergleicht man diese Kurvenverläufe mit denen, die experimentell beobachtet wurden (Abb. 54), so stellt man qualitativ eine gute Übereinstimmung fest. In beiden Fällen treten Oszillationen der gespiegelten Peakhöhe auf, wobei die während des Wachstums entstehenden Strukturen kleiner als $\bar{\Delta} \approx 12 \text{ \AA}$ sind. Die Übereinstimmung zwischen dem Experiment und der Simulation des Wachstums bei fehlender thermischer Adatommobilität unterstützt also zunächst die von Egelhoff und Jacob vorgeschlagene Erklärung des von ihnen beobachteten 2D-Wachstums der Cu(100)-Fläche.

Das bedeutet jedoch nicht, daß mit diesem Modell das 2D_e-Wachstum der Pt(111)-Fläche unter den für diesen Wachstumsmodus typischen Wachstumsbedingungen erklärt werden kann. Zu Beginn dieses Kapitels wurde bereits erwähnt, daß das 2D_e-Wachstum der Pt(111)-Fläche in einem weiten Temperaturbereich von $80 \text{ K} \leq T_s \leq 340 \text{ K}$ beobachtet wird. Die thermische Mobilität der Adatome wird sich in diesem Bereich sicherlich ändern, so daß die im letzten Absatz gewählten Bedingungen lediglich den Grenzfall sehr kleiner Oberflächentemperaturen beschreiben. Es ist also notwendig, die thermische Adatommobilität zu berücksichtigen. Betrachtet man die Kurvenverläufe, die bei tiefen Oberflächentemperaturen experimentell beobachtet werden, so stellt man eine Erhöhung der Oszillationsamplituden mit steigender Oberflächentemperatur fest. Dieses Verhalten ist in Abb. 56 für drei unterschiedliche Oberflächentemperaturen illustriert. Untersucht man die Temperaturabhängigkeit der auf der Basis des hier betrachteten Modells simulierten Kurvenverläufe, so müßte ebenfalls eine Erhöhung der Oszillationsamplitude mit steigender Oberflächentemperatur auftreten.

Um dies zu verifizieren wurde die Temperaturabhängigkeit der Anti-Phase Kurven mittels Monte-Carlo Rechnungen untersucht. Im Abschnitt „Der Einfluß von Mehrschichteffekten auf die Dämpfung“ auf Seite 95 wurde bereits diskutiert, daß das Wachstum bei höheren Temperaturen entweder durch die Erhöhung der Zahl N_0 thermischer Diffusionsschritte oder durch die Erhöhung der Wahrscheinlichkeit P_B zum Brechen einer Bindung simuliert werden kann. Das Ergebnis der Simulationsrechnungen ist in Abb. 57 und Abb. 58 dargestellt. In beiden Abbildungen ist die Abhängigkeit der Höhe des ersten Maximums der auftretenden Anti-Phase Oszillationen als Funktion von N_0 aufgetragen. Die Datenpunkte ergeben sich jeweils aus

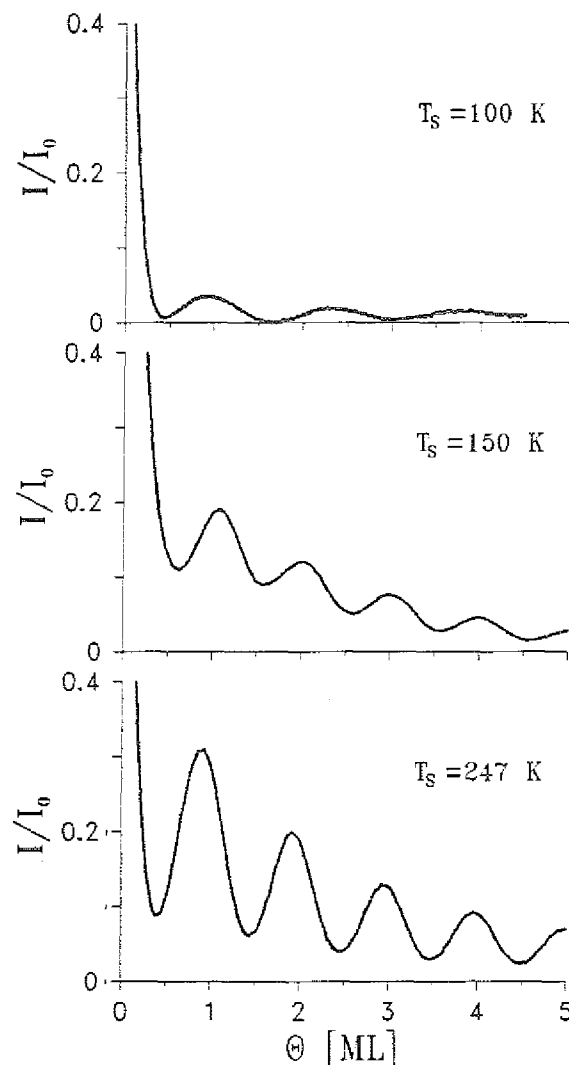


Abb. 56. Experimentell beobachtete Änderung der Anti-Phase Kurven mit steigender Temperatur: Die Abbildung zeigt die für unterschiedliche Oberflächentemperaturen und nahezu gleichen Depositionsraten ($1.3 \text{ ML/min} \leq R \leq 1.4 \text{ ML/min}$) beobachtete Entwicklung des gespiegelten Anti-Phase Peaks ($n=2.5$, $\vartheta_i = 72.2^\circ$) als Funktion der Bedeckung.

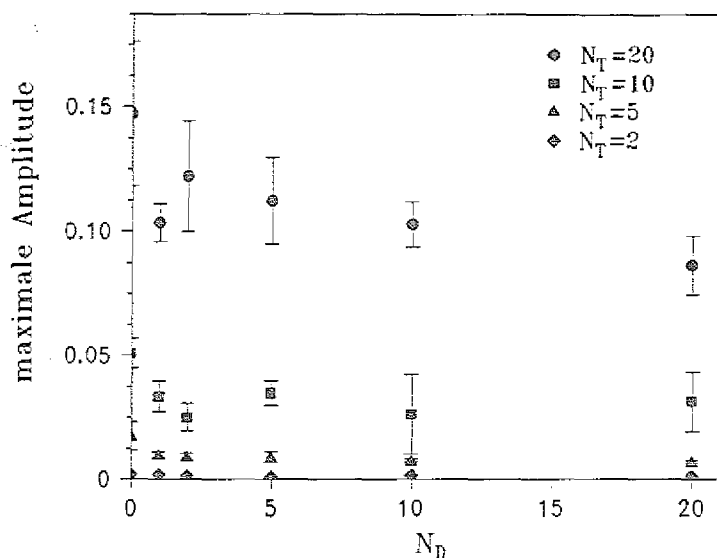


Abb. 57. Der Einfluß der Adatombeweglichkeit auf die Amplitude der Anti-Phase Oszillationen: Die Abbildung zeigt für verschiedene N_T die Abhängigkeit der Höhe des ersten Maximums der simulierten Anti-Phase Oszillationen als Funktion von N_D . Die Rechnungen wurden auf einem Feld von 50x50 Gitterplätzen mit $P_A=0$ und $P_B=0$ durchgeführt.

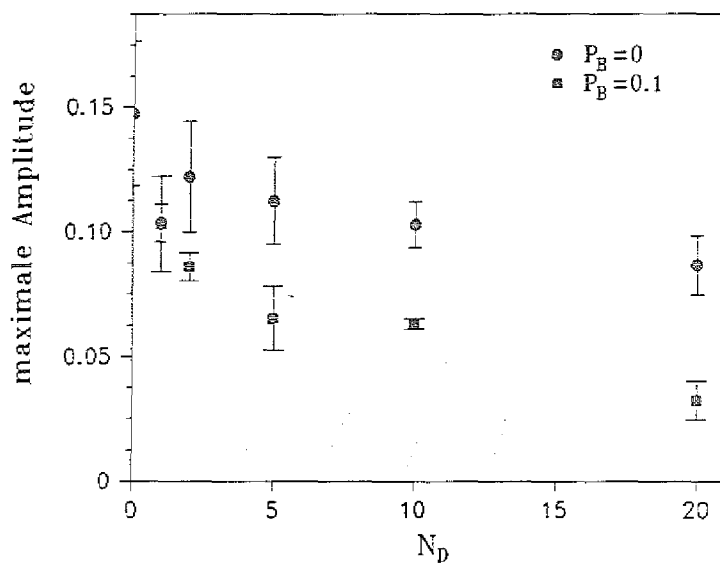


Abb. 58. Der Einfluß der Wahrscheinlichkeit zum Brechen einer Bindung auf die Amplitude der Anti-Phase Oszillationen: Die Abbildung zeigt die maximale Amplitude der simulierten Anti-Phase Oszillationen als Funktion von N_D . Als Parameter wurde die Wahrscheinlichkeit P_B zum Brechen einer Bindung variiert. Die Rechnungen wurden auf einem Feld von 50x50 Gitterplätzen mit $P_A=0$ und $N_T=20$ durchgeführt.

einer Mittelung über mindestens drei unabhängige Rechnungen. Bei den in Abb. 57 gezeigten Simulationen wurde die Wahrscheinlichkeit zum Brechen einer Bindung zu $P_b = 0$ gesetzt. Betrachtet man bei konstantem N_T die Abhängigkeit der Oszillationsamplituden von der Zahl der thermischen Diffusionssprünge N_b , so stellt man fest, daß die Oszillationsamplituden mit steigendem N_b , d.h. mit steigender Oberflächentemperatur kleiner werden. Dieses Verhalten ist unabhängig von der gewählten Zahl der Akkommodationssprünge; die Erhöhung von N_T hat lediglich das Entstehen größerer Strukturen und somit einen geringeren Anteil an diffuser Streuung zur Folge. In Abb. 58 ist die Abhängigkeit der Oszillationsamplituden als Funktion von N_b für zwei unterschiedliche Wahrscheinlichkeiten zum Brechen einer Bindung aufgetragen; die für $P_b = 0$ berechneten Werte entsprechen denen, die bereits in Abb. 57 angegeben wurden. Aus den dort dargestellten Ergebnissen geht hervor, daß sowohl die Erhöhung von P_b als auch die von N_b zu einer **Abnahme** der Oszillationsamplituden, d.h. zu einer Unterdrückung des Massentransportes zwischen Schichten führt. Dieses Verhalten läßt sich auch qualitativ verstehen. Erhöht man nämlich die Oberflächentemperatur, so entstehen aufgrund der höheren thermischen Mobilität der Adatome größere Strukturen. Da die Zahl der Akkommodationssprünge von Adatomen nahezu unabhängig von der Oberflächentemperatur sein sollte, wird die Wahrscheinlichkeit für noch nicht akkommodierte Adatome, auf eine Stufenkante zu treffen und auf tiefere Terrassen zu springen, mit steigender Inselgröße kleiner. Das Wachstum wird also immer mehr durch die vollständige Reflexion der bereits akkommodierten Adatome an den Stufenkanten bestimmt. Dies führt jedoch zu einem mit steigender Temperatur verminderten Massentransport zwischen Schichten und aufgrund der vermehrten Entstehung neuer Nukleationskeime in höheren Niveaus zu einer erhöhten Dämpfung der Oszillationen.

Der Vergleich zwischen dem Experiment und der Simulation führt also zu einem Widerspruch: während die experimentell beobachteten Oszillationsamplituden mit der Oberflächentemperatur größer werden, nehmen die auf der Basis dieses Modells simulierten Amplituden mit der Temperatur ab. Dieses Ergebnis suggeriert, daß die der Simulation zugrunde liegenden Annahmen nicht der Realität entsprechen: die bei tiefen Temperaturen geforderte Durchlässigkeit der Aktivierungsbarriere kann daher **nicht** durch eine zusätzliche Mobilität der Adatome während deren Akkommodation erklärt werden. Obwohl nicht ausgeschlossen werden kann, daß eine derartige erhöhte Mobilität tatsächlich existiert, spielt sie für die Ausbildung des $2D_c$ -Wachstums nur eine untergeordnete Rolle. Für das Auftreten des $2D_c$ -Wachstums der Pt(111)-Fläche müssen daher andere Ursachen verantwortlich sein.

5.4.3.2 Das Verschwinden der Aktivierungsbarriere an den Stufenkanten von Inseln kleiner lateraler Dimensionen

Nachdem nachgewiesen wurde, daß Mobilitätsargument nicht in der Lage sind, daß $2D_z$ -Wachstums der Pt(111)-Fläche zu beschreiben, kommen wir erneut auf die zu Beginn des Abschnittes „Die Durchlässigkeit der Potentialbarriere“ angesprochene Erklärung der „Durchlässigkeit“ der Aktivierungsbarriere an den Stufenkanten zurück. Es sei daher postuliert, daß die Höhe der Aktivierungsbarriere von der Größe und/oder der Struktur der entstehenden Inseln bestimmt wird. Basierend auf dieser Annahme liegen die Gründe für das Auftreten des $2D_z$ -Wachstum der Pt(111)-Fläche in der reduzierten Höhe bzw. in dem völligen Verschwinden der Aktivierungsbarriere bei kleinen und/oder unregelmäßig gestuften Inseln. Dadurch kann auch bei niedrigen Oberflächentemperaturen ein substantieller Massentransport zwischen Schichten auftreten.

Diese Annahme wird durch frühere Studien mittels Feldionen-Mikroskopie (FIM)⁵ unterstützt. Fink und Ehrlich /213./ untersuchten unter Gleichgewichtsbedingungen die Diffusion isolierter W-Adatome in den $[\bar{1}11]$ -Kanälen einer W(211)-Insel in Abhängigkeit der Kanallänge, d.h. der Inselgröße. Dabei wurde beobachtet, daß Adatome an den Inselrändern gegenüber denen im Zentrum der Insel eine höhere Aufenthaltswahrscheinlichkeit aufweisen. Die Ursache hierfür wurde der Reflexion der Adatome an einer Potentialbarriere an den Stufenkanten zugeschrieben. Es wurde gezeigt, daß der Einfluß der Barriere auf die Aufenthaltswahrscheinlichkeit der Adatome nicht auf die Stufenkanten beschränkt ist, sondern weit (3-4 Bindungsplätze) in die Insel hineinragt. Die Potentialbarriere scheint also durch eine langreichweitige Störung der Adatom-Substrat Wechselwirkung in Anwesenheit einer Stufe verursacht zu werden. Bei hinreichend kleinen Inseln würde man daher eine Überlappung dieser Störungen, d.h. eine Erniedrigung der Höhe der Aktivierungsbarriere erwarten. Dies wurde auch tatsächlich beobachtet. Die Untersuchung der Diffusion von W-Adatomen auf einer W(211)-Insel, die nur sechs Gitterabstände breit war, zeigte ein fast völliges Verschwinden der Potentialbarriere: die Adatome konnten ungehindert auf tiefere Terrassen springen /213./. Die Höhe der Aktivierungsbarriere ist jedoch nicht nur durch die Inselgröße, sondern auch durch die Form der Inselränder bestimmt: auch

5. Für eine Beschreibung der Methode sei auf /222./ und /223./ verwiesen.

bei unregelmäßigen Stufenkanten wurde eine Erniedrigung bzw. das völlige Verschwinden der Potentialbarriere beobachtet.

Obwohl diese Experimente für ein anderes System als das hier untersuchte durchgeführt wurden, kann davon ausgegangen werden, daß der Einfluß der Inselgröße auf die Höhe der Aktivierungsbarriere an den Inselrändern zumindest qualitativ ähnlich zu der W(211)-Fläche ist. Die Forderung nach einer reduzierten Höhe bzw. einem Verschwinden der Aktivierungsbarriere bei kleinen und/oder unregelmäßig gestuften Inseln ermöglicht es, die experimentell beobachtete Abhängigkeit der Amplitude der Anti-Phase Oszillationen von der Oberflächentemperatur zu verstehen: bei tiefen Temperaturen $T_s \approx 100$ K ist die Diffusionslänge der Adatome und somit die Größe der entstehenden Inseln sehr klein. Obwohl ein massiver Massentransport zwischen Schichten auftritt, wird die Peakhöhe vornehmlich durch diffuse Streuung bestimmt. Man beobachtet entsprechend kleine Oszillationsamplituden. Mit steigender Temperatur nimmt die thermische Mobilität der Adatome und daher die Größe der während des Wachstums entstehenden Inseln sowie die Glattheit der Inselränder zu. Solange die lateralen Dimensionen der Strukturen klein genug sind, würde man zunächst einen Anstieg der Oszillationsamplituden mit der Temperatur erwarten (siehe Abschnitt „Der Einfluß von Mehrschichteffekten auf die Dämpfung“ auf Seite 95). Wie aus Abb. 56 auf Seite 127 hervorgeht, wird dies auch experimentell beobachtet: bei konstanter Depositionsrate von $R \approx 1$ ML/min steigt die Oszillationsamplitude mit der Temperatur an, bis bei $T_s \approx 275$ K ein Maximalwert erreicht wird. Erhöht man die Temperatur weiter, so werden die lateralen Dimensionen der Inseln so groß, daß eine Aktivierungsbarriere an den Stufenkanten entsteht: die Reflexion der Adatome an der Aktivierungsbarriere wird immer bestimmender für das Wachstum. Die Oszillationen werden daher mehr und mehr unterdrückt, bis schließlich nur noch ein monotoner Abfall der Peakhöhe, d.h. ein 3D-Wachstum beobachtet wird (siehe Abb. 49 und Abb. 53). Die Abhängigkeit der Höhe der Aktivierungsbarriere von den lateralen Dimensionen der während des Wachstums entstehenden Strukturen ermöglicht es also, die experimentellen Daten konklusiv zu beschreiben und die Ursachen für Auftreten des $2D_z$ -Wachstums der Pt(111)-Fläche auch auf mikroskopischer Skala zu verstehen.

6.0 Zusammenfassung

In der vorliegenden Arbeit wurde das Wachstum einer Pt(111)-Fläche in einem weiten Depositionsraten- und Temperaturbereich untersucht. Dazu wurden mittels thermischer Evaporation von Pt-Atomen sehr homogene und ultrareine epitaktische Schichten auf einer mit mittleren Terrassenbreiten von ca. 1000 Å nahezu perfekt präparierten Pt(111)-Fläche aufgebracht. Die Struktur der wachsenden Fläche wurde in-situ durch die Streuung thermischer He-Atome (TEAS) beobachtet.

Bei einer konstanten Depositionsrate von $R \approx 1$ ML/min weist die Pt(111)-Fläche vier Temperaturbereiche auf, die durch qualitativ unterschiedliche Wachstumsmodi gekennzeichnet sind: Stufenwanderung bei hohen Oberflächentemperaturen ($T_s \gtrsim 850$ K), Schicht-für-Schicht- ($2D_r$) Wachstum im Bereich von $460 \text{ K} \lesssim T_s \lesssim 800 \text{ K}$, Multilagen- oder 3D-Wachstum bei $340 \text{ K} \lesssim T_s \lesssim 460 \text{ K}$ sowie überraschenderweise das Wiedereinsetzen eines Schicht-für-Schicht ($2D_r$) Wachstums bei Temperaturen unterhalb von $T_s \approx 340 \text{ K}$. Die für die jeweiligen Wachstumsmodi charakteristischen zeitlichen Variationen der Höhe des gespiegelten He-Peaks wurden in Abhängigkeit der Wachstumsparameter R und T_s qualitativ und quantitativ ausgewertet. Dadurch war es möglich, detaillierte Informationen über die auf atomarer Skala ablaufenden Prozesse zu gewinnen, die für das Wachstum der Pt(111)-Fläche verantwortlich sind. Die zentralen Resultate dieser Untersuchungen lassen sich wie folgt zusammenfassen:

1. Während der Deposition bei hohen Oberflächentemperaturen und niedrigen Depositionsraten wurde eine konstante He-Reflektivität beobachtet, die symptomatisch für ein Wachstum durch Stufenwanderung (step-propagation, step-flow) ist. Dieser Wachstumsmodus entspricht dem idealen Schicht-für-Schicht Wachstum einer **realen** Fläche. Die Adatome erreichen mit hoher Wahrscheinlichkeit eine der Stufenkanten und werden an ihr angelagert, so daß während der Deposition keine neuen Nukleationskeime gebildet werden. Das Wachstum läuft lediglich über das Fortschreiten der ursprünglich auf der Fläche vorhandenen Stufenkanten ab.
2. Bei Oberflächentemperaturen zwischen $T_s \approx 460 \text{ K}$ und $T_s \approx 800 \text{ K}$ beobachtet man ausgeprägte und unter Umständen nur wenig gedämpfte zeitliche Oszillationen der gespiegelten He-Peakhöhe. Die Periodendauer der Oszillationen entspricht jeweils der Deposition einer vollständigen Monoschicht. Dieses Verhalten ist charakteristisch für ein 2D-Wachstum der Fläche, welches durch einen massiven

Massentransport zwischen Schichten gekennzeichnet ist. Aufgrund der endlichen Diffusionslänge der Adatome findet Inselbildung auf den bereits vorhandenen Terrassen statt, wobei Keimbildung in der nächst höheren Schicht erst in den fortgeschrittenen Stadien des Wachstums, d.h. vor Vollendung der gerade wachsenden Schicht auftritt. Die Untersuchung der Ursachen für die Dämpfung der Oszillationen zeigte, daß die maximale Zahl beobachtbarer Oszillationen bei einer Oberflächentemperatur von $T_s \approx 650$ K nahezu ausschließlich durch kleinste Inhomogenitäten der Pt-Depositionsrate in dem vom He-Strahl untersuchten Teil der Probe bestimmt wird. Auf der Basis von Monte-Carlo Simulationen wurde nachgewiesen, daß die bei tieferen Temperaturen beobachtete erhöhte Dämpfung der Oszillationen durch einen mit der Schichtdicke anwachsenden Anteil sichtbarer Terrassen in höheren Niveaus verursacht wird.

Im Gegensatz zu den Anti-Phase Oszillationen, die einen symmetrischen Verlauf aufweisen, zeigen die Oszillationen unter In-Phase Bedingungen bei hohen Oberflächentemperaturen ($T_s \gtrsim 650$ K) eine ausgeprägte Asymmetrie. Die Ursachen hierfür liegen in unterschiedlichen lateralen Dimensionen der bei „gleichen“ Bedeckungen (θ_A bzw. $\theta_F = 1 - \theta_A$) auf der Fläche vorhandenen Adatom- und Fehlstelleninseln. Erste Untersuchungen dieses Phänomens weisen darauf hin, daß für das Entstehen der Asymmetrie Diffusionsprozesse verantwortlich sind, die mit dem Brechen von zwei Nächste-Nachbar Bindungen verbunden sind.

3. Bei mittleren Temperaturen ($360 \text{ K} \lesssim T_s \lesssim 460 \text{ K}$) ist das Wachstum der Pt(111)-Oberfläche durch die Bildung dreidimensionaler Strukturen charakterisiert. Der Verlauf der He-Reflektivität zeigt hier nur einen monotonen Abfall. Ein einfaches geometrisches Modell belegt, daß die in diesem Temperaturbereich strukturbestimmenden Prozesse maßgeblich durch den Massentransport innerhalb einer Schicht geprägt sind, während der Massentransport zwischen Schichten weitgehend unterdrückt ist.

Es wurde vorgeschlagen und durch Experimente plausibel gemacht, daß die Ursache für das Auftreten dieses Wachstumsmodus eine Aktivierungsbarriere an den Stufenkanten ist, die den Sprung von Adatomen über Stufenkanten auf die nächst tieferen Terrassen behindert oder sogar vollkommen unterdrückt. Die daraus resultierende Reflexion der auf bereits entstandenen Inseln adsorbierten Adatome an den Inselrändern führt schon in den Anfangsstadien des Wachstums

zu einer erhöhten Wahrscheinlichkeit zur Bildung neuer Nukleationskeime in höheren Niveaus. Die Folge ist das simultane Wachstum mehrerer Schichten, so daß dreidimensionale Strukturen auf der Fläche entstehen. Dieses Ergebnis, welches in Übereinstimmung mit früheren Experimenten mittels Feldionen-Mikroskopie ist, ermöglicht die konsistente Beschreibung des Übergangs vom 3D- zum 2D_n-Wachstum: bei höheren Oberflächentemperaturen besitzen die über die Fläche migrierenden Pt-Adatome eine so hohe thermische Mobilität, daß sie von der Aktivierungsbarriere nicht mehr an dem Sprung über Stufenkanten auf tiefere Terrassen gehindert werden. Der Massentransport zwischen Schichten wird dann zum strukturbestimmenden Prozess und es entsteht ein Schicht-für-Schicht Wachstum der Fläche. Der Übergang vom 3D- zum 2D_n-Wachstum resultiert also aus einer Änderung der **thermischen Energie** der Adatome. Dieses Ergebnis steht im Widerspruch zu der „traditionellen“ Vorstellung vom homoepitaktischen Wachstum, bei dem ausschließlich Mobilitätsargumente für das Entstehen der einzelnen Wachstumsmodi herangezogen werden. Die hier diskutierten Experimente belegen, daß das traditionelle Bild vom Wachstum, zumindest bei der Pt(111)-Fläche, modifiziert werden muß.

4. Bei Oberflächentemperaturen unterhalb 360 K wurde bei Depositionsraten von $R \approx 1$ ML/Min überraschenderweise das erneute Einsetzen eines 2D-Wachstums beobachtet. Durch eine sorgfältige Untersuchung der Struktur der Oberfläche unter der Anwesenheit von Verunreinigungen wurde sichergestellt, daß das Wiedereinsetzen des Schicht-für-Schicht Wachstums charakteristisch für die **reine** Pt(111)-Fläche ist. Eine Reduktion der Depositionsrate bei konstanter Oberflächentemperatur führt zu einem Übergang zum 3D-Wachstum. Dadurch wird suggeriert, daß die Aktivierungsbarriere an den Stufenkanten bei dem Vorliegen von kleinen und/oder unregelmäßig gestuften Inseln überwunden werden kann, so daß ein massiver Massentransport zwischen Schichten einsetzt.

Das zentrale Resultat der Untersuchungen ist der Nachweis, daß das 2D-Wachstum bei tiefen Temperaturen durch die geringe Größe der entstehenden Inseln bestimmt wird. Durch einen Vergleich zwischen den experimentellen Daten und Monte-Carlo Simulationen wurde gezeigt, daß das 2D-Wachstum bei tiefen Temperaturen nicht durch Mobilitätsargumente, z.B. durch eine erhöhte Mobilität der Adatome während deren Akkommodation, erklärt werden kann. Im Einklang mit früheren FIM-Ergebnissen wurde daher postuliert, daß die Ursache für das 2D-Wachstum bei tiefen Temperaturen in einer Reduktion bzw. dem Ver-

schwinden der Aktivierungsbarriere für Inseln kleiner lateraler Dimensionen und/oder rauherer Struktur der Inselränder liegt, so daß ein massiver Massentransport zwischen Schichten ermöglicht wird. Im Gegensatz zu dem 2D_r-Wachstum bei hohen Temperaturen, welches durch die **thermische** Mobilität der Adatome bestimmt wird, entsteht das Wiedereinsetzende 2D_r-Wachstum bei tiefen Temperaturen aufgrund der geringen **Größe** der Inseln. Die Vergrößerung der lateralen Dimensionen der entstehenden Inseln durch eine Reduktion der Depositionsrate führt zu einer wachsenden Behinderung des Massentransportes zwischen Schichten, d.h. zu einem Übergang zum 3D-Wachstum.

Die vorgestellten Ergebnisse belegen, daß das Wachstum homoepitaktischer Systeme komplexer ist als weithin angenommen. Das gängige „traditionelle“ Bild vom Wachstum, in der die entstehenden Wachstumsmodi ausschließlich auf die Mobilität der Adatome zurückgeführt werden, ist nicht in der Lage, das Wachstum der Pt(111)-Fläche zu beschreiben. Insbesondere das hier erstmals beobachtete Wiedereinsetzen des 2D-Wachstums bei tiefen Temperaturen zeigt, daß für ein grundlegendes Verständnis der während des Wachstums von Schichten ablaufenden Prozesse weitere Untersuchungen notwendig sind. Erste Resultate für andere Systeme deuten an, daß das 2D-Wachstum bei tiefen Temperaturen nicht ausschließlich für das Pt(111)-System typisch ist. Die Aufdeckung dieses Wachstumsmodus kann daher auch für zukünftige Anwendungen von besonderer Bedeutung sein. Um die gerade bei dem Wachstum heteroepitaktischer Systeme auftretende unerwünschte Interdiffusion von Adsorbat und Substrat zu vermeiden, war man bei der Wahl der Wachstumsbedingungen bisher oftmals auf Substrattemperaturen angewiesen, die zu der Entstehung „rauher“ Strukturen führen. Die in dieser Arbeit vorgestellten Ergebnisse zeigen, daß zur Erzeugung von nahezu perfekt zweidimensional gewachsenen Schichten tiefe Oberflächentemperaturen bevorzugt werden sollten, da unter diesen Bedingungen eine schmale Höhenverteilung der entstehenden Strukturen vorliegt und keine Interdiffusion von Adsorbat und Substrat auftritt.

7.0 Literaturverzeichnis

1. M. Volmer und I. Estermann: Z. Phys. **7**, 13 (1926)
2. W. Kossel: Nachr. Ges. Wiss. Göttingen, p135 (1927); **Leipziger Vorträge**, ed. by H. Falkenhagen; Leipzig (1928); Ann. Phys. **21**, 457 (1934)
3. I.N. Stranski: Z. Phys. Chem. **136**, 259 (1928)
4. M. Volmer und W. Schultze: Z. Phys. Chem. A **156**, 1 (1931)
5. I.N. Stranski und R. Kaischew: Z. Phys. Chem. B **26**, 31 (1934); Phys. Z. **36**, 393 (1935)
6. I.N. Stranski und R. Kaischew: Z. Phys. Chem. **35**, 427 (1937)
7. M. Volmer: **Kinetik der Phasenbildung**; Steinkopff, Dresden & Leipzig (1939)
8. O. Knacke und I.N. Stranski: Erg. ex. Naturwiss. **26**, 383 (1952)
9. J.J. de Miguel, A. Sánchez, A. Cebollada, J.M. Gallego, J. Ferrón und S. Ferrer: Surf. Sci. **189/190**, 1062 (1987)
10. J.J. de Miguel, A. Cebollada, J.M. Gallego, J. Ferrón und S. Ferrer: J. Crystal Growth **88**, 442 (1988)
11. J.J. de Miguel, J. Ferrón, A. Cebollada, J.M. Gallego und S. Ferrer: J. Crystal Growth **91**, 481 (1988)
12. W.F. Egelhoff, Jr., und I. Jacob: Phys. Rev. Lett. **62**, 921 (1989)
13. R. Kunkel, B. Poelsema, L.K. Verheij und G. Comsa: Phys. Rev. Lett. **65**, 733 (1990)
14. B. Poelsema, R. Kunkel, N. Nagel, A. Becker, G. Rosenfeld, L.K. Verheij und G. Comsa: Appl. Phys. (im Druck)
15. R.J. Behm: in *Workshop on Self-diffusion at Metal Surfaces*, Kopenhagen, Dänemark (1991)
16. B.A. Joyce: J. Crystal Growth **99**, 9 (1990)
17. J.J. Harris, B.A. Joyce und P.J. Dobson: Surf. Sci. **103**, L90 (1981)
18. J.H. Neave, B.A. Joyce, P.J. Dobson und N. Norton: Appl. Phys. A **31**, 1 (1983)
19. P.J. Dobson, B.A. Joyce, J.H. Neave und J. Zhang: J. Crystal Growth **81**, 1 (1987)
20. C.E.C. Wood: Surf. Sci. **108**, L441 (1981)
21. B.A. Joyce, P.J. Dobson und J.H. Neave: Surf. Sci. **178**, 110 (1986)
22. P.K. Larsen, P.J. Dobson, J.H. Neave, B.A. Joyce, B. Bölger und J. Zhang: Surf. Sci. **169**, 176 (1986)
23. J.M. Van Hove, C.S. Lent, P.R. Pukite und P.I. Cohen: J. Vac. Sci. Technol. B **1**, 741 (1983)
24. T. Kawamura und P.A. Maksym: Surf. Sci. **161**, 12 (1985)
25. L.J. Gómez, S. Bourgeal, J. Ibáñez und M. Salmerón: Phys. Rev. B **31**, 2551 (1985)

26. J.E. Parmeter, R. Kunkel, B. Poelsema, L.K. Verheij und G. Comsa: *Vacuum* **41**, 467 (1990)
27. B.J. Hinch, C. Koziol, J.P. Toennies und G. Zhang: *Europhys. Lett.* **10**, 341 (1989)
28. C. de Beauvais, D. Rouxel, B. Bigeard und B. Mutaftschiev: (wird veröffentlicht)
29. H. Xu, Y. Yang und T. Engel: (wird veröffentlicht)
30. B. Poelsema, L.K. Verheij und G. Comsa: *Phys. Rev. Lett.* **53**, 2500 (1984)
31. B. Poelsema, K. Lenz, L.S. Brown, L.K. Verheij und G. Comsa: *Surf. Sci.* **162**, 1011 (1985)
32. B. Poelsema, R. Kunkel, L.K. Verheij und G. Comsa: *Phys. Rev. B* **41**, 11609 (1990)
33. J.M. Cowley: **Diffraction Physics**; North-Holland Publishing, New York (1981)
34. B. Poelsema und G. Comsa: **Scattering of Thermal Energy Atoms**; ed. by G. Höhler, Springer, Berlin (1989)
35. M.A. Herman und H. Sitter: **Molecular Beam Epitaxy**; Springer, Berlin, Heidelberg (1989)
36. G. Ertl und J. Küppers: **Low Energy Electrons and Surface Chemistry**; VCH Verlagsgesellschaft, Weinheim (1985)
37. E. Vlieg, A.W. Denier van der Gon, J.F. van der Veen, J.E. Macdonald und C. Norris: *Phys. Rev. Lett.* **61**, 2241 (1988)
38. F. Knauer und O. Stern: *Z. Phys.* **53**, 779 (1929); O. Stern: *Naturwiss.* **17**, 391 (1929); I. Estermann und O. Stern: *Z. Phys.* **61**, 95 (1930)
39. I. Estermann, R. Frisch und O. Stern: *Z. Phys.* **73**, 348 (1931)
40. H.U. Hostettler und R.B. Bernstein: *Rev. Sci. Instrum.* **31**, 872 (1960)
41. R.C. Miller und P. Kusch: *Phys. Rev. B* **99**, 1314 (1955)
42. A. Kantrowitz und J. Grey: *Rev. Sci. Instrum.* **22**, 328 (1951)
43. E.W. Becker und K. Bier: *Z. Naturforschg.* **9a**, 975 (1954)
44. B.F. Mason und B.R. Williams: *Rev. Sci. Instrum.* **43**, 375 (1972)
45. J. Horne und D.R. Miller: *J. Vac. Sci. Technol.* **13**, 351 (1976)
46. B. Poelsema: **Die Streuung thermischer Atome an ungeordneten Oberflächen**; Habilitationsschrift, Bonn (1987)
47. T. Engel und K.-H. Rieder: **Structural Studies of Surfaces**; Springer, Berlin (1982)
48. G. Comsa, K. Kern, D. Manson und B. Poelsema: **Surface Investigation by He-Scattering**; Springer, Berlin (in Vorbereitung)
49. E. Zaremba und W. Kohn: *Phys. Rev. B* **13**, 2270 (1976)
50. J.L. Beeby: *J. Phys. C: Solid St. Phys.* **4**, L359 (1971)
51. V.I. Gerasimenko: *Sov. Phys. Solid State* **19**, 1677 (1977)
52. J. Harris, A. Liebsch, G. Comsa, G. Mechttersheimer, B. Poelsema und S. Tomoda: *Surf. Sci.* **118**, 279 (1982)

53. N. Esbjerg und J.K. Nørskov: Phys. Rev. Lett. **45**, 807 (1980)
54. M. Manninen, J.K. Nørskov, M.J. Puska und C. Umrigar: Phys. Rev. **B 29**, 2314 (1984)
55. G. Armand und J.R. Manson: Phys. Rev. Lett. **43**, 1839 (1979)
56. K.H. Rieder: Surf. Sci. **117**, 13 (1982)
57. A. Liebsch, J. Harris, B. Salanon und J. Lapujoulade: Surf. Sci. **123**, 338 (1982)
58. R.E. Stickney: Adv. At. Mol. Phys. **3**, 143 (1967)
59. D.R. Hamann: Phys. Rev. Lett. **46**, 1227 (1981)
60. J. Harris und A. Liebsch: Phys. Rev. Lett. **49**, 341 (1982)
61. G. Boato, P. Cantini und R. Tatarek: J. Phys. F: Metal Phys. **6**, L237 (1976)
62. J.M. Horne und D.R. Miller: Surf. Sci. **66**, 365 (1977)
63. K. Kern: **Untersuchung dynamischer Oberflächeneigenschaften und zweidimensionaler Phasenübergänge an einer reinen und adsorbatbedeckten Pt(111)-Oberfläche mittels hochauflösender He-Streuung**; Dissertation, Universität Bonn (1986), Jül-Bericht 2040
64. B. Poelsema, R.L. Palmer, G. Mechttersheimer und G. Comsa: Surf. Sci. **117**, 60 (1982)
65. G. Comsa und B. Poelsema: Appl. Phys. **A 38**, 153 (1985)
66. B. Poelsema und G. Comsa: Comm. At. Mol. Phys. **17**, 37 (1985)
67. B. Poelsema und G. Comsa: Faraday Discuss. Chem. Soc. **80**, 1 (1985)
68. H. Wilsch und K.H. Rieder: J. Chem. Phys. **78**, 7491 (1983)
69. J. Ibañez, N. García und J.M. Rojo: Phys. Rev. **B 28**, 3164 (1983)
70. D.L. Smith und R.P. Merrill: J. Chem. Phys. **52**, 5861 (1970)
71. R.P. Merrill und D.L. Smith: Surf. Sci. **21**, 203 (1970)
72. T. Engel: J. Chem. Phys. **69**, 373 (1978)
73. B. Poelsema, S.T. de Zwart und G. Comsa: Phys. Rev. Lett. **49**, 578 (1982)
74. B. Poelsema, R.L. Palmer, S.T. de Zwart und G. Comsa: Surf. Sci. **126**, 641 (1983)
75. H.P. Butz, R. Feltgen, H. Pauly und H. Vehmeyer: Z. Phys. **247**, 70 (1971)
76. H. Jónsson, J.H. Weare und A.C. Levi: Phys. Rev. **B 30**, 2241 (1984); Surf. Sci. **148**, 126 (1984)
77. A.T. Yinnon, R. Kosloff, R.B. Gerber, B. Poelsema und G. Comsa: J. Chem. Phys. **88**, 3722 (1988)
78. B. Poelsema, L.K. Verheij und G. Comsa: Phys. Rev. Lett. **51**, 2410 (1983)
79. B. Poelsema, L.S. Brown, K. Lenz, L. K. Verheij und G. Comsa: Surf. Sci. **171**, L395 (1986)
80. K. Lenz: **Die Rolle der Stufen in der dissoziativen Adsorption von Wasserstoff auf Pt(111)**; Dissertation, Universität Bonn (1987), Jül-Bericht 2141

81. S.L. Bernasek, K. Lenz, B. Poelsema und G. Comsa: Surf. Sci. **183**, L319 (1987)
82. K. Lenz, B. Poelsema, S.L. Bernasek und G. Comsa: Surf. Sci. **189/190**, 431 (1987)
83. M. Henzler: Surf. Sci. **73**, 240 (1978)
84. J. Lapujoulade: Surf. Sci. **108**, 526 (1981)
85. T.-M. Lu und M.G. Lagally: Surf. Sci. **120**, 47 (1982)
86. A.C. Levi, R. Spadacini und G.E. Tommei: Surf. Sci. **108**, 181 (1981)
87. A.C. Levi, R. Spadacini und G.E. Tommei: Surf. Sci. **121**, 504 (1982)
88. R. Spadacini und G.E. Tommei: Surf. Sci. **133**, 216 (1983)
89. M. Henzler: Appl. Phys. A **34**, 205 (1984)
90. C.S. Lent und P.I. Cohen: Surf. Sci. **139**, 121 (1984)
91. J. Wollschläger, J. Falta und M. Henzler: Appl. Phys. A **50**, 57 (1990)
92. L.K. Verheij, J. Lux und B. Poelsema: Surf. Sci. **144**, 385 (1984)
93. L.K. Verheij, B. Poelsema und G. Comsa: Surf. Sci. **162**, 858 (1985)
94. T. Michely und G. Comsa: J. Vac. Sci. Technol. B **9**, 862 (1991)
95. T. Michely, K.H. Besocke und G. Comsa: Surf. Sci. Lett. **230**, L135 (1990)
96. A.M. Lahee, J.R. Manson, J.P. Toennies und Ch. Wöll: Phys. Rev. Lett. **57**, 471 (1986)
97. A. Sommerfeld: **Optik**; Akademische Verlagsgesellschaft, Leipzig (1959)
98. G. Comsa, G. Mechttersheimer, B. Poelsema und S. Tomoda: Surf. Sci. **89**, 123 (1979)
99. A. Sánchez und S. Ferrer: Surf. Sci. **187**, L587 (1987)
100. C.W. Skorupka und J.R. Manson: Phys. Rev. B **41**, 8156 (1990)
101. R.L. Park, J.E. Houston und D.G. Schreiner: Rev. Sci. Instrum. **42**, 60 (1971)
102. G. Comsa: Surf. Sci. **81**, 57 (1979)
103. J.B. Pendry: **Low Energy Electron Diffraction**; Academic Press, London (1974)
104. D.W. Bassett und P.R. Webber: Surf. Sci. **70**, 520 (1978)
105. M. Pichaud und M. Drechsler: Surf. Sci. **32**, 341 (1972)
106. P.C. Bettler, D.H. Bennum und C.M. Case: Surf. Sci. **44**, 360 (1974)
107. N. Freyer: **Experimentelle Untersuchung strukturabhängiger Vorgänge am Beispiel der Oberflächen-Selbstdiffusion und der Adsorption auf Pt(110)**; Dissertation, TH Aachen (1985), Jül-Bericht 2003
108. H.P. Bonzel: **Surface Diffusion on Metals**; Kap. 13 in Landolt-Börnstein Serie III: **Diffusion in Solid Metals and Alloys Vol.26**; ed. by H. Mehrer, Springer, Berlin-Heidelberg (1990)
109. B. Poelsema, G. Mechttersheimer und G. Comsa: Surf. Sci. **111**, 519 (1981)

110. R. Kunkel: **Entwicklung eines Ionenstrahlsystems für den Ionenbeschuß von Oberflächen und für die Flugzeitspektrometrie von Ionen**; Diplomarbeit, Bonn (1987)
111. A. Becker: **Modifikation und Test eines Helium-Anregungs-Detektors**; Diplomarbeit, Bonn (1989)
112. D. Bassi: „Ionisation Detectors“ Kap. 7f in **Atomic and Molecular Beam Methods** Vol.1; ed. by G. Scoles, Oxford University Press, New York (1988)
113. U. Linke und B. Poelsema: J. Phys. E: Sci. Instrum. **18**, 26 (1985)
114. H. Niehus und G. Comsa: Surf. Sci. **102**, L14 (1981)
115. H.P. Bonzel, A.M. Franken und G. Pirug: Surf. Sci. **104**, 625 (1981); M. Mundschau und R. Vanselow: Phys. Rev. Lett. **53**, 1084 (1984); Surf. Sci. **155**, 121 (1985); Surf. Sci. **157**, 87 (1985)
116. A.C. Levi und H. Suhl: Surf. Sci. **88** 221 (1979)
117. V. Bortolani, V. Celli, A. Franchini, J. Idiodi, G. Santoro, K. Kern, B. Poelsema und G. Comsa: Surf. Sci. **208** 1 (1989)
118. R.B. Doak: **Rarefied Gas Dynamics: Proceedings of the 7th International Symposium**; Aachen (1990)
119. J.P. Toennies und K. Winkelmann: J. Chem. Phys. **66** , 3965 (1977)
120. K. Kern, R. David und G. Comsa: Rev. Sci. Instrum. **56**, 369 (1985)
121. K. Kern: **Analyse der gaskinetischen Parameter in hochexpandierten Helium-, Wasserstoff- und Deuterium-Düsenströmungen**; Diplomarbeit, Bonn (1984)
122. H. Haberland, U. Buck und M. Tolle: Rev. Sci. Instrum. **56**, 1712 (1985)
123. B.R. Monroe und R.R. Miller: J. Catalysis **65**, 461 (1980)
124. H. Steininger, S. Lehwald und H. Ibach: Surf. Sci. **123**, 1 (1982)
125. J.L. Gland: Surf. Sci. **93**, 487 (1980)
126. C.T. Campbell, G. Ertl, H. Kuipers und J. Segner: Surf. Sci. **107**, 220 (1981)
127. H. Steininger: **Adsorption von Sauerstoff, Kohlenmonoxid und Äthylen auf der Pt(111)-Fläche**; Dissertation, TH Aachen (1982), Jül-Bericht 1763
128. W.T. Tsang: J. Crystal Growth **95**, 121 (1989)
129. H. Hertz: Ann. Phys. **17**, 177 (1882)
130. M. Knudsen: Ann. Phys. **29**, 179 (1909); Ann. Phys. **47**, 697 (1915)
131. I. Langmuir: Phys. Z. **14**, 1273 (1913)
132. P. Clausing: Z. Phys. **66**, 471 (1930); Ann. Phys. **12**, 961 (1932)
133. V. Ruth und J.P. Hirth: „The Angular Distribution of Vapor Flowing from a Knudsen Cell“ in **Condensation and Evaporation of Solids**; ed. by E. Rutner, P. Goldfinger und J.P. Hirth, Gordon & Breach, New York (1964)
134. M. Knudsen: Ann. Phys. **52**, 105 (1917)
135. L. Holland: **Vacuum Deposition of Thin Films**; Chapman & Hall Ltd., London (1961)

136. S.P. Svensson und T.G. Andersson: J. Phys. E: Sci. Instrum. **14**, 1076 (1981)
137. U. Backes: **Dielektrische Eigenschaften von Siliziumoberflächen und dünnen Silberfilmen**; Dissertation, TH Aachen (1985), Jül-Bericht-1968
138. W.K. Burton, N. Cabrera und F.C. Frank: Phil. Trans. Roy. Soc. London **A 243**, 299 (1951)
139. H. Brixy: **Kombinierte Thermoelement-Rauschthermometrie**; Jül-Bericht 2051 (1986)
140. K. Lenz: **Zweidimensionales Inselwachstum von Wolfram auf W(110)**; Diplomarbeit, Bonn (1984)
141. L.I. Maissel and R. Glang: **Handbook of Thin Film Technology**; McGraw-Hill, New York (1970)
142. J.W. Gibbs: **Thermodynamische Studien**; Leipzig (1892); J.J.P. Valetton: Ber. Sächs. Ges. **67**, 1 (1915)
143. P. Curie: Z. Kristall. **12**, 651 (1887)
144. G. Wulff: Z. Kristall. **34**, 512 (1901)
145. R. Lacmann: **Die Gleichgewichtsform von Kristallen und die Keimbildungsarbeit bei der Kristallisation**, in *Springer Tracts in Modern Physics* Vol. 44; ed. by G. Höhler, Springer, Berlin (1968)
146. M. Born und O. Stern: Ber. Berliner Akad. **48**, 901 (1919)
147. T. Young: Philos. Trans. **95**, 65 (1805)
148. M. Dupré: **Théorie mécanique de la chaleur**; Paris (1969)
149. E. Bauer: Z. Kristall. **110**, 372 (1958)
150. J.A. Venables, G.D.T. Spiller und M. Hanbücken: Rep. Prog. Phys. **47**, 399 (1984); J.A. Venables und G.D.T. Spiller: **Surface Mobilities on Solid Materials**; ed. by Vu Thien Brink, NATO ASI Series Vol.86; Plenum Press, New York, London (1983)
151. R. Kern, G. Le Lay und J.J. Metois: **Basic Mechanisms in the Early Stages of Epitaxy**; Kap. 3 in *Current Topics in Materials Science* Vol. 3; ed. by E. Kaldis, North Holland Publishing (1979)
152. M.H. Grabow und G.H. Gilmer: Surf. Sci. **194**, 333 (1988)
153. R.J. Muirhead, J.G. Dash und J. Krim: Phys. Rev. **B 29**, 5074 (1984)
154. P. von Blanckenhagen: **Surface Diffusion and Layer Growth in Structure and Dynamics of Surfaces II** Kap. 3; ed. by W. Schommers und P. von Blanckenhagen, Springer, Berlin-Heidelberg (1987)
155. D.A. Huse: Phys. Rev. **B 29**, 6985 (1984)
156. E. Bauer und J.H. van der Merve: Phys. Rev. **B 33**, 3657 (1986)
157. N.A. Gjostein: **Metal Surfaces: Structure, Energetics and Kinetics**; Am. Soc. Metals, Metal Park Ohio (1963)
158. N.A. Gjostein: Acta Met. **11**, 963 (1965)
159. N.A. Gjostein und J.P. Hirth: Acta Met. **11**, 991 (1965)

160. **Handbook of Chemistry and Physics** 69th Edition; CRC Press, Boca Raton, FL (1989-1990)
161. M. Alnot, J.A. Barnard, J.J. Ehrhardt und B. Mutaftschiev: *J. Crystal Growth* **102**, 629 (1990)
162. S. Das Sarma: *J. Vac. Sci. Technol. A* **8**, 2714 (1990)
163. M. Madhukar: *Surf. Sci.* **132**, 344 (1983)
164. C. Koziol, G. Lilienkamp und E. Bauer: *Appl. Phys. Lett.* **51**, 901 (1987)
165. S.T. Purcell, B. Heinrich und A.S. Arrott: *Phys. Rev. B* **35**, 6458 (1987)
166. M. Horn von Hoegen, J. Falta und M. Henzler: *Thin Solid Films* **183**, 213 (1989)
167. J.D. Weeks und G.H. Gilmer: **Dynamics of Crystal Growth** in *Advances in Chem. Phys.* Vol. XL; ed. by I. Prigogine und S.A. Rice, Wiley & Sons, New York (1979)
168. E. Bauer, H. Poppa und G. Todd: *Thin Solid Films* **28**, 19 (1975)
169. E. Gillet und B. Gruzza: *Surf. Sci.* **97**, 553 (1980)
170. G. Meyer, M. Michailov und M. Henzler: *Surf. Sci.* **202**, 125 (1988)
171. E. Bauer und J.H. van der Merve: *Phys. Rev. B* **33**, 3657 (1989)
172. J.A. Venables: *Phil. Mag.* **27**, 697 (1973)
173. G. Zinsmeister: *Vacuum* **16**, 529 (1966)
174. S. Stoyanov: **Nucleation Theory for High and Low Supersaturations**; Kap. 4 in *Current Topics in Materials Science* Vol. 3; ed. by E. Kaldis, North Holland Publishing (1979) p.421ff.
175. S. Stoyanov: *Thin Solid Films* **18**, 91 (1973)
176. S. Stoyanov: *Surf. Sci.* **199**, 226 (1988)
177. S. Stoyanov und M. Michailov: *Surf. Sci.* **202**, 109 (1988)
178. H.W. Fink: Dissertation, Techn. Universität München (1979); unveröffentlicht
179. D. Walton: *J. Chem. Phys.* **37**, 2182 (1962)
180. G. Ehrlich und F.G. Hudda: *J. Chem Phys.* **44**, 1039 (1966)
181. P. Zeppenfeld: **Phasenübergänge und Dynamik von Festkörperoberflächen und physisorbierten Schichten**; Dissertation Universität, Bonn (1989), Jül-Bericht 2305
182. D. Cherns: *Phil. Mag.* **36**, 1429 (1977)
183. L.K. Verheij, E. Van Loenen, J.A. Van den Berg und D.G. Armour: *Nucl. Instr. Meth.* **168**, 595 (1980)
184. L.K. Verheij, J.A. Van den Berg und D.G. Armour: *Surf. Sci.* **122**, 216 (1982)
185. N. Nagel: **Heliumstreuexperimente und Monte-Carlo-Simulationen zum Wachstum einer Platin(111)-Fläche**; Diplomarbeit, Bonn (1991)
186. G.H. Gilmer und P. Bennema: *J. Appl. Phys.* **43**, 1347 (1972)
187. J.D. Weeks, G.H. Gilmer und K.A. Jackson: *J. Chem. Phys.* **65**, 712 (1976)
188. J.D. Weeks und G.H. Gilmer: *Adv. Chem. Phys.* **40**, 157 (1979)

189. G.H. Gilmer: J. Crystal Growth **49**, 465 (1980)
190. E. Zaremba: Surf. Sci. **151**, 91 (1985)
191. R. Altsinger, H. Busch, M. Horn und M. Henzler: Surf. Sci. **200**, 235 (1988)
192. T. Kawamura: Surf. Sci. **148**, L671 (1984)
193. A. Madhukar und S.V. Ghaisas: Appl. Phys. Lett. **47**, 247 (1985)
194. S.V. Ghaisas und A. Madhukar: J. Vac. Sci. Technol. **B 3**, 540 (1985); Phys. Rev. Lett. **56**, 1066 (1986)
195. M. Schneider, A. Rahman und I.K. Schuller: Phys. Rev. Lett. **55**, 604 (1985)
196. S. Clarke und D.D. Vvedenski: Phys. Rev. Lett. **58**, 2235 (1987); Appl. Phys. Lett. **51** 340 (1987); Appl. Phys. Lett. **63** 2272 (1988)
197. D.D. Vvedenski, S. Clarke, K.J. Hugill, M.R. Wilby und T. Kawamura: J. Crystal Growth **99**, 54 (1990);
198. S. Clarke und D.D. Vvedenski: Phys. Rev. **B 36**, 9312 (1987)
199. S. Ferrer und J.J. de Miguel: Vacuum **41**, 464 (1990)
200. B.F. Lewis, F.J. Grunthaner, A. Madhukar, T.C. Lee und R. Fernandez: J. Vac. Sci. Technol. **B 3** 1317 (1985)
201. T. Sakamoto, H. Funabashi, K. Ohta, T. Nakagawa, N.J. Kawai, T. Kojima und Y. Bando: Superlattices and Microstructures **1**, 347 (1985)
202. M. Henzler in *The Structure of Surfaces II*; ed. by J.F. van der Veen und M.A. Van Hove, Springer, Berlin-Heidelberg (1988)
203. J.H. Neave, P.J. Dobson, B.A. Joyce und J. Zhang: Appl. Phys. Lett. **47**, 100 (1985)
204. S. Clarke und D.D. Vvedenski: Surf. Sci. **189/190**, 1033 (1987)
205. J.M. Van Hove, P.R. Pukite und P.I. Cohen: J. Vac. Sci. Technol. **B 3**, 563 (1985)
206. J.W. Evans: Vacuum **41**, 479 (1990)
207. J.W. Evans: Phys. Rev. **B 43**, 3897 (1991)
208. J.W. Evans, D.E. Sanders, P.A. Thiel und A.E. DePristo: Phys. Rev. **B 41**, 5410 (1990)
209. G. Lehmppuhl, A. Ichimiya und H. Nakahara: Surf. Sci. Lett. **245**, L159 (1991)
210. D.W. Bassett, C.K. Chung und D. Tice: Le Vide **176**, 39 (1975)
211. D.W. Bassett: Surf. Sci. **53**, 74 (1975)
212. S.-C. Wang und T.T. Tsong: Surf. Sci. **121**, 85 (1982)
213. H.-W. Fink und G. Ehrlich: Surf. Sci. **143**, 125 (1984)
214. T. Michely und G. Comsa: Phys. Rev. **B** (1991) (im Druck)
215. P.E. Luscher und D.M. Collins: Prog. Crystal Growth Charact. **2**, 15 (1979)
216. P.R. Norton: **The Hydrogen-Oxygen Reaction on Metal Surfaces**; Kap. 2 in *The Chemical Physics of Solid Surfaces and Heterogeneous Catalysis* Vol. 4; ed. by D.A. King; Elsevier, Amsterdam (1982)

217. H. Steininger, S. Lehwald und H. Ibach: Surf. Sci. **123**, 264 (1982)
218. P. Thiel und T.E. Mowley: Surf. Sci. Rep. **7**, 211 (1987)
219. G.N. Derry und P.N. Ross: J. Chem. Phys. **82**, 2772 (1985)
220. A.C. Luntz, M.D. Williams und D.S. Bethune: J. Chem. Phys. **89**, 4381 (1988)
221. L.K. Verheij, M.B. Hugenschmidt, L. Cölln, B. Poelsema und G. Comsa: Chem. Phys. Lett. **166**, 523 (1991)
222. N. Ernst und G. Ehrlich: **Field Ion Microscopy** in *Topics in Current Physics* Vol. 40, Kap. 4; ed. by U. Gonser, Springer, Berlin-Heidelberg (1986)
223. G. Ehrlich: *Proceedings of the Ninth International Vacuum Congress and Fifth International Conference on Solid Surfaces*; ed. By J.L. Segovia, Madrid, Spain (A.S.E.V.A., Madrid, 1983), 3 (1983)

Danksagung

Die vorliegende Dissertation wurde am Institut für Grenzflächenforschung und Vakuumphysik des Forschungszentrums Jülich unter der Anleitung von Prof. Dr. George Comsa durchgeführt. Herrn Comsa gilt mein besonderer Dank für das Zustandekommen dieser Arbeit sowie für die Förderung während meines Aufenthaltes im IGV. Nicht nur sein großes Interesse am Fortgang der Experimente, welches in vielen Diskussionen und Ratschlägen zum Ausdruck kam, sondern auch seine großzügige Unterstützung gerade während der Aufbauphase der Apparatur haben entscheidend zum Gelingen der Arbeit beigetragen. Darüber hinaus möchte ich Herrn Comsa für seine Geduld während der Fertigstellung des Manuskriptes danken.

Ganz besonders herzlich möchte ich auch Herrn Dr. Bene Poelsema danken, unter dessen „Fittichen“ diese Arbeit durchgeführt wurde. Seine stete Diskussionsbereitschaft und Offenheit haben wesentlich zu der nicht nur produktiven sondern auch freundschaftlichen Atmosphäre beigetragen, die während der gesamten Promotionszeit bestanden hat. Ohne seine Anleitung, unzähligen kritischen und fruchtbaren Diskussionen sowie sein Vertrauen wäre diese Arbeit kaum denkbar gewesen.

Dank gilt auch den Mitarbeitern, Gastwissenschaftlern, Doktoranden und Diplomanden, die mich bei dieser Arbeit unterstützt haben:

- Herrn Dr. John E. Parmeter, der gerade zu Beginn der Experimente half, ein „Feeling“ für das untersuchte System zu gewinnen. Seinem experimentellen Fleiß und seinem Einsatz sind viele Erkenntnisse über das Wachstum der Pt-Fläche bei hohen Temperaturen zu verdanken.
- Herrn Dipl.-Phys. Andreas Becker, dem durch seine Hilfe großer Anteil an der Vervollständigung und Interpretation der experimentellen Ergebnisse zukommt. Ihm möchte ich auch insbesondere für die gute und freundschaftliche Zusammenarbeit danken.
- Herrn Dipl.-Phys. Nikolas Nagel, der das Monte-Carlo Programm entwickelt und viel zum Verständnis der Asymmetrie und Dämpfung der Oszillationen beigetragen hat.
- Herrn Prof. Dr. Steven L. Bernasek, der gerade in der Endphase der experimentellen Arbeit bei der Durchführung und Interpretation der Messungen half.
- Herrn Dipl.-Phys. Georg Rosenfeld, Herrn Dipl.-Phys. Ulrich Becher sowie Herrn Dr. Klaus Lenz, denen ich für viele nützliche Tips und Ratschläge sowie für die kameradschaftliche Zusammenarbeit danken möchte.

- Herrn Dr. Laurens K. Verheij, der jederzeit für kritische Diskussionen und viele nützliche Hilfestellungen zur Verfügung stand.

Sehr herzlich möchte ich mich bei Herrn Herbert Kleingans für seine Hilfe und Unterstützung bei dem Aufbau der Apparatur sowie bei der großen Zahl der angefallenen Reparatur- und Wartungsarbeiten während der experimentellen Arbeit bedanken.

Für die Fertigung und Präparation der Kristalle sowie für die Unterstützung bei der Beschaffung und Reinigung der Pt-Plättchen möchte ich Herrn Udo Linke danken.

Dank gilt auch den Mitarbeitern der mechanischen und elektronischen Werkstatt des IGV. Besonders erwähnt sei

- Herr Ziemons und Herr Rausch, deren Unterstützung bei den vielen kleineren und größeren technischen Problemen eine große Hilfe waren.
- Herr Zillikens, dem ich sehr für seinen Einsatz und die Mühe danke, die er sich bei der Konstruktion elektronischer Geräte gemacht hat.
- Herr Mertens, Röhrig, Ringens, Schiffer, Schlögl, Schmitz, Strobl und Winkler, auf deren Hilfe man jederzeit zählen konnte.

Ein großes „Dankeschön“ möchte ich auch Frau Christa Damerow und Herrn Christoph Elsaesser zukommen lassen. Nicht nur im Institut, wo ihre Unterstützung in vielen Tips und Ratschlägen zum Ausdruck kam, sondern gerade ihre Freundschaft haben viel zu der guten Zeit hier in Jülich beigetragen.

Bedanken möchte ich mich auch bei Bene Poelsema, Peter Zeppenfeld, Andreas Becker, Georg Rosenfeld, Klaus Kuhnke und Markus Hugenschmidt für ihre Kommentare beim Lesen des Manuskriptes.

Allen hier nicht genannten Mitarbeitern des IGV danke ich für viele fruchtbare Diskussionen, Tips und Ratschläge sowie für die gute und angenehme Zusammenarbeit.

JUL-2520
September 1991
ISSN 0366-0885