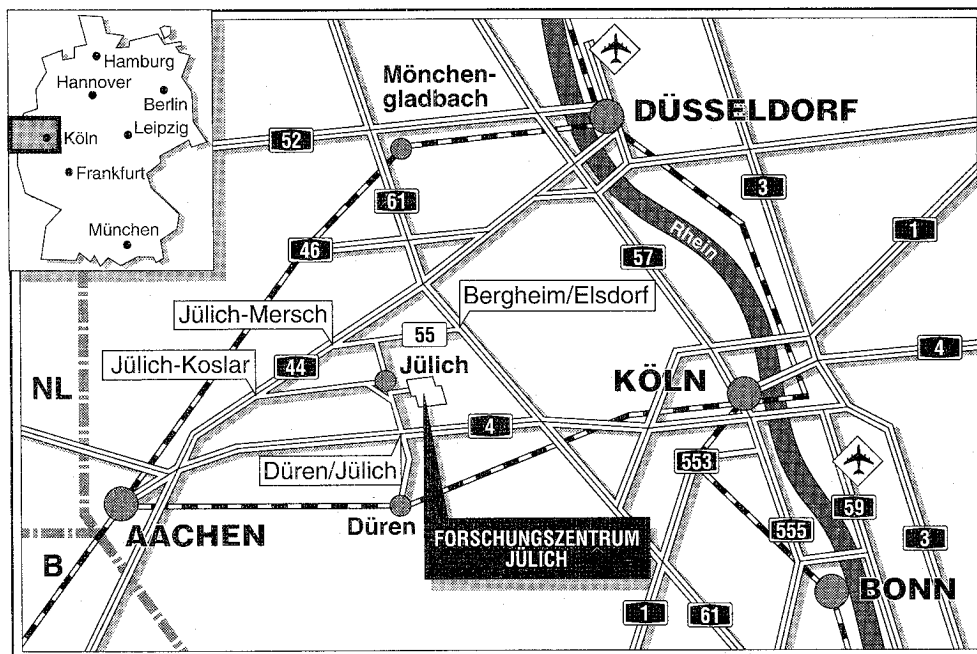


Institut für Festkörperforschung

**Charakterisierung epitaktischer
GaAs/AlGaAs-Schichtsysteme
mittels Streuung harter Röntgen-
strahlen unter streifendem Einfall
sowie Röntgenbeugung**

Uwe Klemradt



Berichte des Forschungszentrums Jülich ; 2894

ISSN 0944-2952

Institut für Festkörperforschung Jül-2894

D 82 (Diss. RWTH Aachen)

Zu beziehen durch : Forschungszentrum Jülich GmbH · Zentralbibliothek

D-52425 Jülich · Bundesrepublik Deutschland

Telefon : 024 61 / 61 - 61 02 · Telefax : 024 61 / 61 - 61 03 · Telex : 8 33 556-70 kfa d

Charakterisierung epitaktischer GaAs/AlGaAs - Schichtsysteme mittels Streuung harter Röntgen- strahlen unter streifendem Einfall sowie Röntgenbeugung

Uwe Klemradt

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung und Problemstellung	3
2	Herstellung und strukturelle Eigenschaften epitaktischer GaAs/AlGaAs-Schichtsysteme	6
2.1	Kristallstruktur und Vegardsche Regel	6
2.2	Gitterfehlpassung	7
2.3	Molekularstrahl-Epitaxie	9
2.3.1	Depositionsverfahren	9
2.3.2	Grenzflächenschärfe	11
3	Streuung harter Röntgenstrahlen	16
3.1	Wechselwirkung harter Röntgenstrahlen mit Materie	16
3.1.1	Reflexion und Brechung elektromagnetischer Wellen	16
3.1.2	Absorption und Dispersion	18
3.1.3	Streifender Einfall	21
3.2	Spiegelnde Reflektivität unter streifendem Einfall	27
3.2.1	Glatte Grenzflächen	27
3.2.2	Rauhe Grenzflächen	31
3.3	Röntgenbeugung	36
3.3.1	Kinematische Streutheorie	36
3.3.2	Dynamische Streutheorie	39
3.4	Diffuse Streuung unter streifendem Einfall	42
4	Experimenteller Aufbau	46
4.1	Spektrometer	46
4.1.1	Monochromator	47
4.1.2	Goniometer	48
4.1.3	Blendensystem	49
4.1.4	Detektoren	50
4.1.5	Steuerung und Datenerfassung	52
4.2	Probenjustage	54
4.3	Arten der Messung	55
4.3.1	Spiegelnde Reflektivität bei streifendem Einfall	55
4.3.2	Diffuse Streuung bei streifendem Einfall	56
4.3.3	Beugung	56
4.3.4	Kantenstruktur u. EXAFS in Transmission	58

4.3.5	Kantenstruktur u. EXAFS bei streifendem Einfall	58
4.4	Auflösungsbetrachtungen	59
5	Proben	62
5.1	Beschreibung der Proben	62
5.2	Charakterisierung der Proben mit anderen Methoden	64
5.2.1	Transmissionselektronenmikroskopie	64
5.2.2	Rasterkraftmikroskopie	67
5.2.3	Rutherford-Rückstreuung	71
5.2.4	Ellipsometrie	71
5.2.5	Ramanspektroskopie	73
5.2.6	Photoemissionsspektroskopie	73
5.2.7	Optische Konturmessung	74
6	Auswertung der Röntgenstreuemessungen und Diskussion	75
6.1	Absorptionsspektroskopie	75
6.2	Röntgenbeugung	79
6.3	Spiegelnde Reflexion unter streifendem Einfall	86
6.4	Diffuse Streuung unter streifendem Einfall	107
6.5	Diskussion der Ergebnisse	116
6.5.1	Oxid	116
6.5.2	GaAs/AlGaAs	118
7	Zusammenfassung und Ausblick	127
	Anhang	131
A	Statistische Skaleninvarianz von Grenzflächen	131
A.1	Statischer Fall : Grenzflächen-Morphologie	131
A.2	Dynamischer Fall : Wachsende Oberflächen	132
A.3	Fraktale Dimension von Grenzflächen	137
B	Materialparameter	138
	Literaturverzeichnis	139

Kapitel 1

Einleitung und Problemstellung

Epitaktische Halbleiter-Schichtsysteme sind sowohl für die Grundlagenforschung als auch für industrielle Anwendungen von großem Interesse, da die Möglichkeit der kontrollierten Materialabscheidung bis hinab zu Nanometer-Längenskalen es erlaubt, Halbleiterstrukturen mit völlig neuen bzw. maßgeschneiderten Eigenschaften herzustellen. Beispielhaft seien hier die Entdeckung des quantisierten Hall-Effektes und die Entwicklung optoelektronischer Bauelemente mit vordefinierter spektraler Charakteristik genannt.

Die Verwendung von sogenannten III-V-Halbleitern in der Informationstechnologie ist durch folgende Vorzüge motiviert :

Diese Verbindungshalbleiter besitzen im Gegensatz zu den Elementhalbleitern Si und Ge eine direkte Energielücke zwischen Valenz- und Leitungsband, die sie für optoelektronische Anwendungen prädestiniert. Die gezielte Einstellung von Materialparametern wird erleichtert durch die Vielzahl möglicher Legierungen der III-V-Halbleiter zu ternären oder quaternären Mischkristallen; dies wurde z.B. genutzt, um Lichtquellen und -empfänger hinsichtlich eines Einsatzes in Glasfaser-Kommunikationsnetzen zu optimieren (minimale Absorption bei Wellenlängen um $1.3\ \mu\text{m}$ bzw. $1.55\ \mu\text{m}$).

Außerdem zeigen die III-V-Halbleiter i.d.R. bereits als Volumenmaterial eine höhere Elektronenbeweglichkeit als Si, dem sonst am häufigsten für Halbleiterbauelemente verwendeten Material. Die Abscheidung dünner Schichten unterschiedlicher Zusammensetzung und Dotierung erlaubt die Herstellung von Halbleiter-Heterostrukturen, in denen die Bewegung der Ladungsträger auf zwei Dimensionen beschränkt ist, was die Beweglichkeit der Elektronen noch einmal deutlich steigern kann. Eine Anwendung stellen besonders rauscharme Transistoren mit sehr kurzen Schaltzeiten dar, wie sie als Verstärker bei der Satellitenkommunikation mit Übertragungsfrequenzen zwischen 10 und 30 GHz zu finden sind.

Mittels Molekularstrahl-Epitaxie hergestellte GaAs/AlGaAs-Heterostrukturen sind zu klassischen Repräsentanten dieser Technologie geworden. Dies liegt einerseits an der Eignung dieses Systems für die Epitaxie, da die Gitterkonstanten von GaAs und AlAs sich nur um 0.15 % unterscheiden. Andererseits hat die Molekularstrahl-Epitaxie seit ihrer Einführung vor rund 30 Jahren Maßstäbe in der kontrollierten schichtweisen Deposition verschiedener kristalliner Halbleiter gesetzt. Die so hergestellten Grenzflächen hoher Perfektion sind entscheidend für das Funktionieren vieler Bauelemente.

In der Nähe oder direkt an den Grenzflächen der Halbleiterheterostrukturen findet Ladungstransport und/oder (nicht-)strahlende Rekombination von Ladungsträgern statt, so daß die strukturelle Unordnung der Grenzflächen einen starken Einfluß auf die Qualität der späteren Bauelemente nehmen kann. Für eine Optimierung der Bauelementeigenschaften ist also eine Charakterisierung der teilweise tief vergrabenen Grenzflächen sowie eine Korrelation ihrer Perfektion mit den Wachstumsparametern sehr hilfreich.

Die Bedeutung der Grenzflächenqualität für den Verlauf von Strom-Spannungskennlinien wird beispielsweise durch eine aktuelle Arbeit von Förster et al. [1994] über Tunnelndioden untermauert. Diese Bauelemente haben in ihren Kennlinien Bereiche negativ differentiellen Widerstandes, der z.B. Anwendungen als resonante Tunnel-Oszillatoren bei Frequenzen von einigen 100 GHz möglich macht. Es stellte sich heraus, daß dieser Bereich der Kennlinie wesentlich von der Grenzflächenschärfe beeinflusst wird, die wiederum von der Substrattemperatur während der Epitaxie abhängt.

Die Streuung harter Röntgenstrahlen ist zur zerstörungsfreien Charakterisierung von Schichtsystemen sehr gut geeignet. Die damit verbundenen Meßmethoden liefern quantitative Ergebnisse, können eine Auflösung bis in den Ångstrombereich besitzen und auch innere Grenzflächen zugänglich machen. Zudem ist im allgemeinen keine besondere Probenpräparation erforderlich.

Zur Charakterisierung kristalliner Halbleiterheterostrukturen ist die hochauflösende Röntgenbeugung am weitesten verbreitet. In vielen Fällen wird sie lediglich zur relativ schnellen Ermittlung von Schichtdicken und Mischkristall-Zusammensetzungen benutzt.

In den letzten Jahren hat jedoch auch die Röntgenstreuung unter streifendem Einfall zunehmend an Bedeutung gewonnen. Die spiegelnde Reflektivität kann schon als nahezu etabliertes Verfahren gelten, während die Nutzung der diffusen Streuung um den spekularen Reflex erst in den Anfängen steckt. Mit diesen Methoden ist insbesondere eine Charakterisierung von Grenzflächenrauigkeiten auf mikroskopischen und mesoskopischen Längenskalen möglich. Je nach Meßbedingungen können dabei vertikale und laterale Eigenschaften der rauhen Grenzfläche bestimmt werden.

In der vorliegenden Arbeit werden durch Molekularstrahl-Epitaxie hergestellte GaAs/AlGaAs-Schichtsysteme auch durch den Einsatz dieser Methoden charakterisiert. Dabei werden mehrere Ziele verfolgt :

Neben den methodischen Aspekten der Charakterisierung mittels Röntgenreflexion unter streifendem Einfall soll der Einfluß von Wachstumstemperaturen über 600°C auf die Breite der Heteroübergänge untersucht werden. Dies stellt einerseits einen Test für die Empfindlichkeit der Methoden und Signifikanz der Ergebnisse dar und ist andererseits von Bedeutung für die Interpretation elektrischer Messungen an (bei ähnlich hohen Temperaturen hergestellter) Proben, bei der nicht nur die strukturelle Perfektion der Grenzflächen, sondern auch die thermisch aktivierte Verschmierung von Dotierprofilen zu berücksichtigen ist.

Darüber hinaus erlaubt die zusätzliche Charakterisierung der Proben mittels Transmis-

sionselektronenmikroskopie, Rasterkraftmikroskopie, Rutherford-Rückstreuung, Ellipsometrie, Ramanspektroskopie und Photoemissionsspektroskopie einen Vergleich bzw. eine Korrelation der Ergebnisse von Untersuchungsmethoden, die auf ganz unterschiedlichen physikalischen Prinzipien beruhen.

Die Arbeit ist wie folgt aufgebaut :

In Kapitel 2 wird kurz auf die Herstellung und strukturellen Eigenschaften der GaAs/AlGaAs-Schichtsysteme unter besonderer Berücksichtigung der Grenzflächenschärfe eingegangen.

Kapitel 3 beschäftigt sich mit den theoretischen Grundlagen der jeweiligen Streuverfahren und der Simulation der Meßergebnisse.

Kapitel 4 ist dem experimentellen Aufbau gewidmet.

In Kapitel 5 werden die Proben beschrieben und die Ergebnisse ihrer Charakterisierung mit anderen Methoden vorgestellt.

Die Auswertung der Röntgenstreuemessungen und Diskussion der Resultate ist in Kapitel 6 zu finden.

Kapitel 7 faßt die wichtigsten Ergebnisse zusammen und gibt einen Ausblick.

Im Anhang wird auf die Theorie der statistischen Skaleninvarianz von Grenzflächen eingegangen. Neben theoretischen Vorstellungen zum Wachstumsprozeß an Oberflächen wird die Bedeutung der in der diffusen Streuung verwendeten Parameter Korrelationslänge und Rauigkeitsexponent dargelegt.

Kapitel 2

Herstellung und strukturelle Eigenschaften epitaktischer GaAs/AlGaAs-Schichtsysteme

2.1 Kristallstruktur und Vegardsche Regel

GaAs und AlAs gehören zu den sogenannten III-V-Halbleitern, die (unter Normaldruck) tetraedrisch koordinierte Gitter mit Zinkblende-Struktur bilden. Durch die Besetzung der beiden kubisch-flächenzentrierten Untergitter mit Atomen der Gruppe III bzw. Gruppe V entsteht eine polare Einheitszelle, deren (111)-Ebenen abwechselnd nur Atome der einen bzw. der anderen Gruppe aufweisen. Dies führt zu einer leichten Spaltbarkeit dieser Kristalle längs der [110]-Richtungen. Die lückenlose Misch-

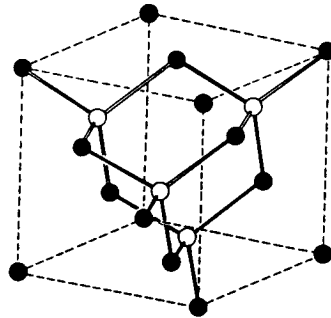


Abbildung 2.1: Konventionelle Einheitszelle der III-V-Halbleiter mit Zinkblende-Struktur.

barkeit von GaAs und AlAs ermöglicht die Herstellung ternärer Halbleiter vom Typ $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ ($0 \leq x \leq 1$), die ebenfalls Zinkblende-Struktur besitzen. Viele elektronische und strukturelle Eigenschaften dieser Mischkristalle ändern sich stetig mit der chemischen Zusammensetzung [Landolt-Börnstein 1987]; die Gitterkonstante sollte nach

Vegard [1921] durch lineare Interpolation zu finden sein :

$$a_{Al_xGa_{1-x}As} = a_{GaAs} + x \cdot (a_{AlAs} - a_{GaAs}). \quad (2.1)$$

Die Anwendbarkeit der Vegardschen Regel auf das System AlGaAs wird sicherlich durch die fast identischen Gitterkonstanten von GaAs und AlAs begünstigt (der Unterschied beträgt lediglich 0.15 % , s. Anhang B). Die technologische Bedeutung des AlGaAs hat darüber hinaus in jüngerer Zeit zu theoretischen und experimentellen Untersuchungen Anlaß gegeben, die die Gültigkeit von Gl. (2.1) bestätigen :

Oshiyama und Saito [1987] fanden bei Gesamtenergieberechnungen einen linearen Anstieg der Gitterkonstanten mit dem Al-Gehalt x . Diese mit Hilfe der Dichtefunktionaltheorie durchgeführten Rechnungen enthielten keinerlei an experimentelle Daten anzupassende Parameter.

Auf der experimentellen Seite ist neben dem Übersichtsartikel von Adachi [1985] insbesondere die Arbeit von Xiong et al. [1988] erwähnenswert, in welcher epitaktisches $Al_xGa_{1-x}As$ auf GaAs(001) betrachtet wird. Der Gitterparameter in Wachstumsrichtung wurde mittels Röntgenbeugung bestimmt, während eine unabhängige kernphysikalische Meßmethode ¹ den Al-Anteil ergab. Die resultierende streng lineare Abhängigkeit des Gitterparameters vom Al-Anteil über den gesamten Mischbereich $0 \leq x \leq 1$ untermauert die Gültigkeit der Vegardschen Regel ².

2.2 Gitterfehlpassung

Die bei der Herstellung kristalliner Halbleiterheterostrukturen verwendeten Materialien besitzen im allgemeinen unterschiedliche Gitterkonstanten. Im folgenden wird die Gitterkonstante des Substrats mit a_S und diejenige des aufzubringenden Materials mit a_L bezeichnet. Ist die (relaxierte) Gitterfehlpassung

$$\frac{\Delta a}{a} := \frac{a_L - a_S}{a_S} \quad (2.2)$$

nicht zu groß, nimmt die aufwachsende Schicht lateral (d.h. senkrecht zur Wachstumsrichtung) zunächst die Gitterkonstante des Substrats an. Die mit diesem sogenannten pseudomorphen Wachstum einhergehenden Verspannungen erniedrigen i.d.R. die Symmetrie der Einheitszelle durch deren elastische Verzerrung in Wachstumsrichtung. Ab einer kritischen Schichtdicke (die stark von $\Delta a/a$ abhängt) relaxiert das Material unter Versetzungsbildung, anstatt weiter elastische Energie zu speichern. Zur Berechnung kritischer Schichtdicken gibt es verschiedene Ansätze [Matthews u. Blakeslee 1974, People u. Bean 1985]. Das Ausmaß der Relaxation kann röntgenographisch durch die Messung

¹Die Analyse basiert auf der resonanten Kernumwandlung $^{27}Al(p, \gamma)^{28}Si$ nach geeignetem Protonenbeschuß. Die Intensität der dabei emittierten charakteristischen γ -Strahlung stellt ein Maß für den Al-Gehalt der Probe dar.

²Der Gitterparameter in Wachstumsrichtung hängt auch von elastischen Konstanten des Mischkristalls ab (s. nächster Abschnitt). Die Variation des betreffenden Ausdrucks mit dem Al-Anteil ist jedoch sehr schwach (s. Abschnitt 6.2) und innerhalb der experimentellen Fehlergrenzen gegenüber der Veränderung der Gitterkonstanten mit dem Al-Gehalt zu vernachlässigen.

der lateralen Gitterfehlpassung bestimmt werden. Die vertikale und laterale Gitterfehlpassung werden bezüglich des Substrats definiert :

$$\begin{aligned}\left(\frac{\Delta d}{d}\right)^\perp &:= \frac{d_L^\perp - a_S}{a_S}, \\ \left(\frac{\Delta d}{d}\right)^\parallel &:= \frac{d_L^\parallel - a_S}{a_S}.\end{aligned}\quad (2.3)$$

Für eine versetzungsfreie Schicht gilt also $\left(\frac{\Delta d}{d}\right)^\parallel = 0$. Die weitere Rechnung setzt (001)-orientierte Substrate voraus (s. Hornstra und Bartels [1978] für eine Verallgemeinerung auf beliebige kristallographische Orientierungen).

Ein biaxiales Dehnungsmodell ergibt folgende Beziehung zwischen den Elementen des Dehnungstensors (ϵ_{ij}), in welche die elastischen Konstanten c_{11} und c_{12} der Schicht eingehen :

$$\epsilon_{zz} = -\frac{c_{12}}{c_{11}} (\epsilon_{xx} + \epsilon_{yy}). \quad (2.4)$$

Per Definition werden die ϵ_{ij} auf die jeweilige Schicht bezogen :

$$\begin{aligned}\epsilon_{zz} &= \frac{d_L^\perp - a_L}{a_L}, \\ \epsilon_{xx} &= \frac{d_L^\parallel - a_L}{a_L}, \\ \epsilon_{yy} &= \epsilon_{xx}.\end{aligned}\quad (2.5)$$

Obige Gleichungen implizieren eine tetragonal verzerrte Einheitszelle, wie sie beim pseudomorphen Wachstum auf (001)-Substraten auftritt (s. Abb. 2.2). Diese Symmetrie

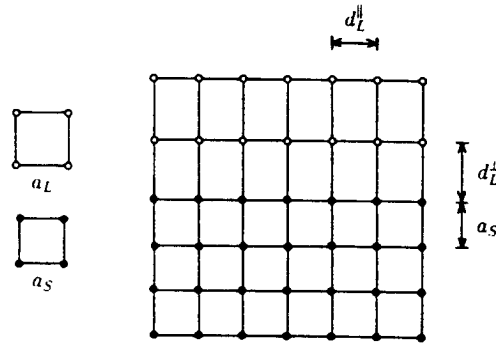


Abbildung 2.2: Pseudomorphes Schichtwachstum : Unterhalb einer kritischen Schichtdicke nimmt die Schicht lateral die Gitterkonstante a_S des Substrats an. Die Einheitszelle des Schichtmaterials (Gitterkonstante a_L) wird dabei tetragonal verzerrt (aus [Zaus 1992]).

wird häufig auch bei der Relaxation durch Versetzungsbildung beibehalten ³, bei der typischerweise ein Netzwerk von Versetzungslinien an der Grenzfläche zwischen Schicht und Substrat parallel zu den [110]-Richtungen entsteht [Matthews u. Blakeslee 1974]. Einsetzen in Gl. (2.4) ergibt :

$$\frac{\Delta a}{a} = \frac{c_{11}}{c_{11} + 2c_{12}} \left(\frac{\Delta d}{d} \right)^{\perp} + \frac{2c_{12}}{c_{11} + 2c_{12}} \left(\frac{\Delta d}{d} \right)^{\parallel} . \quad (2.6)$$

Die relaxierte Gitterfehlpassung kann sich also - abhängig vom Relaxationsgrad - um einen Faktor eins bis zwei (s. Anhang B) von der vertikalen röntgenographischen Fehlpassung unterscheiden.

Gl. (2.6) bietet im Prinzip die Möglichkeit, aus Röntgenbeugungsmessungen mit Hilfe der Vegardschen Regel chemische Zusammensetzungen zu bestimmen. Dabei ist jedoch der Fewster-Curling-Effekt zu beachten (s. Abschnitt 3.3.1).

2.3 Molekularstrahl-Epitaxie

2.3.1 Depositionsverfahren

Die Molekularstrahl-Epitaxie ("molecular beam epitaxy", MBE) ist ein Verfahren zur Herstellung sehr dünner Halbleiter- und Metallschichten hoher kristalliner Perfektion. Charakteristisch ist das zweidimensionale Lagenwachstum mit einer niedrigen Wachstumsrate von ungefähr einer Monolage pro Sekunde. Es beruht auf der Reaktion nicht-ionisierter Atom- und Molekülstrahlen mit einer heißen Substratoberfläche ($\approx 600^{\circ}\text{C}$). Das aufzuwachsende Material und die Dotierstoffe werden aus sogenannten Effusionszellen thermisch verdampft und bilden räumlich scharf begrenzte Strahlen aus, die auf das Substrat gerichtet sind (unter den in der Präparationskammer herrschenden Ultrahochvakuum(UHV)-Bedingungen sind die mittleren freien Weglängen der Atome bzw. Moleküle deutlich größer als der Abstand der Quellen zum Substrat).

Im Unterschied zu Epitaxieverfahren, welche auf der Abscheidung aus der Gasphase basieren (z.B. "metal organic chemical vapor deposition", MOCVD) handelt es sich bei der MBE um eine physikalische Depositionstechnik, da chemische Reaktionen in der Gasphase für das Schichtwachstum unbedeutend sind. Bei einem Strahl-
druck ⁴ von etwa 10^{-3} Pa ist dazu die Teilchendichte und somit die Stoßfrequenz zu gering; das Schichtwachstum geschieht über thermisch aktivierte Oberflächenreaktionen. Der Vorteil dieses Verfahrens liegt in der hohen Perfektion von Grenzflächen, die die Strukturierbarkeit von Halbleiterschichtsystemen bis hinab zu atomaren Dimensionen ermöglicht. Nachteilig ist zweifellos der mit dem UHV-Prozeß verbundene hohe Aufwand sowie die geringe Wachstumsrate von $\mu\text{m/h}$ (dies begrenzt den industriellen Einsatz auf Sonderfälle).

Abb. 2.3 zeigt eine typische Präparationskammer. Das Wachstum findet in einer

³Die Polarität der Einheitszelle *kann* bei III-V-Halbleitern jedoch zu einer unterschiedlichen Versetzungsbildung in [110]- und $[1\bar{1}0]$ -Richtung führen [Nagai 1981]. Mit $\epsilon_{xx} \neq \epsilon_{yy}$ besitzt die Einheitszelle dann orthorhombische Symmetrie. Dieser Fall soll hier nicht weiter betrachtet werden.

⁴Der Fluß von Effusionszellen wird üblicherweise als Strahläquivalentdruck ("beam equivalent pressure", BEP) angegeben.

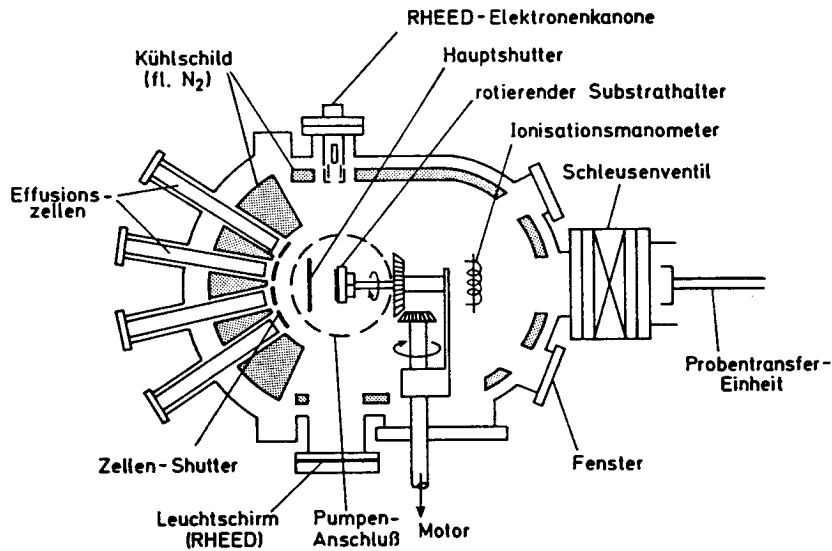


Abbildung 2.3: Schematische Ultrahochvakuum-Kammer für Molekularstrahl-Epitaxie (aus [Ibach u. Lüth 1990]).

ausheizbaren Edelstahlkammer statt, die neben Pumpsystemen mit flüssigem Stickstoff gekühlte Schilde enthält, um einen permanenten Hintergrunddruck von 10^{-8} Pa aufrechtzuerhalten. Die vor den Effusionszellen angebrachten, mechanisch betriebenen Verschlüsse ermöglichen durch schnelles Umschalten ($\ll 1$ sec) der Materialflüsse die Herstellung von Grenzflächen mit einer Schärfe im Monolagenbereich. Aus geometrischen Gründen sind die Substrate (typischerweise 2"-GaAs(001)-Wafer) einem ortsabhängigen Fluß ausgesetzt. Das Substrat wird (z.T. mit dem Lagenwachstum synchronisiert) rotiert, um die Homogenität zu erhöhen. Die so erhaltenen radialsymmetrischen Schichtdickenverteilungen weisen Fluktuationen von weniger als 1 % über den gesamten Wafer auf [Kubon 1991].

Die Oberflächenstruktur kann während des Wachstums mit Hilfe der Beugung hochenergetischer Elektronen beobachtet werden ("reflection high energy electron diffraction", RHEED). Diese Methode wird heute standardmäßig eingesetzt. Die unter einem Winkel von 1° bis 3° einfallenden Elektronen mit typischen Energien um 10 keV werden sowohl gebeugt als auch spiegelnd reflektiert. Das Beugungsmuster enthält dabei Information über die Symmetrie der Oberfläche, die unter Wachstumsbedingungen meistens in einem rekonstruierten Zustand vorliegt. Das Lagenwachstum führt zu Oszillationen in der Intensität des spiegelnd reflektierten Elektronenstrahls, die zur Kalibration der Wachstumsrate genutzt werden.

Die grundlegenden Wachstumsprozesse werden im Joyce-Foxon-Modell beschrieben [Foxon u. Joyce 1975, Foxon 1978]; im folgenden wird das GaAs-Wachstum mit As_4 -Molekülen bei Temperaturen um 600°C skizziert.

Nach der Verdampfung liegt Ga in atomarer Form vor, während durch Sublimation As_4 -Moleküle gebildet werden. Da die auf der Oberfläche nach dem Auftreffen zufallsverteilten Komponenten erst zu einer kristallinen Einbauposition diffundieren müssen,

wird eine hohe Substrattemperatur gewählt, die jedoch zum Abdampfen von As aus der Oberfläche führt. Ein As-Überschuß beim Wachstum wirkt dem entgegen; unter diesen Bedingungen zeigt die Oberfläche eine (2x4)-Rekonstruktion (s. Abb. 2.4). Ga-Atome werden sofort chemisorbiert; ihr Haftkoeffizient liegt nahe bei eins. Der Einbau von As ist komplizierter, weil As₄-Moleküle zunächst nur schwach adsorbiert werden (dazu ist bereits die Präsenz von Ga notwendig). Erst die Bildung eines Zwischenkomplexes aus zwei As₄-Molekülen mit anschließender Dissoziation führt zur Anlagerung von As; überschüssiges As desorbiert dabei.

Die Wachstumsrate hängt demnach vom Ga-Fluß ab; stöchiometrisches Wachstum ist nicht an eine stöchiometrische Strahlzusammensetzung gebunden. Das komplexe Geschehen an der Oberfläche hängt eng mit den detaillierten Wachstumsbedingungen zusammen, wie das Phasendiagramm (Abb. 2.4) zeigt. Ein Wechsel dieser Bedingungen kann nicht nur die Oberflächenrekonstruktion ändern, sondern auch zu einem veränderten Wachstumsmechanismus führen (z.B. andere Haftkoeffizienten, verstärkte Ga-Desorption).

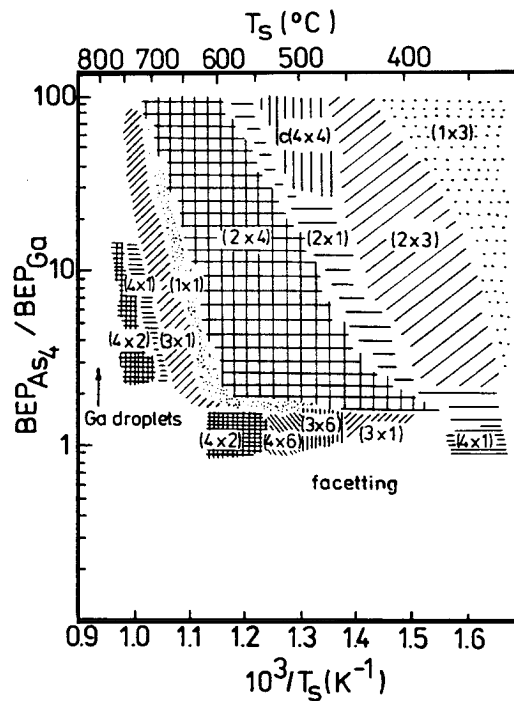


Abbildung 2.4: Phasendiagramm der GaAs(001)-Oberfläche in Abhängigkeit von den MBE-Wachstumsparametern Substrattemperatur und V/III-Flußverhältnis (aus [Däweritz u. Hey 1990]).

2.3.2 Grenzflächenschärfe

Generell werden bei der Schichtherstellung drei Wachstumsmodi unterschieden : Frank-van der Merwe-Wachstum (zweidimensionales Lagenwachstum), Volmer-Weber-Wachstum (dreidimensionales Inselwachstum) und ein nach Stranski und Krastanov

benannter Übergangsmodus. Sie unterscheiden sich durch die Bindung der auftretenden Teilchen an das Substrat. Da bei der Molekularstrahl-Epitaxie schichtweises Wachstum angestrebt ist, darf die Oberflächendiffusion nicht zu limitiert sein. Abb. 2.5 zeigt die Auswirkung verschieden stark aktivierter Oberflächendiffusion :

Bild (a) stellt das Resultat der Computersimulation eines einfachen Depositionsmodells dar, in welchem Teilchen von oben statistisch "herabregnen" und entweder das Substrat oder eine Säule erreichen, wo sie liegenbleiben. Dies führt zu einem unkorrelierten Wachstum benachbarter Säulen, wie man es experimentell bei der Beschichtung kalter Substrate findet [Family 1990]. Die Grenzflächenrauigkeit nimmt dabei - bedingt durch die Kumulation zufälliger Fluktuationen - mit steigender Schichtdicke zu, wie eine einfache Rechnung zeigt [Villain 1991] :

Betrachtet man eine Säule der Grundfläche $l \cdot l$ und der Höhe z , so enthält sie $N = l^2 z$ auf das anfänglich flache Substrat abgeschiedene Atome ⁵. Die Höhenverteilung folgt den statistischen Schwankungen in der Strahlintensität ($\sim \sqrt{N}$), daraus ergibt sich eine mittlere Höhenschwankung von :

$$\delta z = \frac{\sqrt{z}}{l} \quad . \quad (2.7)$$

Oberflächendiffusion führt zu einer Glättung der Oberfläche, wie sie in Bild (b) dargestellt ist (dies ähnelt den Auswirkungen der Oberflächenspannung in Flüssigkeiten [Family 1990]). Die lokale Diffusion bewirkt eine nicht-triviale Korrelation verschiedener Säulen, die sich im Laufe der Zeit ausbreitet (vgl. Anhang A.2). In diesem Fall wird der Exponent 1/2 in Gl. (2.7) durch einen anderen ersetzt (s. Gl. (A.16)).

Bild (c) zeigt ein vollkommenes Lagenwachstum, wie es einer sehr starken Oberflächendiffusion entspricht. Mit dem MBE-Wachstum assoziiert man üblicherweise dieses Bild aufgrund der hohen Substrattemperaturen. Es ist jedoch nur auf mikroskopischen Längenskalen gültig; auf größeren Längenskalen muß dieses Bild wegen der begrenzten Diffusion in Richtung von Bild (b) modifiziert werden. Dieser als "kinetische Aufrauhung" bezeichnete Vorgang führt also beim Wachstum dickerer Schichten zu einer verschlechterten Oberflächenmorphologie (s. Anhang A).

Die Theorie der kinetischen Aufrauhung liefert die wichtige Erkenntnis, daß allein schon das Rauschen der Atom- und Molekülstrahlen die Oberfläche aufrauht. Die prinzipielle Anwendbarkeit dieser Theorie auf das MBE-Wachstum ist von Chevrier et al. [1991] für das System Eisen auf Silizium(111) mit Hilfe von RHEED-Messungen gezeigt worden.

Es existiert eine enge Verbindung zwischen der Oberflächenmorphologie und der spiegelnd reflektierten RHEED-Intensität, welche kürzlich im Detail für das Wachstum von GaAs auf GaAs(001) bei 555°C Substrattemperatur aufgeklärt worden ist [Sudijono et al. 1992, 1993]. Die Kombination eines Rastertunnelmikroskops mit einem RHEED-System erlaubte es, für verschiedene Stadien der Deposition Oberflächenstrukturen mit RHEED-Intensitäten zu korrelieren. In jedem Fall ergab sich eine direkte Korrespondenz zwischen der RHEED-Intensität und der Stufendichte der Oberfläche. Die zu Beginn des Wachstums auftretenden Oszillationen in der RHEED-Intensität

⁵Die Längen seien dabei in Einheiten einer Gitterkonstanten angegeben, so daß sie dimensionslos sind.

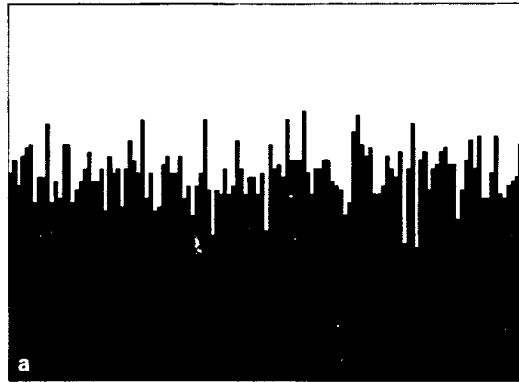
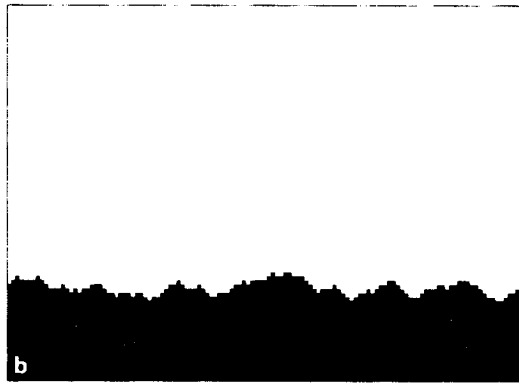
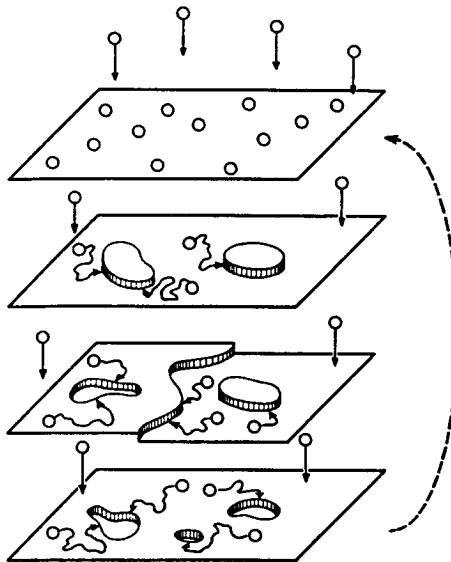


Abbildung 2.5: (a) Computersimulation der Grenzfläche in einem einfachen Depositionsmodell ohne Oberflächendiffusion (aus [Family 1990]).



(b) Auswirkung aktivierter Oberflächendiffusion auf die Grenzflächenstruktur unter ansonsten identischen Simulationsbedingungen (ibd.).



(c) Ideales Lagenwachstum bei extremer Oberflächendiffusion (nach [Villain 1991]).

(s. Abb. 2.6) konnten auf eine zwischen zweidimensionalen Inseln und flachen Terrassen zyklisch wechselnde Morphologie zurückgeführt werden. Die Dämpfung der Oszillationen ging einher mit der Entstehung einer stationären Stufendichteverteilung. Im weiteren Verlauf des Wachstums wurde eine allmähliche Aufrauung der Oberfläche beobachtet. Das Lagenwachstum blieb im Mittel erhalten, auch wenn z.T. (flache) Inseln auf Inseln zu wachsen begannen.

Die Empfindlichkeit der RHEED-Intensität auf die Oberflächenmorphologie kann bei der Heteroepitaxie genutzt werden, um die Qualität der späteren vergrabenen Grenzflächen abzuschätzen. Die spätere Grenzflächenrauigkeit wird vom Profil der momentanen dynamischen Wachstumsfront vorgeprägt, wenn von einem Materialsystem auf das andere umgeschaltet wird ⁶ [Madhukar 1990]. Wächst man $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ auf GaAs auf, spricht man von einer normalen Grenzfläche, während es sich im umgekehrten Fall um eine invertierte Grenzfläche handelt. Diese beiden Grenzflächen sind nicht äquivalent, wie Abb. 2.6 zeigt : Betrachtet man zunächst die obere Kurve, so stellt man einen raschen Abfall der RHEED-Intensität nach Öffnen des Al-Schließers (+Al) fest, begleitet von langsam gedämpften Oszillationen. Die mittlere Intensität liegt beim Wachstum von AlAs deutlich niedriger als beim Wachstum von GaAs. Dies wird zurückgeführt auf die größere Rauigkeit der AlAs-Wachstumsfront (s. auch [Däweritz u. Hey 1990]). Ihre mikroskopische Ursache liegt in der kleineren Oberflächenbeweglichkeit der Al-Atome (verglichen mit den Ga-Atomen) ⁷ [Madhukar 1988], die zu einer schlechteren Glättung von Unebenheiten führt.

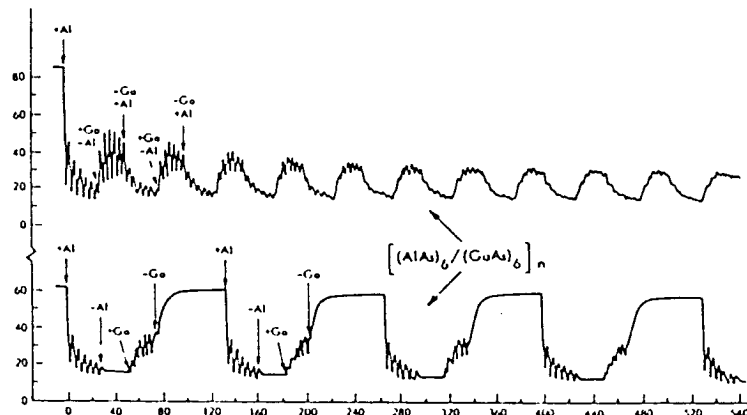


Abbildung 2.6: Zeitabhängige RHEED-Intensität (spiegelnd reflektierter Strahl) beim Wachstum von GaAs/AlAs-Übergittern. Obere Kurve : kontinuierliches Wachstum, untere Kurve : mit Wachstumsstopp beim Wechsel von Ga zu As (aus [Madhukar 1990]).

⁶Die Mikrostruktur der Grenzfläche wird jedoch ebenfalls von der (während des Wachstums thermisch aktivierten) Interdiffusion der Materialsysteme beeinflusst.

⁷Al ist stärker an das As der Oberfläche gebunden als Ga, was die Migrationsrate des Al und seiner unmittelbaren Nachbarn verkleinert.

Man beachte, daß die *volle* RHEED-Anfangsintensität auch beim darauffolgenden Wachstum von GaAs nicht wieder erreicht wird. Dies ändert sich erst bei der Einführung von sogenannten Wachstumsstopps (unteres Bild). Bei einem Wachstumsstopp wird generell der Fluß der Gruppe III-Elemente durch Schließen der entsprechenden mechanischen Klappen unterbrochen. Der Wafer bleibt dabei geheizt und unter As-Stabilisierung. Wegen der Vergrößerung der Diffusionslänge $\sim \sqrt{t}$ haben die das Wachstum kontrollierenden Gruppe III-Elemente dann eine größere effektive Migrationslänge. Wachstumsstopps sind vor allem effektiv bei normalen Grenzflächen. Sie können jedoch auch bei invertierten Grenzflächen mit stark binärem Charakter des AlGaAs Wirkung zeigen [Tanaka u. Sakaki 1987].

Kapitel 3

Streuung harter Röntgenstrahlen

3.1 Wechselwirkung harter Röntgenstrahlen mit Materie

3.1.1 Reflexion und Brechung elektromagnetischer Wellen

Harte Röntgenstrahlen sind im elektromagnetischen Spektrum bei Photonenenergien um 10 keV angesiedelt. Obwohl die zugehörigen Wellenlängen im Ångstrombereich und damit in der Größenordnung interatomarer Abstände im Festkörper liegen, können viele Aspekte ihrer Ausbreitung mit Hilfe der klassischen, makroskopischen Elektrodynamik beschrieben werden. Im folgenden werden zunächst einige Grundlagen der Röntgenoptik auf diese Weise diskutiert.

Es werden ebene elektromagnetische Wellen mit Wellenvektor $\mathbf{k}$ und Frequenz ω betrachtet ¹ :

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{E}_0 \exp(i(\mathbf{k}\mathbf{r} - \omega t)) \quad . \quad (3.1)$$

Im Vakuum gilt $|\mathbf{k}| = k = \omega/c$. ² Da in Materie mit dem Brechungsindex n die Wellenausbreitung mit der Phasengeschwindigkeit $v = c/n$ erfolgt, ist

$$k_{Mat} = \frac{\omega}{v} = k n \quad . \quad (3.2)$$

Die Ausbreitung der ebenen Welle (3.1) in einem Medium geschieht gemäß der Helmholtzgleichung

$$\text{rot rot } \mathbf{E} = k^2 n^2 \mathbf{E} \quad , \quad (3.3)$$

die aus den Maxwell'schen Gleichungen folgt.

Eine ebene Grenzfläche zwischen zwei (isotropen) Medien der Brechungsindizes n_1 und n_2 führt zur Reflexion und Brechung der unter einem Glanzwinkel ϑ_1 einfallenden Welle (die Stetigkeitsbedingungen für elektromagnetische Felder an Grenzflächen können nur erfüllt werden, wenn es eine reflektierte *und* eine transmittierte Welle gibt [Born 1985]). Für die elektrischen Felder wird also der allgemeine Ansatz

¹Vektoren erscheinen im Fettdruck.

² c ist die Vakuumlichtgeschwindigkeit.

$$\begin{aligned}
\mathbf{E}_1 &= \mathbf{A}_1 \exp(i(\mathbf{k}_1 \mathbf{r} - \omega_1 t)) \\
\mathbf{E}'_1 &= \mathbf{A}'_1 \exp(i(\mathbf{k}'_1 \mathbf{r} - \omega'_1 t)) \\
\mathbf{E}_2 &= \mathbf{A}_2 \exp(i(\mathbf{k}_2 \mathbf{r} - \omega_2 t))
\end{aligned}
\tag{3.4}$$

gemacht, wobei sich die Indizes 1 und 2 auf die jeweiligen Medien beziehen und gestrichene Größen die reflektierte Welle kennzeichnen. Die magnetischen Felder ergeben sich aus der Relation

$$\mathbf{H} = \varepsilon_0 c n \hat{\mathbf{k}} \times \mathbf{E} \tag{3.5}$$

(es werden SI-Einheiten verwendet). $\hat{\mathbf{k}}$ ist ein Einheitsvektor in Richtung von $\mathbf{k}$. Die Maxwell'schen Gleichungen implizieren die Stetigkeit der Tangentialkomponenten von $\mathbf{E}$ und $\mathbf{H}$ für alle Zeiten in der gesamten Grenzfläche ($z = 0$). Dies kann nur erfüllt werden, wenn die Exponentialterme in (3.4) übereinstimmen. Daraus folgt

$$\omega_1 = \omega'_1 = \omega_2 =: \omega \tag{3.6}$$

und

$$(\mathbf{k}_1 \mathbf{r})_{z=0} = (\mathbf{k}_2 \mathbf{r})_{z=0} = (\mathbf{k}'_1 \mathbf{r})_{z=0} . \tag{3.7}$$

Da die Projektionen von $\mathbf{k}_1$, $\mathbf{k}'_1$ und $\mathbf{k}_2$ auf jeden beliebigen Ort in der Grenzfläche identisch sein müssen, liegen alle drei Vektoren in *einer* Ebene. Mit den entsprechenden Glanzwinkeln folgt dann aus (3.7) :

$$k_1 \cos \vartheta_1 = k_2 \cos \vartheta_2 = k'_1 \cos \vartheta'_1 . \tag{3.8}$$

Die Gl. (3.6) und (3.2) führen auf $k_1 = k'_1$. Die einfallende Welle wird daher *spiegelnd* reflektiert : $\vartheta_1 = \vartheta'_1$ (s. Abb. 3.1). In den Gl. (3.8) ist ferner das Snelliussche

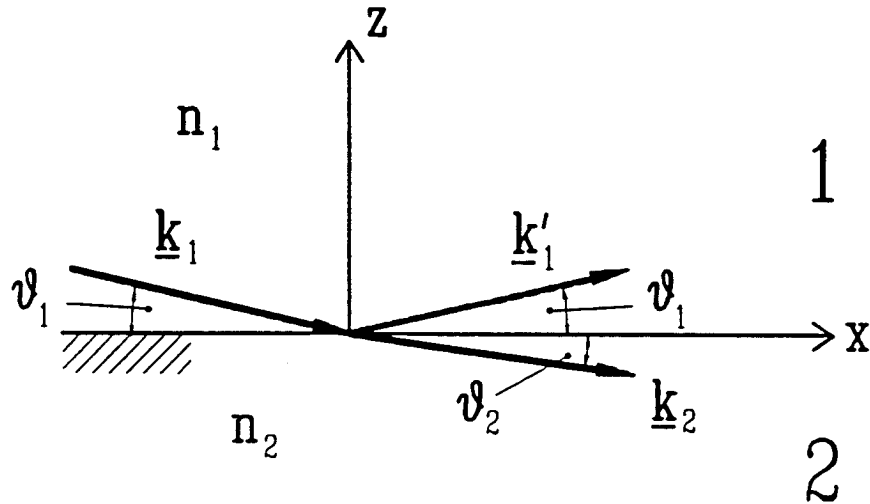


Abbildung 3.1: Reflexion und Brechung einer unter einem Winkel ϑ_1 einfallenden Welle. Die Brechung erfolgt vom Lot weg, wenn der Brechungsindex des Mediums 2 kleiner als derjenige des Mediums 1 ist.

Brechungsgesetz enthalten :

$$\frac{\cos \vartheta_1}{\cos \vartheta_2} = \frac{k_2}{k_1} = \frac{n_2}{n_1} . \quad (3.9)$$

Die Stetigkeit der Tangentialkomponenten von $\mathbf{E}$ und $\mathbf{H}$ in der Grenzfläche kann durch ein Kreuzprodukt mit dem Einheitsvektor in z-Richtung ausgedrückt werden, das die in der Ebene $z = 0$ liegenden Komponenten herausprojiziert :

$$\begin{aligned} (\mathbf{A}_1 + \mathbf{A}'_1) \times \hat{\mathbf{z}} &= \mathbf{A}_2 \times \hat{\mathbf{z}} \\ n_1 [\hat{\mathbf{k}}_1 \times \mathbf{A}_1 + \hat{\mathbf{k}}'_1 \times \mathbf{A}'_1] \times \hat{\mathbf{z}} &= n_2 [\hat{\mathbf{k}}_2 \times \mathbf{A}_2] \times \hat{\mathbf{z}} . \end{aligned} \quad (3.10)$$

Falls der Vektor des elektrischen Feldes senkrecht zur Einfallsebene steht (s-Polarisation), ergibt sich daraus

$$\begin{aligned} A_1 + A'_1 &= A_2 \\ (A_1 - A'_1) n_1 \sin \vartheta_1 &= A_2 n_2 \sin \vartheta_2 . \end{aligned} \quad (3.11)$$

Die Auflösung dieses Gleichungssystems liefert die Fresnelschen Formeln für s-Polarisation

$$\begin{aligned} \frac{A'_1}{A_1} &= \frac{n_1 \sin \vartheta_1 - n_2 \sin \vartheta_2}{n_1 \sin \vartheta_1 + n_2 \sin \vartheta_2} = \frac{\sin(\vartheta_1 - \vartheta_2)}{\sin(\vartheta_1 + \vartheta_2)} \\ \frac{A_2}{A_1} &= \frac{2n_1 \sin \vartheta_1}{n_1 \sin \vartheta_1 + n_2 \sin \vartheta_2} = \frac{2 \sin \vartheta_1 \cos \vartheta_2}{\sin(\vartheta_1 + \vartheta_2)} . \end{aligned} \quad (3.12)$$

Reflektivität R und Transmission T sind dann definiert als

$$\begin{aligned} R &:= \left| \frac{A'_1}{A_1} \right|^2 \\ T &:= \left| \frac{A_2}{A_1} \right|^2 . \end{aligned} \quad (3.13)$$

3.1.2 Absorption und Dispersion

Ausgangspunkt einer phänomenologischen Beschreibung des Brechungsindex im harten Röntgenbereich ist folgender Ausdruck, der in Lehrbüchern eingehend diskutiert wird (s. z.B. [Feynman 1977]) :

$$n^2 = 1 + \frac{Ne^2}{\epsilon_0 m} \sum_j \frac{g_j}{\omega_j^2 - \omega^2 + i\omega\gamma_j} . \quad (3.14)$$

Er verknüpft den Brechungsindex mit harmonischen Oszillatoren der Resonanzfrequenz ω_j . Für ein einkomponentiges Material erfüllen die Oszillatorstärken g_j die Summenregel $\sum_j g_j = Z$, wobei Z die Ordnungszahl des betreffenden Elements ist. N stellt die Dichte (cm^{-3}) der Atome dar, e und m stehen für die Elementarladung bzw. die Ruhemasse der Elektronen. Das Dämpfungsglied γ berücksichtigt die Möglichkeit der Absorption, die somit auf einen komplexen Brechungsindex führt. Da die Energie der Röntgenphotonen weit oberhalb fast aller atomaren Resonanzfrequenzen liegt (Ausnahmen werden weiter unten diskutiert), ist es sinnvoll, vom asymptotischen Ausdruck ($\omega \gg \omega_j$ und vernachlässigbare Absorption)

$$n = 1 - \frac{N}{2\pi} r_0 \lambda^2 Z \quad (3.15)$$

auszugehen. λ stellt die Vakuum-Wellenlänge dar ; $r_0 = e^2/4\pi\epsilon_0 mc^2 = 2.818 \cdot 10^{-15} \text{m}$ ist der klassische Elektronenradius. Das Auftreten dieser Streulänge spiegelt die Streuung der elektromagnetischen Wellen an der Elektronenhülle der Atome wider. Der Brechungsindex (3.15) ist kleiner als 1 ; für Röntgenstrahlen ist Materie also "optisch dünner" als das Vakuum. Dies eröffnet die Möglichkeit der externen Totalreflexion, die unter streifendem Einfall auftritt (s. nächster Abschnitt).

Wird die Teilchendichte N durch die Avogadrozahl N_A , die Massendichte ρ und die Atommasse A ausgedrückt, ist

$$n = 1 - \frac{N_A}{2\pi} r_0 \lambda^2 \frac{Z}{A} \rho \quad (3.16)$$

Der Brechungsindex hängt also im wesentlichen nur von der Wellenlänge der Röntgenstrahlen und der Dichte des Materials ab, da Z/A für alle Elemente bei 0.5 liegt.

Die Verallgemeinerung der asymptotischen Form (3.16) geschieht durch die Ersetzung

$$Z \rightarrow f_0 + f'(E) + i f''(E) \quad (3.17)$$

Dabei ist f_0 der Atomformfaktor des betreffenden Elementes, der nur im Falle der Vorwärtstreuung gleich Z ist. Die energieabhängigen Korrekturen f' und f'' beschreiben Dispersion und Absorption; sie sind über eine Kramers-Kronig-Relation miteinander verbunden. Durch die Ersetzung (3.17) kann der Brechungsindex geschrieben werden als

$$n = 1 - \delta - i \beta \quad (3.18)$$

Liegen mehrere chemische Komponenten im Material vor, gilt

$$\begin{aligned} \delta &= \frac{N_A}{2\pi} r_0 \lambda^2 \sum_k \frac{\rho_k}{A_k} (f_{0,k} + f'_k) \\ \beta &= \frac{N_A}{2\pi} r_0 \lambda^2 \sum_k \frac{\rho_k}{A_k} f''_k \end{aligned} \quad (3.19)$$

ρ_k steht dann für die partielle Massendichte des k -ten Elements. Typische Werte für δ und β im harten Röntgenbereich liegen in der Größenordnung von 10^{-5} bzw. 10^{-6} . Der absorptive Anteil β ist mit dem linearen Absorptionskoeffizienten μ verbunden

$$\mu = \frac{4\pi}{\lambda} \beta \quad (3.20)$$

welcher die Schwächung der Strahlintensität beim Durchgang durch eine Schicht der Dicke d beschreibt :

$$I(d) = I_0 \exp(-\mu d) \quad (3.21)$$

Die Absorption hängt stark vom Material und der Energie der Röntgenstrahlen ab. Im hier interessierenden Bereich der Photonenenergien um 10 keV dominiert die photoelektrische Absorption. Im allgemeinen variiert in diesem Fall der lineare Absorptionskoeffizient mit der Ordnungszahl Z und der Photonenenergie E wie

$$\mu \sim \frac{Z^3}{E^3} \quad (3.22)$$

Der sinkenden Absorption mit steigender Energie sind jedoch die sogenannten Absorptionskanten überlagert. Dort steigt die Absorption sprunghaft wieder an, weil die Energie der Photonen dann gerade ausreicht, um einen neuen Absorptionskanal zu öffnen. Bei den K-Kanten wird ein 1s-Elektron in einen leeren Zustand angehoben, bei den L₁-, L₂- und L₃- Kanten gilt entsprechendes für 2s-, 2p_{1/2}- und 2p_{3/2}-Elektronen. Die entstandenen Lücken werden von Elektronen aus energetisch höher liegenden Zuständen aufgefüllt, so daß diese Prozesse unter Emission charakteristischer Fluoreszenzstrahlung (bzw. Auger-Elektronen) erfolgen.

Bei der Röntgenabsorptionsspektroskopie wird die Absorption in Abhängigkeit von der Energie der einfallenden Röntgenstrahlung gemessen, die kontinuierlich durchgestimmt wird. Charakteristisch für das absorbierende Element ist die energetische Lage der Kante; geringe Verschiebungen (Größenordnung 1eV) sowie die Form der Kante geben Aufschluß über den chemischen Zustand des Absorberatoms (z.B. seine Valenz). Oszillationen in der Absorption oberhalb der Kanten werden EXAFS (Extended X-ray Absorption Fine Structure) genannt (s. Abb. 3.2). Diese Feinstruktur enthält Information über die lokale geometrische Struktur um das Absorberatom herum (Bindungsabstände, Koordinationszahlen). Ihre Ursache sind quantenmechanische Interferenzen im Endzustand des ausgelösten Photoelektrons (für eine detailliertere Diskussion s. [Lengeler 1990]).

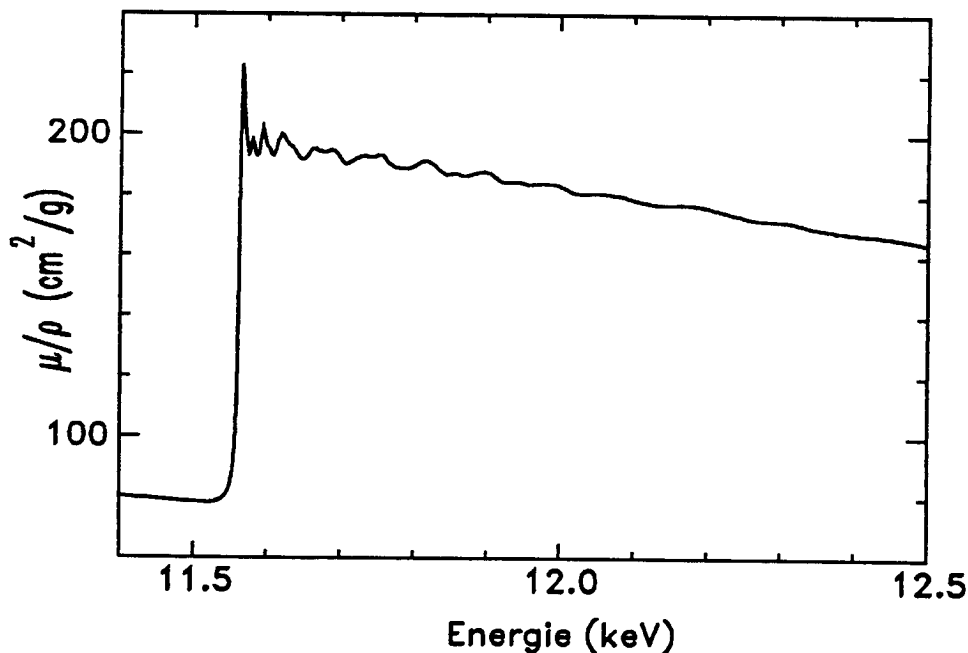


Abbildung 3.2: Quotient des linearen Absorptionskoeffizienten μ und der Massendichte ρ von metallischem Platin in Abhängigkeit von der Photonenenergie. Oberhalb der L₃-Absorptionskante treten EXAFS-Oszillationen auf (nach [Stanglmeier 1990]).

3.1.3 Streifender Einfall

Da der Brechungsindex von Materie für harte Röntgenstrahlen kleiner als eins ist, wird eine aus dem Vakuum einfallende Welle vom Lot weg gebrochen. Bei einem bestimmten, endlichen Einfallswinkel schließt die transmittierte Welle mit der Grenzfläche Vakuum/Materie einen Winkel von 0° ein; dieser kritische Winkel ϑ_{1c} liegt bei Photonenenergien um 10 keV typischerweise unterhalb von 0.5° . Unter den Bedingungen streifenden Einfalls können die trigonometrischen Funktionen in den Ausdrücken (3.9) und (3.12) entwickelt werden, und die Fresnelschen Formeln für s- und p-Polarisation werden identisch [Born 1985]. Für $n_1 = 1$ und $n_2 = 1 - \delta$ ergibt sich dann aus dem Snelliusschen Brechungsgesetz (3.9) (zunächst ohne Absorption)

$$\vartheta_1^2 = \vartheta_2^2 + 2\delta \quad . \quad (3.23)$$

Mit $\vartheta_2 = 0$ folgt für den kritischen Winkel

$$\vartheta_{1c} := \sqrt{2\delta} = \sqrt{\frac{N_A r_0}{\pi} \frac{(Z + f') \rho}{A}} \lambda \quad , \quad (3.24)$$

der somit im wesentlichen von der Dichte des Materials und der Wellenlänge abhängt; in der Nähe der Absorptionskanten kann jedoch der Beitrag der Dispersionskorrektur f' groß werden ³.

Einfallswinkel unterhalb des kritischen Winkels bewirken ein rein imaginäres ϑ_2 :

$$\vartheta_2 = \begin{cases} i \sqrt{2\delta - \vartheta_1^2} & \vartheta_1 < \vartheta_{1c} \\ \sqrt{\vartheta_1^2 - 2\delta} & \vartheta_1 \geq \vartheta_{1c} \end{cases} \quad . \quad (3.25)$$

Die analytische Fortsetzung von Gl. (3.4) lautet dann ($k_2 \cong k(1, 0, \vartheta_2)$)

$$\begin{aligned} \mathbf{E}_2 &= \mathbf{A}_2 \exp(i(kx - \omega t)) \exp(-\frac{z}{z_0}) \quad , \\ z_0 &= \frac{1}{\sqrt{2\delta - \vartheta_1^2} k} \quad . \end{aligned} \quad (3.26)$$

Sie zeigt, daß für $\vartheta_1 \rightarrow 0$ das elektromagnetische Feld eine endliche, von der Wellenlänge der Photonen unabhängige Eindringtiefe besitzt

$$\tilde{z}_0 := \frac{1}{\sqrt{2\delta} k} = \sqrt{\frac{A}{4\pi N_A r_0 (Z + f') \rho}} \quad , \quad (3.27)$$

die typischerweise einige zehn Å beträgt. Die Eindringtiefe variiert lediglich geringfügig in der Nähe der Absorptionskanten, da $f'(E)$ dort ein Minimum durchläuft.

Unterhalb des kritischen Winkels ist die Eindringtiefe *dispersionsbegrenzt*, während sie oberhalb des kritischen Winkels *absorptionsbegrenzt* ist. Die rechnerische Behandlung der Absorption erfolgt, indem (aufgrund des komplexen Brechungsindex im Snelliusschen Brechungsgesetz) ϑ_2 für alle ϑ_1 mit Imaginärteil q_2 definiert wird

$$\vartheta_2 := p_2 + i q_2 \quad (p_2, q_2 \text{ reell}). \quad (3.28)$$

³Sind Dichte und Wellenlänge bekannt, eröffnet sich die Möglichkeit der experimentellen Bestimmung von f' , vgl. [Stanglmeier 1990].

Das Analogon zu Gl. (3.23) führt nach dem Vergleich von Real- und Imaginärteil auf eine biquadratische Gleichung mit der Lösung

$$\begin{aligned} p_2^2 &= \frac{1}{2} \left[\sqrt{(\vartheta_1^2 - 2\delta)^2 + 4\beta^2} + \vartheta_1^2 - 2\delta \right] \\ q_2^2 &= \frac{1}{2} \left[\sqrt{(\vartheta_1^2 - 2\delta)^2 + 4\beta^2} - \vartheta_1^2 + 2\delta \right] \quad . \end{aligned} \quad (3.29)$$

Skaliert man p_2 und q_2 auf den kritischen Winkel, so geht in obige Ausdrücke nur noch das Verhältnis von β zu δ ein. In Abb. 3.3 wird deutlich, daß die Berücksichtigung der Absorption den kritischen Winkel ausschmiert.

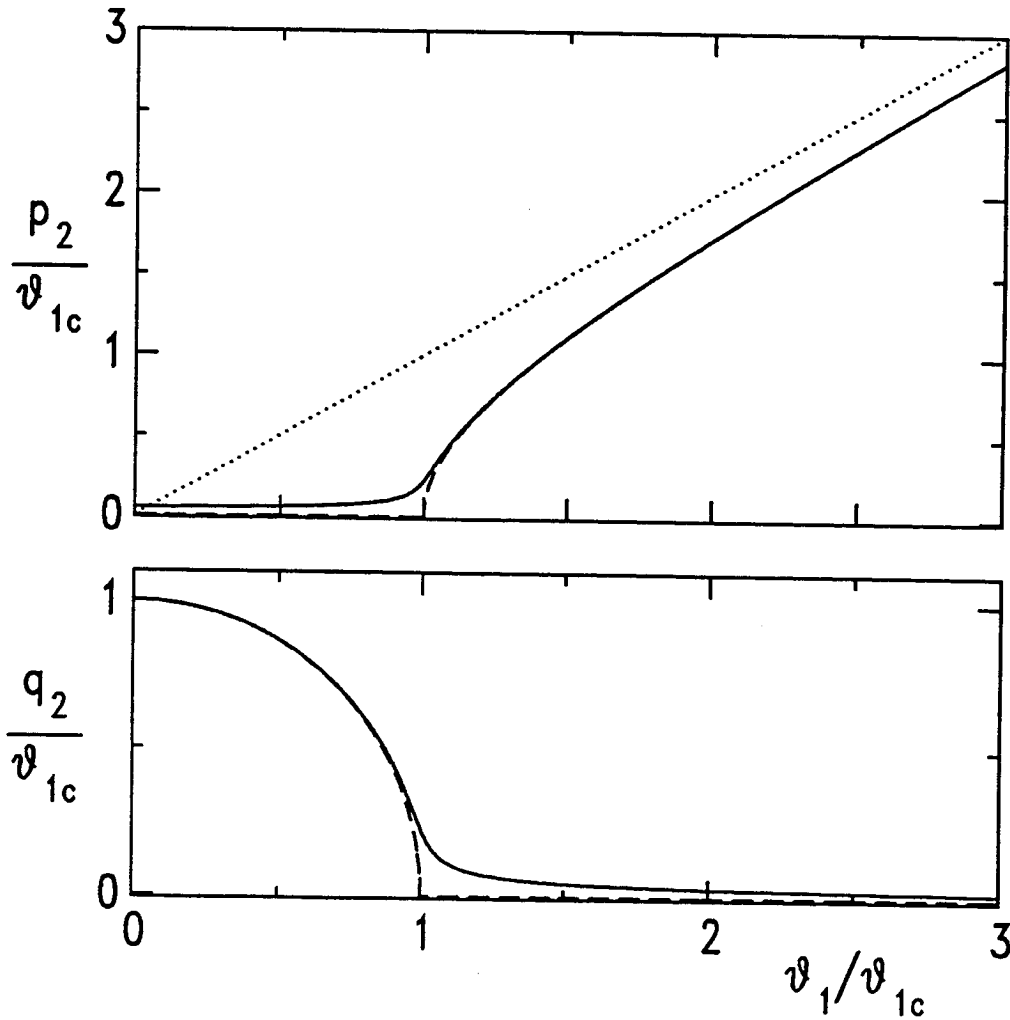


Abbildung 3.3: Realteil und Imaginärteil des komplexen Winkels $\vartheta_2 = p_2 + i q_2$ für $\beta/\delta = 0$ (---) bzw. $\beta/\delta = 0.1$ (—). Im Fall verschwindender Absorption ist p_2 unterhalb und q_2 oberhalb des kritischen Winkels Null; eine endliche Absorption bewirkt die Ausschmierung des Übergangs. In das obere Bild ist die Gerade $p_2 = \vartheta_1$ miteingezeichnet.

Die Verallgemeinerung von Gl. (3.26) lautet

$$z_0 \cong \frac{1}{q_2 k} \quad (3.30)$$

und zeigt für $\vartheta_1 \gg \vartheta_{1c}$ die Absorptionsbegrenzung der Eindringtiefe :

$$z_0 = \frac{\vartheta_1}{\beta k} \sim \frac{\vartheta_1}{\mu} \quad (3.31)$$

Dabei wurde Gl. (3.20) benutzt. Weit oberhalb des kritischen Winkels steigt die Eindringtiefe also bei fester Energie linear mit dem Einfallswinkel an. Abb. 3.4 demonstriert die verschiedenen Abhängigkeiten der Eindringtiefe z_0 am Beispiel von GaAs für Photonenenergien von 8 bis 13 keV.

Im Bereich der Totalreflexion werden alle Röntgentechniken (z.B. Absorptionsspektroskopie und Beugung) oberflächenempfindlich; die Tiefe, aus der noch Beiträge zum Signal kommen, läßt sich dabei durch Variation von ϑ_1 einstellen.

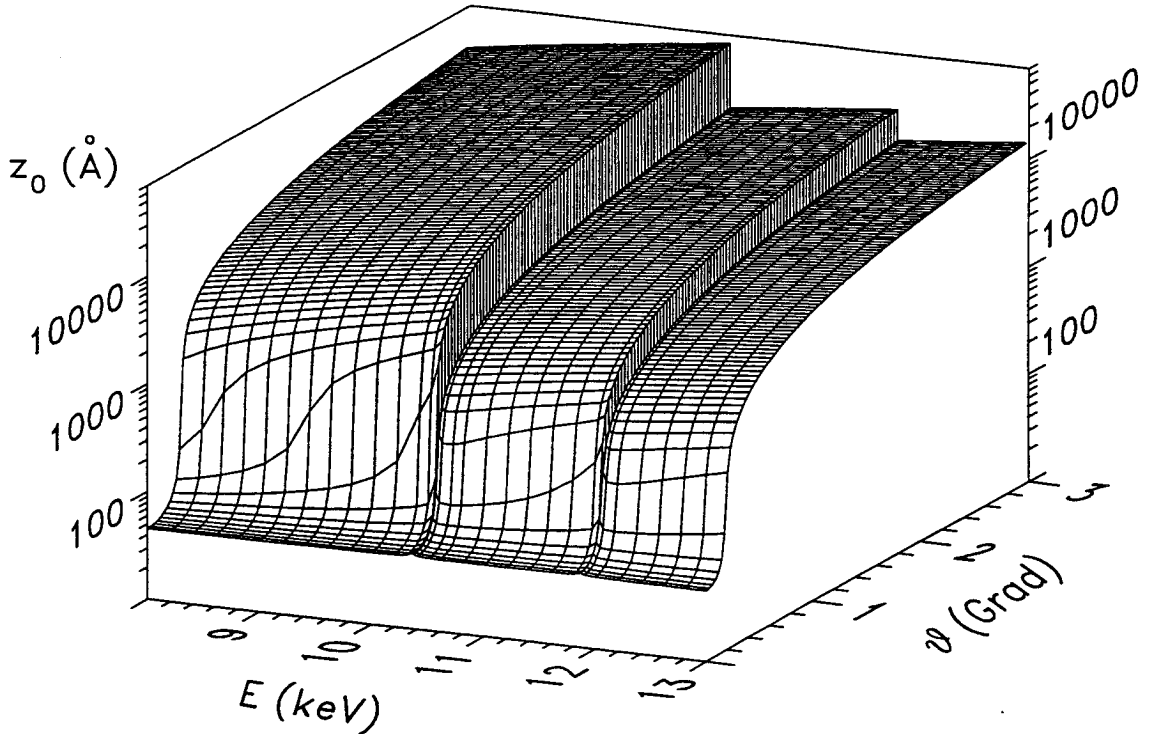


Abbildung 3.4: Eindringtiefe z_0 für Röntgenstrahlen in GaAs unter dem streifenden Einfallswinkel ϑ in Abhängigkeit von der Photonenenergie. Unterhalb des kritischen Winkels liegt die Eindringtiefe dispersionsbegrenzt bei 46 Å, lediglich an den K-Absorptionskanten (Ga : 10368 eV, As : 11865 eV) tritt wegen des Minimums in f' eine geringfügige Vergrößerung der Eindringtiefe auf. Oberhalb des kritischen Winkels ist die Eindringtiefe absorptionsbegrenzt, wie beim Überschreiten der beiden Kanten deutlich wird.

Unter streifendem Einfall ergeben sich aus den Gl. (3.12) für Reflexion und Transmission

$$\begin{aligned} R &= \frac{(\vartheta_1 - p_2)^2 + q_2^2}{(\vartheta_1 + p_2)^2 + q_2^2} \\ T &= \frac{4\vartheta_1^2}{(\vartheta_1 + p_2)^2 + q_2^2} \end{aligned} \quad (3.32)$$

Reflexion und Transmission sind in Abb. 3.5 für verschiedene Werte von β/δ dargestellt. Das Reflexionsvermögen ist experimentell direkt zugänglich. Da der kritische Winkel im Fall starker Absorption nicht mehr direkt aus der Reflexionskurve abgelesen werden kann, werden solche Messungen statt nach Gl. (3.24) durch Simulation ausgewertet (s. Abschnitt 3.2)). Die Transmission nimmt am kritischen Winkel den Maximalwert 4 an, wenn keine Absorption vorliegt.

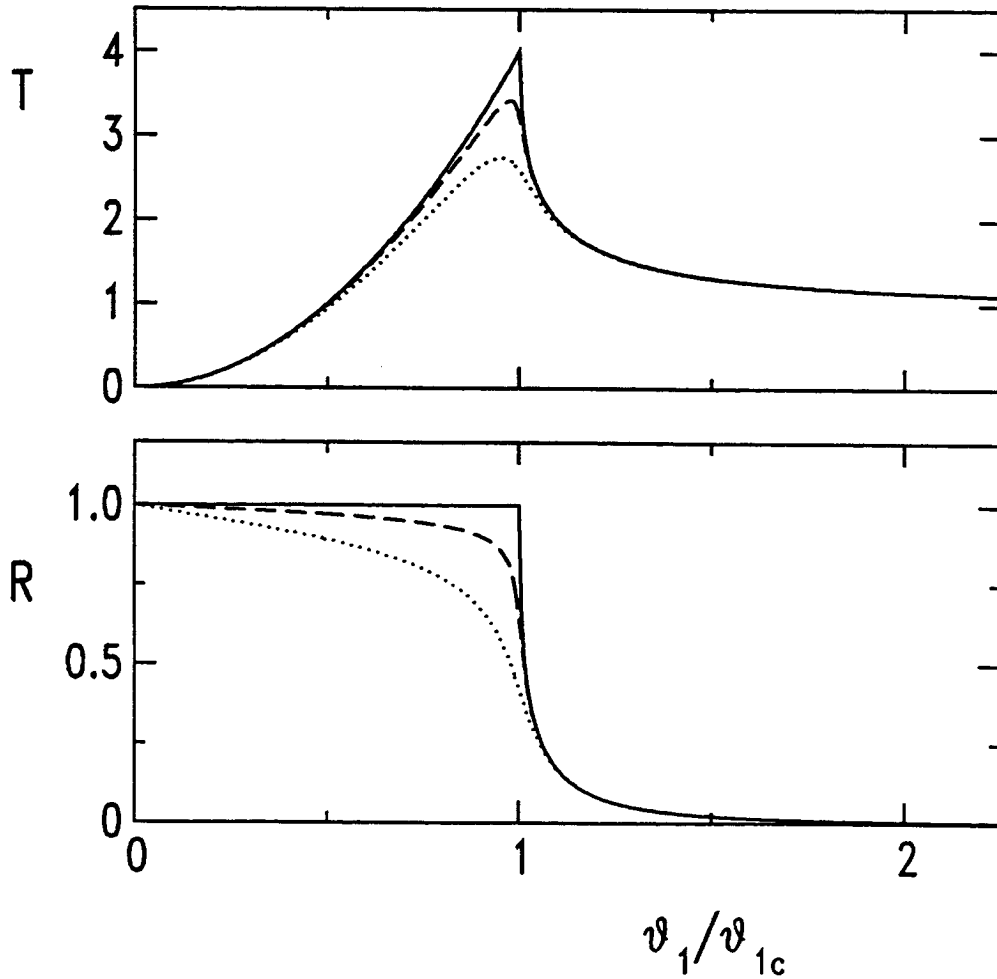


Abbildung 3.5: Reflexion und Transmission für $\beta/\delta = 0$ (—), 0.025 (- - -) und 0.1 (.....). Die beiden letzten Werte entsprechen den Verhältnissen bei 8760 eV bzw. 12670 eV für GaAs.

In dissipativen Medien ist das Maximum geringer als 4 und zu kleineren Winkeln hin verschoben. Für vernachlässigbare Absorption gilt ($\vartheta_1 \leq \vartheta_{1c}$) :

$$\begin{aligned} R &= 1 \\ T &= 4 \left(\frac{\vartheta_1}{\vartheta_{1c}} \right)^2 \end{aligned} \quad (3.33)$$

Im Bereich $\vartheta_1 \gg \vartheta_{1c}$ wird dann fast die gesamte einfallende Intensität transmittiert :

$$\begin{aligned} R &= \frac{\delta^2}{4\vartheta_1^4} \\ T &= 1 \end{aligned} \quad (3.34)$$

Herausragende Eigenschaft der Transmission ist ihre starke Erhöhung am kritischen Winkel. Dort überlagern sich die einfallende und die reflektierte Welle zu einem stehenden Wellenfeld mit einem Wellenbauch an der Grenzfläche. Wegen der Stetigkeit der Tangentialkomponenten ist die Amplitude des elektrischen Feldes im Medium doppelt so groß wie die Amplitude des einfallenden Feldes, die Intensität also viermal so hoch (bei vernachlässigbarer Dämpfung).

Röntgenmessungen in Reflexionsgeometrie unterliegen Einschränkungen hinsichtlich der Zugänglichkeit des reziproken Raumes. Während die elastische Rückstreuung eine Obergrenze für den Impulsübertrag darstellt, setzt die Abschattung des einfallenden bzw. reflektierten Strahls durch die Probe Untergrenzen. Abb. 3.6 illustriert dies für kristallines GaAs und 8048 eV-Photonen.

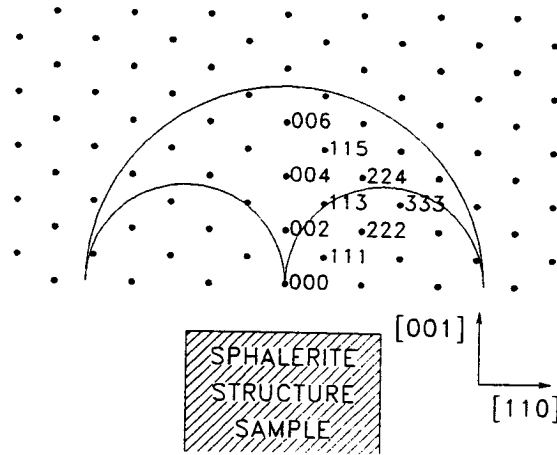


Abbildung 3.6: Der zugängliche Bereich des reziproken Raumes von kristallinem GaAs wird für 8048 eV-Photonen bei Reflexionsmessungen begrenzt durch die eingezeichneten Halbkreise. Der obere Halbkreis (Radius $2k$) entspricht elastischer Rückstreuung, die unteren Halbkreise (Radius k) entsprechen der Abschattung des einfallenden bzw. reflektierten Strahls durch eine ebene Probe. Unter steigendem Ein- und Ausfall ist nur der kleine, keilförmige Bereich oberhalb des Ursprungs experimentell zugänglich.

Befindet sich die Röntgenquelle rechts im Bild, so liegen alle unter streifendem Einfall beobachtbaren Impulsüberträge etwas oberhalb des rechten Halbkreises; für streifenden Ausfall gilt Entsprechendes bezüglich des linken Halbkreises. Unter streifendem Ein- und Ausfall ist daher geometriebedingt nur ein kleiner, spitz zulaufender Teil des reziproken Raumes experimentell beobachtbar. Die Symmetrie der Figur ist eine Folge der Umkehrbarkeit des Lichtwegs.

Bei der spiegelnden Reflexion ist der Impulsübertrag (Streuvektor $\mathbf{Q}$) stets senkrecht zur Oberfläche :

$$|\mathbf{Q}| = Q_z = 2k \sin \vartheta_1 \quad . \quad (3.35)$$

Aufgrund der externen Totalreflexion dringt der Röntgenstrahl jedoch erst ab dem kritischen Impulsübertrag

$$Q_{zc} = \frac{2}{z_0} \quad (3.36)$$

tiefer in die Probe ein.

Ist - anders als in der Herleitung der Fresnelschen Formeln - die Oberfläche nicht ideal glatt, erfolgt diffuse Streuung unter Winkeln $\vartheta'_1 \neq \vartheta_1$, so daß im reziproken Raum auch Struktur für Q_x bzw. $Q_y \neq 0$ vorhanden ist. Messungen, bei denen die Impulsüberträge eine endliche Komponente parallel zur Oberfläche aufweisen, enthalten dann Information über laterale Rauigkeitseigenschaften (s. Abschnitt 3.4).

In den Fresnelschen Formeln spielt die diskrete Struktur der Materie keine Rolle, da ein Material summarisch durch seinen Brechungsindex beschrieben wird. Dieser makroskopische Ansatz ist der physikalischen Situation beim streifenden Ein- und Ausfall von Röntgenstrahlen angemessen, da den kleinen Impulsüberträgen Q große Längenskalen $2\pi/Q$ entsprechen. Die Fresnelschen Formeln stellen daher einen Ausgangspunkt für die Diskussion der spiegelnden Reflektivität und diffusen Streuung unter streifendem Einfall dar.

3.2 Spieglende Reflektivität unter streifendem Einfall

3.2.1 Glatte Grenzflächen

Im folgenden wird die spiegelnd reflektierte Intensität streifend einfallender Röntgenstrahlen an einem Schichtsystem betrachtet, das aus N Schichten auf einem Substrat besteht. Abb. 3.7 zeigt ein solches Schichtpaket und die verwendete Nomenklatur. Jeder Schicht wird eine Dicke d_j und ein Brechungsindex $n_j = 1 - \delta_j - i\beta_j$ zugeordnet. Die elektromagnetische Welle fällt aus dem Vakuum ($j = 1$) ein.

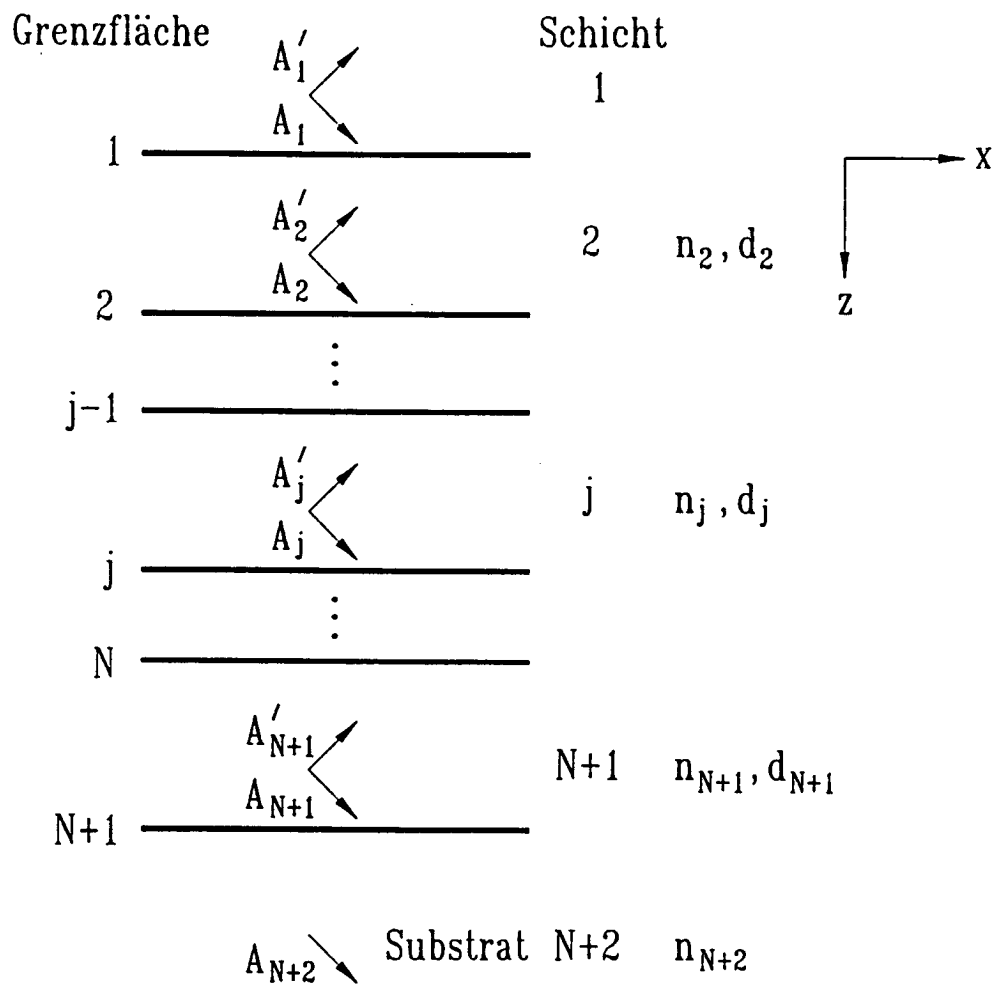


Abbildung 3.7: Reflexion einer elektromagnetischen Welle an einem Schichtsystem aus N Schichten auf einem Substrat. In jeder Schicht werden die Felder zerlegt in eine einlaufende und eine rücklaufende Welle (Amplituden A bzw. A'). Aus dem Substrat wird keine Welle zurückreflektiert.

Aufgrund des Brechungsgesetzes $\cos \vartheta_1 = n_j \cos \vartheta_j$ sind die komplexen Winkel $\vartheta_j = p_j + iq_j$ in jeder Schicht gegeben durch

$$\begin{aligned} p_j^2 &= \frac{1}{2} \left[\sqrt{(\vartheta_1^2 - 2\delta_j)^2 + 4\beta_j^2} + \vartheta_1^2 - 2\delta_j \right] \\ q_j^2 &= \frac{1}{2} \left[\sqrt{(\vartheta_1^2 - 2\delta_j)^2 + 4\beta_j^2} - \vartheta_1^2 + 2\delta_j \right] . \end{aligned} \quad (3.37)$$

Die E- und H-Felder in jeder Schicht werden dargestellt durch die Überlagerung der einfallenden und reflektierten Welle mit den jeweiligen Wellenvektoren

$$\mathbf{k}_j = k_j \begin{pmatrix} \cos \vartheta_j \\ 0 \\ \sin \vartheta_j \end{pmatrix} , \quad \mathbf{k}'_j = k_j \begin{pmatrix} \cos \vartheta_j \\ 0 \\ -\sin \vartheta_j \end{pmatrix} , \quad (3.38)$$

die folgendermaßen genähert werden : Aufgrund der geringen Dispersion werden alle Beträge gleich dem Betrag des Vakuum-Wellenvektors gesetzt ($k_j \cong k_1 =: k$), und wegen des streifenden Einfalls werden die trigonometrischen Funktionen bis zur ersten Ordnung in ϑ_j entwickelt. Somit lautet der Ansatz ⁴ für die elektrischen Felder in der Schicht j (die magnetischen Felder folgen aus Gl. (3.5)) :

$$\begin{aligned} \mathbf{E}_j(\mathbf{r}, t) &= \begin{pmatrix} 0 \\ A_j \\ 0 \end{pmatrix} \exp(i(kx + k\vartheta_j z_j - \omega t)) \\ \mathbf{E}'_j(\mathbf{r}, t) &= \begin{pmatrix} 0 \\ A'_j \\ 0 \end{pmatrix} \exp(i(kx - k\vartheta_j z_j - \omega t)) . \end{aligned} \quad (3.39)$$

Die z-Koordinate (senkrecht zu den Grenzflächen) wird in jeder Schicht lokal definiert; $z_j = 0$ soll in der Schichtmitte liegen, auf die dann ebenfalls die Amplituden A_j und A'_j bezogen sind. Da die Tangentialkomponenten von $\mathbf{E}$ und $\mathbf{H}$ an den *Grenzflächen* stetig sein müssen, werden daher in der Auswertung der Stetigkeitsbeziehungen Phasenfaktoren $\exp(ik\vartheta_j d_j/2)$ auftauchen. Der Zusammenhang zwischen den Amplituden benachbarter Schichten kann mittels Transfermatrizen ausgedrückt werden :

$$\begin{pmatrix} A_j \\ A'_j \end{pmatrix} = \mathbf{R}^{(j,j+1)} \begin{pmatrix} A_{j+1} \\ A'_{j+1} \end{pmatrix} . \quad (3.40)$$

Die zugehörigen Matrixelemente sind [Lengeler 1987, Stanglmeier et al. 1992]

$$\begin{aligned} R_{11}^{(j,j+1)} &= \frac{\vartheta_j + \vartheta_{j+1}}{2\vartheta_j} \exp\left(-\frac{i}{2}k(\vartheta_j d_j + \vartheta_{j+1} d_{j+1})\right) \\ R_{12}^{(j,j+1)} &= \frac{\vartheta_j - \vartheta_{j+1}}{2\vartheta_j} \exp\left(-\frac{i}{2}k(\vartheta_j d_j - \vartheta_{j+1} d_{j+1})\right) \\ R_{21}^{(j,j+1)} &= \frac{\vartheta_j - \vartheta_{j+1}}{2\vartheta_j} \exp\left(\frac{i}{2}k(\vartheta_j d_j - \vartheta_{j+1} d_{j+1})\right) \\ R_{22}^{(j,j+1)} &= \frac{\vartheta_j + \vartheta_{j+1}}{2\vartheta_j} \exp\left(\frac{i}{2}k(\vartheta_j d_j + \vartheta_{j+1} d_{j+1})\right) . \end{aligned} \quad (3.41)$$

⁴Wegen des streifenden Einfalls ist die Reflektivität unabhängig von der Wahl der Polarisation.

Für das Schichtpaket aus Abb. 3.7 gilt dann :

$$\begin{pmatrix} A_1 \\ A'_1 \end{pmatrix} = \mathbf{R}^{(1,2)} \mathbf{R}^{(2,3)} \dots \mathbf{R}^{(N+1,N+2)} \begin{pmatrix} A_{N+2} \\ 0 \end{pmatrix} \\ =: \mathbf{T} \begin{pmatrix} A_{N+2} \\ 0 \end{pmatrix} . \quad (3.42)$$

Dabei wurde die Gesamt-Transfermatrix $\mathbf{T}$ eingeführt und berücksichtigt, daß aus dem Substrat keine reflektierte Welle zurückkommt ($A'_{N+2} = 0$). Die Idee dieses Rekursionsformalismus ist bereits bei Parratt [1954] zu finden. Mit $A_1 = T_{11}A_{N+2}$ und $A'_1 = T_{21}A_{N+2}$ ergibt sich dann für die Reflektivität

$$R = \left| \frac{A'_1}{A_1} \right|^2 = \left| \frac{T_{21}}{T_{11}} \right|^2 . \quad (3.43)$$

Da in obiger Gleichung nur das *Verhältnis* der Transfermatrixelemente auftritt, dürfen die einzelnen Matrizen $\mathbf{R}^{(j,j+1)}$ beliebig normiert werden. Von Vorteil ist folgende Normierung :

$$\hat{\mathbf{R}}^{(j,j+1)} = \begin{bmatrix} 1 & r_j \exp(ik\vartheta_{j+1}d_{j+1}) \\ r_j \exp(ik\vartheta_j d_j) & \exp(ik(\vartheta_j d_j + \vartheta_{j+1}d_{j+1})) \end{bmatrix} \quad (3.44)$$

mit

$$r_j := \frac{\vartheta_j - \vartheta_{j+1}}{\vartheta_j + \vartheta_{j+1}} \quad (j = 1, \dots, N+1) . \quad (3.45)$$

Diese Normierung ermöglicht stabile numerische Berechnungen auf einem Computer, da in ungünstigen Fällen bei der fortgesetzten Multiplikation (3.42) solch kleine Matrixelemente resultieren können, daß der zulässige Zahlenbereich unterschritten wird ("Underflow"). Außerdem erhält man mit dieser Darstellung relativ einfach einen Ausdruck für die Reflektivität eines Mehrschichtsystems, der der physikalischen Intuition entgegenkommt, wie im folgenden gezeigt wird. Dazu wird die Transfermatrix $\mathbf{T}$ folgendermaßen geschrieben :

$$\mathbf{T} = \hat{\mathbf{R}}^{(1,2)} \mathbf{M} \hat{\mathbf{R}}^{(N+1,N+2)} \quad (3.46)$$

mit der renormierten Produktmatrix

$$\mathbf{M} = \begin{bmatrix} 1 & m_{12} \\ m_{21} & m_{22} \end{bmatrix} . \quad (3.47)$$

Die Reflektivität des Schichtsystems ergibt sich dann zu

$$R = \left| \frac{r_1 + u \exp(ik\vartheta_2 d_2)}{1 + r_1 u \exp(ik\vartheta_2 d_2)} \right|^2 \quad (3.48)$$

mit

$$u := \frac{m_{21} + m_{22}v}{1 + m_{12}v} , \quad v := r_{N+1} \exp(ik\vartheta_{N+1}d_{N+1}) . \quad (3.49)$$

Dieser Ausdruck enthält nicht mehr die irrelevanten Schichtdicken d_1 und d_{N+2} (Vakuum und Substrat), welche in den Transfermatrizen $\mathbf{R}^{(1,2)}$ und $\mathbf{R}^{(N+1,N+2)}$ formal vorkommen. Die ähnliche Struktur der Terme in (3.48) und (3.49) hängt damit zusammen, daß eine sequentielle Ausführung gebrochen rationaler Funktionen der Multiplikation ihrer Koeffizientenmatrizen entspricht. Eine anschauliche Interpretation dieses iterativen Aufbaus ergibt sich, wenn man die Reflexion an einem Mehrschichtsystem als rekursive Anwendung der Reflexion an einer Schicht auf Substrat auffaßt: Die unterste Schicht und das Substrat werden durch ein "effektives Substrat" gleicher Reflexionseigenschaften ersetzt, das wiederum mit der darüber liegenden Schicht kombiniert wird etc.

Für eine Schicht auf Substrat ($N = 1$) ist nach Gl.(3.46) $\mathbf{M}$ die Einheitsmatrix, und mit

$$u = v = r_2 \exp(ik\vartheta_2 d_2) \quad (3.50)$$

folgt für die Reflektivität:

$$R = \left| \frac{r_1 + r_2 \exp(i2k\vartheta_2 d_2)}{1 + r_1 r_2 \exp(i2k\vartheta_2 d_2)} \right|^2. \quad (3.51)$$

Die Fresnel-Reflektivität (3.32) ergibt sich als Sonderfall dieser Beziehung, wenn die Schicht denselben Brechungsindex aufweist wie das Substrat, so daß $r_2 = 0$ ist. Ein endlicher Sprung im Brechungsindex führt daher zu entsprechend gewichteten Phasenfaktoren $\exp(i2k\vartheta_2 d_2)$, die in der Reflektivität Schichtdickenoszillationen entsprechender Amplitude bewirken⁵. Da (im Rahmen der anfangs aufgeführten Voraussetzungen) Gl. (3.51) die strenge Lösung der Maxwellschen Gleichungen enthält, umfaßt die so berechnete Reflektivität nicht nur die Absorption, sondern auch dynamische Effekte. Der Nenner berücksichtigt beispielsweise sämtliche Mehrfachreflexionen; er entspricht der Aufsummation einer geometrischen Reihe, die physikalisch interpretiert werden kann als phasenrichtige Überlagerung der Amplituden aller mehrfach in der Schicht reflektierten Strahlen.

Im Falle $N = 2$ ist $\mathbf{M} = \hat{\mathbf{R}}^{(2,3)}$ mit

$$u = \frac{r_2 + r_3 \exp(i2k\vartheta_3 d_3)}{1 + r_2 r_3 \exp(i2k\vartheta_3 d_3)} \exp(ik\vartheta_2 d_2) =: \tilde{r}_2 \exp(ik\vartheta_2 d_2). \quad (3.52)$$

Vergleicht man diesen Ausdruck mit Gl. (3.50), so zeigt sich in Übereinstimmung mit obigen Ausführungen, daß die Reflexion an einem Doppelschichtsystem auch formal beschrieben werden kann durch eine Schicht auf einem "effektiven Substrat", das wiederum Schichtstruktur aufweist (vgl. $\tilde{r}_2$ mit (3.51)).

Im allgemeinen sind also in den Reflektivitätskurven von Mehrschichtsystemen aufgrund der Phasenfaktoren $\exp(ik\vartheta_j d_j)$ überlagerte Schichtdickenoszillationen zu erwarten. Abb. 3.8 zeigt dies für eine Doppelschicht auf Substrat in logarithmischer Darstellung, da die Oszillationen erst bei niedrigen Reflektivitäten auftreten.

⁵Diese Oszillationen wurden bereits von Kiessig [1931] beobachtet und mit Hilfe der Fresnelschen Formeln diskutiert.

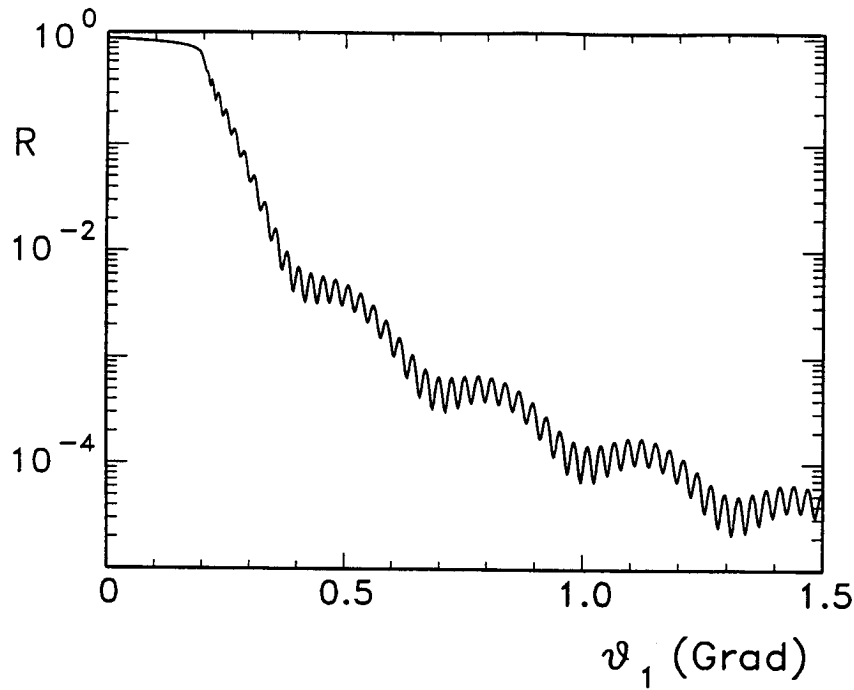


Abbildung 3.8: Berechnete Reflektivität eines Schichtsystems 100 Å GaAs / 1000 Å $\text{Al}_{0.7}\text{Ga}_{0.3}\text{As}$ / GaAs-Substrat bei einer Photonenenergie von 11100 eV. Die Interferenzen treten auf, sobald die Eindringtiefe der Röntgenstrahlen ausreicht, die Deckschicht zu durchdringen. Die langperiodige Oszillation (Einhüllende) wird von der dünnen Deckschicht hervorgerufen, der kurzperiodigen Oszillation kann die Gesamtdicke beider Schichten zugeordnet werden.

3.2.2 Rauhe Grenzflächen

Die Anpassung von Meßkurven durch die reine Fresnel-Reflektivität (3.48) ist i.d.R. nicht möglich, da die gemessene Intensität kleiner als die theoretisch berechnete ist. Diese Diskrepanz nimmt mit wachsendem Einfallswinkel zu; ihre Ursache ist die stets vorhandene *Rauigkeit* der Oberfläche und ggf. innerer Grenzflächen. Die im folgenden diskutierten Modelle enthalten nur *einen* Parameter σ , der die Standardabweichung von einer mittleren Lage der Grenzfläche beschreibt (sogenannte vertikale Rauigkeit). Solche Modelle sind den Verhältnissen bei der spiegelnden Reflexion angepaßt, da durch den Impulsübertrag senkrecht zur Oberfläche nur die (lateral gemittelte) vertikale Elektronendichteverteilung abgetastet wird. Die Projektion der rauhen Grenzfläche auf ein eindimensionales Dichteprofil ist in Abb. 3.9 dargestellt. Dabei geht die Information über die laterale Struktur der Rauigkeit verloren. Die rauhe Grenzfläche wird ersetzt durch eine Schar paralleler Ebenen, deren Verteilung sich aus der differenzierten Profilform ergibt. Scharmodelle erlauben keine Beschreibung der diffusen Streuung, die im wesentlichen von der lateralen Höhen-Höhen-Korrelationsfunktion abhängt [Sinha et al. 1988].

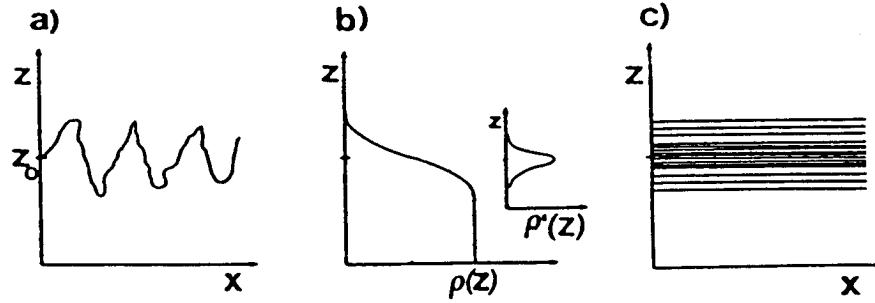


Abbildung 3.9: (a) Eine raue Grenzfläche mit mittlerer Lage z_0 , (b) das zugehörige Dichteprofil in z -Richtung, und c) Beschreibung der Rauigkeit durch eine Schar paralleler Ebenen, deren Verteilung durch die Ableitung der Profilform gegeben ist.

Jede Profilform kann im Rahmen des Transfermatrizen-Formalismus durch viele homogene Übergangsschichten entsprechender Dichte angenähert werden. Dabei steigt der Rechenaufwand stark an. Von besonderer Bedeutung sind daher Profilformen, deren Einfluß auf die Reflektivität durch einen analytischen Ausdruck angebar ist, mit dem die Fresnelschen Gleichungen erweitert werden können. Wichtige Profilformen, für die das möglich ist, sind die Fehlerfunktion ⁶ $\text{erf}(x)$ und der hyperbolische Tangens $\tanh(x)$ [Lekner 1987]. Im weiteren Verlauf dieser Arbeit wird stets ein durch die Fehlerfunktion gegebenes Profil angenommen, das einer gaußverteilten Ebenenschar entspricht ⁷. Zur Verteilung

$$w(u) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma} \exp\left(-\frac{u^2}{2\sigma^2}\right) , \quad (3.53)$$

($u = z - z_0$ beschreibt die Abweichung von der mittleren Grenzflächenlage) gehört das Profil

$$\rho(u) = \frac{1}{2} \left(\text{erf}\left(\frac{u}{\sqrt{2}\sigma}\right) + 1 \right) \quad (3.54)$$

mit der Normierung $\rho(-\infty) = 0$, $\rho(\infty) = 1$. Diesem Profil können verschiedene Übergangsbreiten zugeordnet werden; beim Vergleich verschiedener experimenteller Werte ist zu beachten, daß jede Methode eine charakteristische Länge entsprechend ihrer Empfindlichkeit liefert (s. Abb. (3.10)). Für quantitative Vergleiche ist Tabelle (3.1) sinnvoll, die Übergangsbreiten als Vielfache der Standardabweichung σ angibt.

⁶Die Definition der Fehlerfunktion lautet $\text{erf}(x) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_0^x dt \exp(-t^2)$.

⁷Das $\tanh$ -Profil unterscheidet sich nur wenig vom erf -Profil, so daß experimentelle Daten von beiden gut beschrieben werden können. Von der theoretischen Seite her gesehen, spricht möglicherweise der zentrale Grenzwertsatz für das häufige Auftreten von erf -Profilen. Beispielsweise wird bei Beschichtungen, die auf raue Oberflächen führen, die Position der Atome relativ zur mittleren Oberfläche von der kombinierten Wirkung vieler Variablen bestimmt, die mit den Details des Depositionsprozesses zusammenhängen. Letztere haben einen starken Einfluß auf die laterale Struktur der Oberfläche, während die Statistik der vertikalen Fluktuationen sich bei sehr vielen unabhängigen Variablen einer gaußförmigen Varianz nähern sollte.

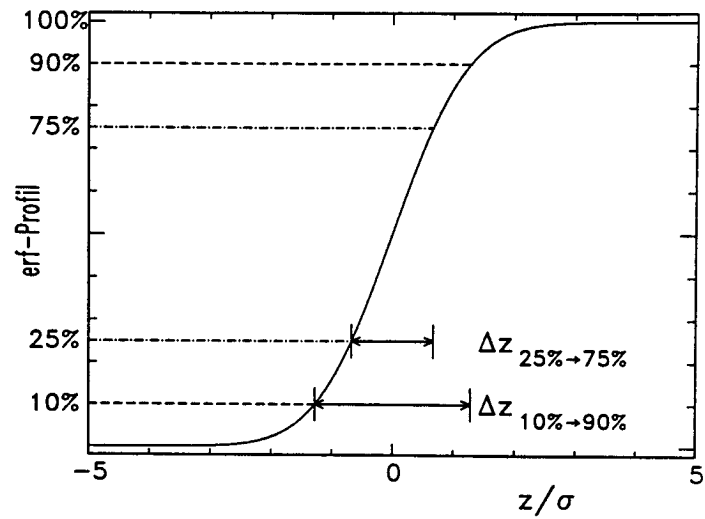


Abbildung 3.10: Experimentell bestimmte vertikale Rauigkeiten stellen Übergangsbreiten dar. Ihr Wert hängt von der Empfindlichkeit der jeweiligen Meßmethode auf die Ausläufer der Profilform ab.

Anstieg im erf-Profil	Übergangsbreite Δz
$\frac{1}{10} \rightarrow \frac{9}{10}$	2.56σ
$\frac{1}{6} \rightarrow \frac{5}{6}$	1.94σ
$\frac{1}{5} \rightarrow \frac{4}{5}$	1.68σ
$\frac{1}{4} \rightarrow \frac{3}{4}$	1.35σ

Tabelle 3.1: Übergangsbreiten Δz in Abhängigkeit vom Anstieg im erf-Profil. Die gesamte Sprunghöhe ist auf 1 normiert.

Bei der Ersetzung einer rauen Grenzfläche durch eine gaußverteilte Ebenenschar geschieht die Mittelung über eine Größe $f(u)$ gemäß der Beziehung

$$\langle f(u) \rangle := \int_{-\infty}^{\infty} du w(u) f(u) \quad . \quad (3.55)$$

Insbesondere gilt $\langle \exp(ixu) \rangle = \exp(-\frac{1}{2}x^2\sigma^2)$. Im folgenden wird die Grenzfläche j aus Abb. 3.7 betrachtet. Bei einer Beschreibung der Rauigkeit im obigen Sinne muß über die Reflexion an Ebenen gemittelt werden, die u_j von der mittleren Lage entfernt sind (Abb. 3.9c), wobei u_j gemäß (3.53) verteilt ist. Die Stetigkeitsbedingungen für die entsprechenden Feldkomponenten sind dann nicht mehr bei $d_j/2$ bzw. $-d_{j+1}/2$, sondern bei $d_j/2 + u_j$ bzw. $-d_{j+1}/2 + u_j$ zu erfüllen. Es ist also im Transfermatrizen-Formalismus die Ersetzung

$$d_j \rightarrow d_j + 2u_j \quad , \quad d_{j+1} \rightarrow d_{j+1} - 2u_j \quad (3.56)$$

vorzunehmen und dann zu mitteln. Die Mittelung kann auf unterschiedliche Arten mit gravierenden Konsequenzen durchgeführt werden, indem mit oder ohne feste Phasenbeziehung zwischen den einzelnen Amplituden gemittelt wird. Dies soll anhand der Reflektivität einer rauen Grenzfläche Vakuum/Materie demonstriert werden.

Falls die einlaufende und die reflektierte Welle eine feste Phasenbeziehung aufweisen, ist der Ausdruck

$$\left\langle \frac{A'_1}{A_1} \right\rangle = r_1 \exp(ik\vartheta_1 d_1) \langle \exp(i2k\vartheta_1 u_1) \rangle \quad (3.57)$$

zu bilden. Die Fresnel-Reflektivität R_F erhält dann einen Korrekturterm in Form eines Debye-Waller-Faktors :

$$R_{Rayleigh} = \left| \left\langle \frac{A'_1}{A_1} \right\rangle \right|^2 = R_F \exp(-(2k\vartheta_1)^2 \sigma^2) = R_F \exp(-Q_z^2 \sigma^2) \quad (3.58)$$

(diese Art der Mittelung geht auf Rayleigh zurück). Q_z ist der Betrag des Streuvektors (Gl. (3.35)). Besteht die feste Phasenbeziehung nicht, müssen die Amplituden einzeln gemittelt werden [Stanglmeier 1990, Stanglmeier et al. 1992] :

$$\frac{\langle A'_1 \rangle}{\langle A_1 \rangle} = \frac{\langle R_{21} \rangle}{\langle R_{11} \rangle} \quad (3.59)$$

Die Ersetzung (3.56) führt auf $R_{11} \rightarrow R_{11} \exp(-ik(\vartheta_1 - \vartheta_2)u_1)$ etc. . Die Mittelung ergibt

$$R_{NC} = \left| \frac{\langle A'_1 \rangle}{\langle A_1 \rangle} \right|^2 = R_F \exp(-4k^2 \vartheta_1 p_2 \sigma^2) = R_F \exp(-Q_z Q_z^t \sigma^2) \quad . \quad (3.60)$$

Der Index NC bezieht sich auf Névot und Croce [1980], die dieses Ergebnis auf anderem Wege erhielten . Unabhängig davon wurde es von Vidal und Vincent [1984] und Sinha et al. [1988] ebenfalls hergeleitet. Die Ersetzung von ϑ_1 durch p_2 (Realteil von ϑ_2) im Dämpfungsterm bewirkt, daß in Gl. (3.60) die Medien zu beiden Seiten der Grenzfläche

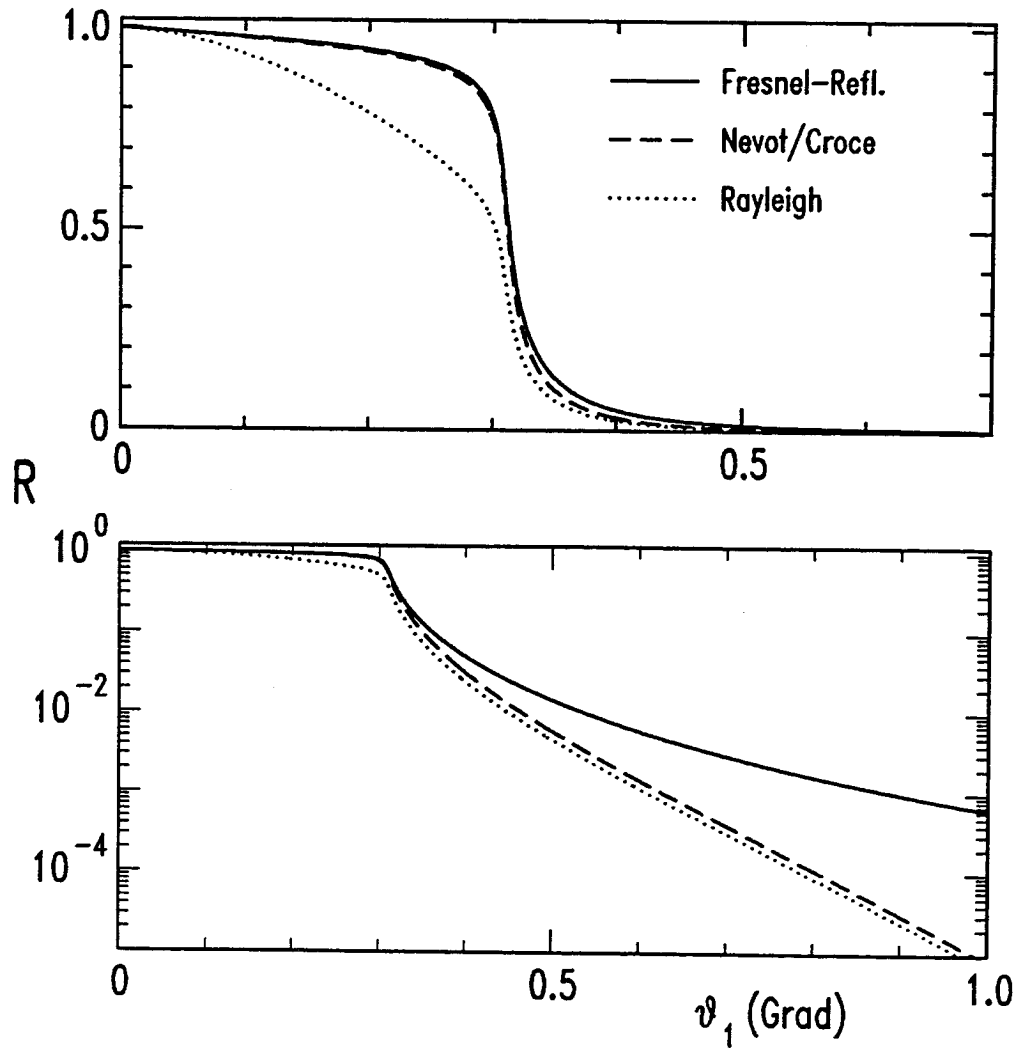


Abbildung 3.11: Reflektivität einer idealen bzw. rauhen Grenzfläche Vakuum/GaAs für 8048 eV-Photonen und verschiedene Rauheitsmodelle ($\sigma = 15 \text{ \AA}$).

berücksichtigt werden (Q_z^t ist der Streuvektor im Medium 2). Die Gleichungen (3.60) und (3.58) unterscheiden sich am stärksten im Bereich des kritischen Winkels, während sie für große Winkel ineinander übergehen (vgl. Abb. 3.3 und 3.11). Die Unterdrückung der Rauigkeit am kritischen Winkel und im Bereich der Totalreflexion wurde vielfach experimentell bestätigt [Stanglmeier 1990].

Gl. (3.59) legt nahe, das Névot-Croce-Modell auf Mehrschichtsysteme durch die Mittelung aller Transfermatrizelemente zu verallgemeinern :

$$\langle R_{MN}^{(j,j+1)} \rangle = R_{MN}^{(j,j+1)} \exp \left(-\frac{1}{2} k^2 (\vartheta_j - (-1)^{M+N} \vartheta_{j+1})^2 \sigma_j^2 \right) . \quad (3.61)$$

Verwendet man die normierte Form (3.44) der Matrix $\mathbf{R}$, wird deutlich, daß der Formalismus des vorigen Abschnitts mit der Ersetzung $r_j \rightarrow r_j \exp(-2k^2 \vartheta_j \vartheta_{j+1} \sigma_j^2)$ beibehalten werden kann, um die Reflektivität eines Mehrschichtsystems mit rauhen Grenzflächen zu beschreiben.

3.3 Röntgenbeugung

Da die Wellenlänge der Röntgenstrahlen in der Größenordnung interatomarer Abstände liegt, stellt ein Kristall aufgrund der periodischen Wiederholung einer Einheitszelle ein dreidimensionales Beugungsgitter dar, welches zu scharfen Interferenzmaxima (Bragg-reflexe) Anlaß gibt. Dies kann zur Charakterisierung epitaktischer Schichtsysteme mittels hochauflösender Röntgendiffraktometrie genutzt werden. Im folgenden werden einige physikalische Grundlagen dieses mittlerweile etablierten Verfahrens zusammengestellt, soweit sie für die Auswertung der im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Beugungsmessungen von Belang sind.

Bei der Herstellung einkristalliner Schichtsysteme werden verschiedene dünne Schichten unterschiedlicher Dicke und chemischer Zusammensetzung aufeinander abgeschieden. Unterschiedliche Gitterkonstanten der Materialien führen dabei zu einer elastischen Verzerrung der jeweiligen Schicht-Einheitszelle gegenüber der Einheitszelle des Substrats, sofern keine vollständige Relaxation vorliegt. Die Abmessungen der Einheitszelle werden durch die auf das Substrat bezogenen relativen Gitterfehlpassungen beschrieben (s. Abschnitt 2.2). Ziel der Beugungsmessung ist es, obige Parameter eines Schichtsystems zu bestimmen. Dazu wird in der Nähe eines Substrat-Braggreflexes die gestreute Intensität in Abhängigkeit vom Einfallswinkel gemessen ("Rockingkurve"). Aufgrund der geringfügig voneinander abweichenden Netzebenenabstände im Substrat und in den Schichten erwartet man zunächst bei verschiedenen Einfallswinkeln gleich indizierte Braggreflexe vom Substrat und von den Schichten. Falls die Reflexe sich überlappen, können jedoch kompliziertere Interferenzmuster entstehen.

Abb. 3.12 zeigt das Beugungsprofil eines epitaktischen GaAs/AlGaAs-Schichtsystems (Probe B, s. Abschnitt 5.1) mit seinen charakteristischen Reflexen und Nebenmaxima. Wegen des Phasenverlustes bei der Messung kann der Probenaufbau nicht durch eine Fouriertransformation der Meßkurve ermittelt werden. Mit Hilfe der kinematischen Streutheorie können einige strukturelle Parameter des Probe direkt aus den Winkelabständen der Rockingkurve abgeleitet werden. Dies ist Gegenstand von Abschnitt 3.3.1. Bei einer Auswertung mittels Simulation werden die Parameter des Schichtsystems solange variiert, bis eine befriedigende Übereinstimmung von berechneter und gemessener Rockingkurve vorliegt. Die Durchführung solcher Rechnungen auf der Grundlage der dynamischen Beugungstheorie wird in Abschnitt 3.3.2 skizziert.

Für eine detaillierte Darstellung der kinematischen Streutheorie sei auf James [1967] verwiesen. Zaus [1992] diskutiert insbesondere die Anwendung und Erweiterung der dynamischen Streutheorie nach Takagi und Taupin im Hinblick auf die Berechnung von Beugungsprofilen epitaktischer Halbleiterschichten.

3.3.1 Kinematische Streutheorie

Das Auftreten von Braggreflexen wird durch die Braggbedingung

$$\lambda = 2 d_{hkl} \sin \vartheta_B \quad (3.62)$$

beschrieben, wobei λ die Wellenlänge der Röntgenstrahlung, d_{hkl} der Abstand der beugenden Netzebenen und ϑ_B derjenige Glanzwinkel bezüglich der Netzebenen ist, unter

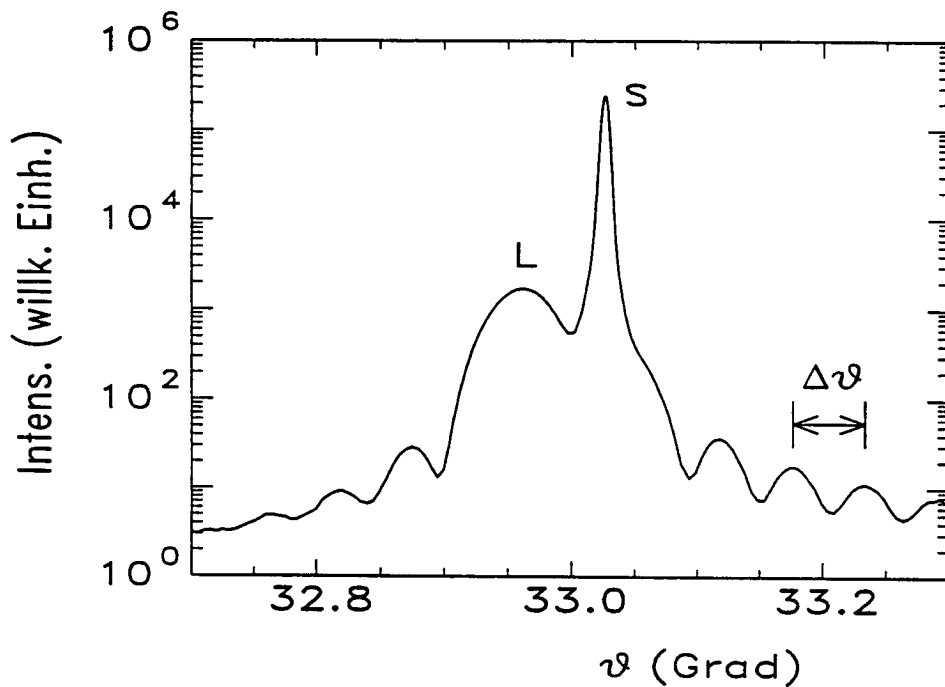


Abbildung 3.12: Reflektierte Intensität eines GaAs/AlGaAs-Schichtsystems (s. Text) in der Nähe des GaAs(004)-Reflexes in Abhängigkeit vom Glanzwinkel ϑ . Die Schichtstruktur führt dazu, daß neben dem Substratreflex S ein Hauptreflex L erscheint, der von Nebenmaxima im Winkelabstand $\Delta\vartheta$ begleitet wird.

dem konstruktive Interferenz auftritt. Falls die Millerschen Indizes (hkl) einen gemeinsamen Teiler n besitzen, handelt es sich um ein Maximum n -ter Ordnung der Beugung an Netzebenen des Abstandes $n \cdot d_{hkl}$.

Im folgenden soll eine dünne ⁸ Schicht auf einem Substrat betrachtet werden, deren jeweilige Braggreflexe einander nicht beeinflussen. Für den Schichtreflex gilt, daß – aufgrund der relativ geringen Anzahl an der Beugung beteiligter Netzebenen – die Interferenz der gebeugten Wellen nicht zu *einem scharfen* Maximum führt, dessen Lage durch die Braggbedingung (3.62) gegeben ist. Vielmehr tritt dort ein Hauptmaximum auf, dessen Breite umgekehrt proportional zur Anzahl der beteiligten Netzebenen ist und das von Nebenmaxima begleitet ist ⁹. Eine dünne Schicht auf einem Substrat führt also zu einem Abb. 3.12 qualitativ ähnlichen Beugungsprofil, das neben einem scharfen Substratreflex S ein Hauptmaximum L der Schicht sowie Nebenmaxima zeigt (die Schichtmaxima werden auch als Satelliten 0. bzw. höherer Ordnung bezeichnet). Aus dem Winkelabstand $\Delta\vartheta$ der Satelliten höherer Ordnung kann die Schichtdicke D

⁸Die Schichtdicke ist dabei in Relation zur Extinktionslänge der Röntgenstrahlung für den jeweiligen Reflex zu sehen, die typischerweise in der Größenordnung von $1 \mu\text{m}$ liegt.

⁹Eine quantitative Behandlung führt auf ein dreidimensionales Analogon der aus der Optik bekannten Gitterinterferenzfunktion $\sin^2(\frac{1}{2}Nx)/\sin^2(\frac{1}{2}x)$, die die Beugung an einem Strichgitter aus N Einzelspalten beschreibt [James 1967].

berechnet werden [Zaus 1992] :

$$D = \lambda \frac{\sin(\vartheta' - \omega)}{\Delta\vartheta \sin \vartheta'} \quad (3.63)$$

Hierbei steht ϑ' für den Streuwinkel zwischen einfallendem und ausfallendem Strahl. Der Einfallswinkel ω zur Oberfläche wird hier und im weiteren vom Einfallswinkel ϑ zur Netzebene unterschieden, um auch asymmetrische Reflexe zu berücksichtigen, bei denen die beugenden Netzebenen einen Winkel φ mit der Oberfläche einschließen.

Die Gitterfehlpassungen können aus der Winkelseparation zwischen dem Substratreflex und dem Satelliten 0. Ordnung bestimmt werden. Für pseudomorphes Wachstum auf einer (001)-orientierten Oberfläche ist $\left(\frac{\Delta d}{d}\right)^{\parallel} = 0$, so daß mit der vertikalen Gitterfehlpassung $\left(\frac{\Delta d}{d}\right)^{\perp}$ die Abmessung der tetragonal verzerrten Schicht-Einheitszelle bestimmt ist (s. Abschnitt 2.2). Zur Ermittlung von $\left(\frac{\Delta d}{d}\right)^{\perp}$ genügt es, einen symmetrischen Reflex zu messen, bei dem die Beugung an Netzebenen parallel zur Oberfläche stattfindet. Bezeichnet man die Winkellage von Schicht- und Substratreflex mit den Indizes L und S, so ergeben sich kleine vertikale Gitterfehlpassungen aus der Winkelseparation $\Delta\theta := \omega_L - \omega_S = \vartheta_L - \vartheta_S$ mit Hilfe der differenzierten Bragg'schen Gleichung :

$$\left(\frac{\Delta d}{d}\right)^{\perp} = -\cot \vartheta_B \Delta\theta \quad (3.64)$$

Dieser Wert ist in Gl. (2.6) einzusetzen, um bei der Berechnung der relaxierten Gitterfehlpassung $\frac{\Delta a}{a}$ die elastische Verzerrung der Schicht-Einheitszelle zu berücksichtigen. Aus $\frac{\Delta a}{a}$ kann für III-V-Halbleiter mittels der Vegard'schen Regel die chemische Zusammensetzung der Schicht bestimmt werden. Zur experimentellen Ermittlung der vertikalen *und* parallelen Gitterfehlpassung muß an einem Paar asymmetrischer Reflexe gemessen werden, da nur so der Streuvektor auch eine Komponente parallel zur Oberfläche aufweist. Abb. 3.13 verdeutlicht die zugrunde liegende Beugungsgeometrie. Die Reflexion an solchen Netzebenen tritt unter Einfallswinkeln ω auf, die um φ größer oder kleiner als der Braggwinkel ϑ_B sind. Die beiden Möglichkeiten entsprechen der Umkehrung des Strahlenganges. Die Winkelseparation $\Delta\omega = \omega_L - \omega_S$ setzt sich zusammen

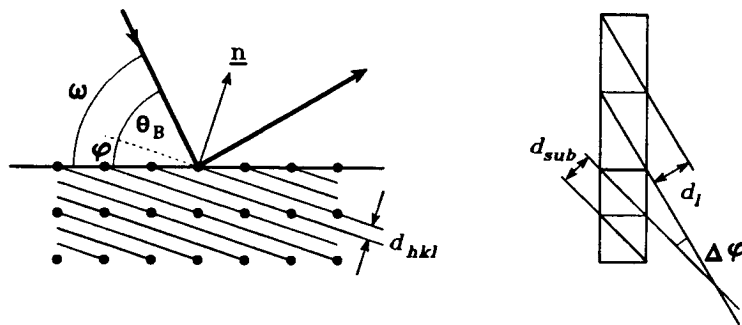


Abbildung 3.13: Geometrische Verhältnisse bei der Beugung an einem asymmetrischen Reflex. Im Fall einer tetragonal verzerrten Einheitszelle der Schicht verlaufen die Netzebenen in der Schicht und im Substrat nicht mehr parallel zueinander.

aus einem Anteil $\Delta\theta$, der sich aus den verschiedenen Braggwinkeln von Schicht und Substrat ergibt, und einem Anteil $\Delta\varphi$, der von der unterschiedlichen Neigung der Netzebenen in Schicht und Substrat herrührt. Zur getrennten Bestimmung dieser beiden Anteile werden daher zwei Messungen mit umgekehrtem Strahlengang durchgeführt. Wenn die Winkelseparation bei steil bzw. flach einfallendem Strahl mit $\Delta\omega_+$ bzw. $\Delta\omega_-$ bezeichnet wird, folgt daraus

$$\begin{aligned}\Delta\theta &= \frac{1}{2} (\Delta\omega_+ + \Delta\omega_-) \\ \Delta\varphi &= \frac{1}{2} (\Delta\omega_+ - \Delta\omega_-) \quad .\end{aligned}\tag{3.65}$$

Daraus ergeben sich die Gitterfehlpassungen zu

$$\begin{aligned}\left(\frac{\Delta d}{d}\right)^\perp &= \frac{\sin \vartheta_B}{\sin(\vartheta_B + \Delta\theta)} \frac{\cos \varphi}{\cos(\varphi + \Delta\varphi)} - 1 \\ \left(\frac{\Delta d}{d}\right)^\parallel &= \frac{\sin \vartheta_B}{\sin(\vartheta_B + \Delta\theta)} \frac{\sin \varphi}{\sin(\varphi + \Delta\varphi)} - 1\end{aligned}\tag{3.66}$$

[Macrander et al. 1988, Halliwell et al. 1989]. Die relaxierte Gitterfehlpassung wird wiederum mittels Gl.(2.6) ermittelt.

Eine Verallgemeinerung dieser Beziehungen auf beliebige Vielschichtsysteme ist nicht ohne weiteres möglich¹⁰, da die Interferenzen der an den verschiedenen Schichten gebeugten Wellen die Rockingkurve stark verändern können. Die in dieser Arbeit betrachteten Schichtsysteme bestehen aus einer GaAs-Deckschicht auf einer $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -Schicht, die epitaktisch auf ein GaAs(001)-Substrat aufgebracht wurden (s. Abb. 5.1). Es erscheint naheliegend, den Reflex L in Abb. 3.12 der $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -Schicht zuzuordnen, da die (wesentlich dünnere) Deckschicht ebenso wie das Substrat aus GaAs besteht. Dennoch führt die Interferenz zwischen den GaAs(004)-Reflexen der Deckschicht und des Substrats und dem $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}(004)$ -Reflex zu einem modifizierten Winkelabstand zwischen dem Substratreflex und dem Hauptreflex L, welcher somit auf einen falschen Al-Gehalt x führt, wenn wie im Fall einer Schicht auf Substrat ausgewertet wird (dieser Interferenz-Effekt wurde zuerst von Fewster und Curling [1987] gemessen). Die Interferenzen bewirken darüber hinaus, daß die in Abb. 3.12 im Winkelabstand $\Delta\vartheta$ auftauchenden Oszillationen nun als Dickenoszillationen der Gesamtschichtdicke aufzufassen sind.

Für eine genaue Auswertung der Rockingkurven sind daher die im nächsten Abschnitt beschriebenen Simulationsrechnungen vorzuziehen, die diese Effekte mitberücksichtigen.

3.3.2 Dynamische Streutheorie

Da epitaktische Schichtsysteme häufig aus sehr dünnen Schichten bestehen, stellt sich die Frage nach der Notwendigkeit einer dynamischen Behandlung der Streuung, in

¹⁰Eine Ausnahme bilden die sogenannten Übergitter, bei denen durch die periodische Abscheidung einer Schichtenfolge eine zusätzliche Periodizität in Wachstumsrichtung eingeführt wird [Segmüller et al. 1977, Kervarec et al. 1984].

welcher die Schwächung der einfallenden Intensität durch die abgebeugte berücksichtigt wird. Eine dynamische Theorie ist jedoch notwendig, um die Phasenbeziehungen der an den einzelnen Schichten gebeugten Wellenfelder korrekt zu beschreiben. Dies ist gerade für dünne epitaktische Schichten sehr guter Kristallinität wichtig, die Braggreflexe großer Breite aufweisen, welche leicht mit den Reflexen anderer Schichten bzw. des Substrats überlappen können.

Takagi [1962,1969] und Taupin [1964] haben eine Theorie formuliert, in der die Streuung dynamisch behandelt wird und die auch für einen elastisch verzerrten Kristall eine näherungsweise Lösung der Maxwellschen Gleichungen unter Berücksichtigung von Absorption und Brechung ermöglicht. Dabei wird der einfallende Röntgenstrahl durch eine ebene monochromatische Welle idealisiert, die im Kristall eine dielektrische Verschiebung $\mathbf{D}$ hervorruft, welche einer Gl. (3.3) entsprechenden Wellengleichung genügt. Betrachtet man ferner einen Zweistrahlfall, in dem sich außer der einfallenden Welle mit der Amplitude $D_0(\mathbf{r})$ lediglich *eine* weitere Welle mit merklicher Amplitude $D_H(\mathbf{r})$ ausbreitet (Anregung genau eines Braggreflexes mit dem reziproken Gittervektor $\mathbf{H}$), und macht man die Annahme, daß sowohl das Verzerrungsfeld des Kristalls als auch die Amplituden $D_0(\mathbf{r})$ und $D_H(\mathbf{r})$ nur schwach vom Ort $\mathbf{r}$ abhängen, kann ein System partieller Differentialgleichungen abgeleitet werden, das die Ausbreitung der jeweiligen Wellen beschreibt. Ist der Kristall lateral homogen, wie dies z.B. bei epitaktischen Schichtsystemen in guter Näherung der Fall ist, sind die Amplituden nur noch von der Ortskoordinate z in Wachstumsrichtung des Schichtsystems abhängig. Das System partieller Differentialgleichungen reduziert sich dann auf eine gewöhnliche Differentialgleichung für das Amplitudenverhältnis $D_H(z)/D_0(z)$ von gestreuter und einfallender Welle :

$$-i \frac{dX}{dT} = X^2 - 2\eta X + 1 \quad (3.67)$$

(Formulierung nach Bartels et al. [1986]). Diese Gleichung beschreibt die Veränderung des normierten Amplitudenverhältnisses X mit der normierten Tiefenkoordinate T bei festem Abweichungsparameter η , der die Abweichung des vorgegebenen Einfallswinkels ϑ vom Braggwinkel ϑ_B der beugenden Netzebenenchar enthält. Die komplexen Größen X , T und η sind folgendermaßen definiert :

$$\begin{aligned} X &:= \left(\frac{\chi_H}{\chi_0} \right)^{1/2} \left| \frac{\gamma_H}{\gamma_0} \right|^{1/2} \frac{D_H}{D_0} \\ T &:= z \frac{\pi P (\chi_H \chi_{\bar{H}})^{1/2}}{\lambda (\gamma_0 \gamma_H)^{1/2}} \\ \eta &:= \frac{-b(\vartheta - \vartheta_B) \sin(2\vartheta_B) + \frac{1}{2}\chi_0(1-b)}{|b|^{1/2} P (\chi_H \chi_{\bar{H}})^{1/2}} \end{aligned} \quad (3.68)$$

Die Fourierkomponenten χ_G der elektrischen Suszeptibilität sind mit den Strukturfaktoren F_G des Kristalls verbunden :

$$\chi_G = -\frac{r_0 \lambda^2}{\pi V} F_G \quad (G = 0, H, \bar{H}). \quad (3.69)$$

Dabei ist r_0 der klassische Elektronenradius, λ die Vakuum-Wellenlänge der Röntgenstrahlen und V das Volumen der Einheitszelle. $\gamma_0 = \sin(\vartheta_B - \varphi)$ bzw. $\gamma_H = -\sin(\vartheta_B + \varphi)$

ist der Richtungskosinus der einfallenden bzw. reflektierten Welle bezüglich der Oberflächennormalen, wobei die beugende Netzebene einen Winkel φ mit der Oberfläche einschließt. Der Asymmetriefaktor $b = \gamma_0/\gamma_H$ ist bei einer Reflexionsgeometrie (Bragg-fall) negativ. Für σ -polarisierte Strahlung besitzt der Polarisationsfaktor P den Wert 1 und für π -polarisierte Strahlung den Wert $|\cos(2\vartheta_B)|$. Im Fall einer homogenen Schicht der Dicke d ist η konstant, und Gl. (3.67) kann analytisch gelöst werden. Das Amplitudenverhältnis X_1 an der oberen Grenzfläche folgt aus dem Amplitudenverhältnis X_0 an der unteren Grenzfläche gemäß

$$X_1 = \eta + \sqrt{\eta^2 - 1} \frac{S_1 + S_2}{S_1 - S_2} \quad (3.70)$$

mit

$$S_{1,2} = \left(X_0 - \eta \pm \sqrt{\eta^2 - 1} \right) \exp \left(\mp iT \sqrt{\eta^2 - 1} \right). \quad (3.71)$$

Die Reflektivität beliebiger Schichtstrukturen wird mit Hilfe eines Rekursionsalgorithmus berechnet, der vom Substrat ausgehend das Amplitudenverhältnis X_i an jeder oberen Grenzfläche einer Schicht in Abhängigkeit vom Verhältnis X_{i-1} an der unteren Grenzfläche berechnet. Das Amplitudenverhältnis X an der Oberfläche ergibt dann die mit der gemessenen Intensität zu vergleichende Reflektivität des Schichtsystems :

$$R = \left| \frac{\gamma_H}{\gamma_0} \right| \left| \frac{D_H}{D_0} \right|^2 = \left| \frac{\chi_H}{\chi_H} \right| |X|^2 \quad (3.72)$$

Das Verhältnis γ_H/γ_0 berücksichtigt die Änderung des Strahlquerschnitts bei asymmetrischen Reflexen.

Zur Berechnung eines Beugungsprofils wird diese Rechnung für eine vorgegebene große Anzahl von Winkeln innerhalb des interessierenden Winkelintervalles wiederholt. Obige rekursiv angewandte analytische Lösung impliziert eine homogene chemische Zusammensetzung und konstante Gitterparameter in jeder Schicht. Die Beschreibung gradueller Übergänge zwischen einzelnen Schichten ist jedoch auch möglich, indem man den Übergangsbereich in viele dünne Lamellen einteilt, für die Zusammensetzung und Gitterparameter wiederum näherungsweise konstant sind.

Zaus [1992] hat gezeigt, daß die in der konventionellen Definition des Abweichungsparameters (Gl. (3.68)) benutzte Linearisierung

$$\sin \vartheta - \sin \vartheta_B \approx (\vartheta - \vartheta_B) \cos \vartheta_B \quad (3.73)$$

insbesondere für asymmetrische Braggreflexe mit steilem Einfall und flachem Ausfall zu systematischen Fehlern in der Berechnung von Beugungsprofilen führt. Dies ist bei einem detaillierten Vergleich mit Meßdaten zu beachten. Für eine verbesserte Formulierung des Abweichungsparameters sei auf obige Referenz verwiesen.

3.4 Diffuse Streuung unter streifendem Einfall

Die laterale Struktur einer rauhen Oberfläche macht sich unter streifendem Einfall in diffuser Streuung um den spekularen Reflex bemerkbar.

Sinha et al. [1988] benutzen eine modifizierte Bornsche Näherung (Distorted Wave Born Approximation, DWBA) zur quantitativen Beschreibung der diffusen Streuung an einer rauhen Oberfläche. Dabei wird die als isotrop angenommene Rauigkeit der Grenzfläche durch die Höhen-Höhen-Korrelationsfunktion

$$C(r) = \sigma^2 \exp\left(-(r/\xi)^{2h}\right) \quad (3.74)$$

beschrieben, wobei r ein Abstand in der Ebene ist, die der mittleren Lage der Grenzfläche entspricht. Die rauhe Grenzfläche wird also durch die Parameter σ (vertikale Rauigkeit), ξ (Korrelationslänge) und h (Rauigkeitsexponent) charakterisiert. Diese Größen werden in Anhang A eingehend diskutiert.

Der unter einem Winkel ϑ_1 einfallende Röntgenstrahl wird sowohl spiegelnd reflektiert als auch in der Einfallsebene und aus ihr hinaus diffus gestreut. Bei der Verwendung eines Schlitzdetektors (weite Öffnung parallel zur Oberfläche) wird somit über einen Freiheitsgrad integriert; die diffuse Streuung kann dann in Abhängigkeit vom Winkel θ'_1 beschrieben werden, der in der Einfallsebene liegt und relativ zur Oberfläche gemessen wird. Das auf die einfallende Intensität I_1 bezogene differentielle Reflexionsvermögen für diffuse Streuung unter dem Winkel θ'_1 ist dann gegeben durch

$$R_{\text{diff}}(\vartheta_1, \theta'_1) = \frac{1}{I_1} \left(\frac{dI}{d\theta'_1} \right)_{\text{diff}} = \frac{k^3}{8\pi^2 \vartheta_1} |1 - n^2|^2 |t(\vartheta_1) t(\theta'_1)|^2 S(Q_z^t) \quad (3.75)$$

(Formulierung angelehnt an Weber und Lengeler [1992]), wobei k den Betrag des Wellenvektors bezeichnet, $n = 1 - \delta - i\beta$ den komplexen Brechungsindex und t die Fresnelschen Transmissionskoeffizienten (3.12) der Grenzfläche. Per Definition ist der spekulare Reflex in dieser Beziehung nicht enthalten. Der Strukturfaktor der rauhen Grenzfläche ist definiert durch

$$S(Q_z^t) := |Q_z^t|^{-2} \exp\left(-\sigma^2 \Re[(Q_z^t)^2]\right) \int_0^\infty dr \cos(Q_r r) \left[\exp\left(|Q_z^t|^2 C(r)\right) - 1 \right] \quad (3.76)$$

mit

$$\begin{aligned} Q_z^t &= n k (\vartheta_2 + \theta_2) \\ Q_r &= \frac{1}{2} k (\vartheta_1^2 - \theta_1'^2). \end{aligned} \quad (3.77)$$

$\Re$ symbolisiert den Realteil einer komplexen Größe, ϑ_2 und θ_2' sind mit ϑ_1 und θ_1' über das Snelliussche Brechungsgesetz (3.8) verbunden, das für kleine Winkel auf Gl. (3.29) führt.

Nach Weber und Lengeler [1992] können experimentelle Daten quantitativ am besten beschrieben werden, falls die Fresnelschen Transmissionskoeffizienten t der *rauen* Grenzfläche im Modell von Névot und Croce (s. Abschnitt 3.2.2) verwendet werden. In Gl. (3.75) ist daher die Ersetzung

$$t(\vartheta_1) \rightarrow t_R(\vartheta_1) = \frac{2\vartheta_1}{\vartheta_1 + \vartheta_2} \exp\left(+\frac{1}{2}k^2\sigma^2(\vartheta_1 - \vartheta_2)^2\right) \quad (3.78)$$

vorzunehmen; mit $t(\theta'_1)$ ist entsprechend zu verfahren. Das gleichberechtigte Auftreten der Transmissionskoeffizienten für den ein- und ausfallenden Strahl ist eine Folge der Umkehrbarkeit des Lichtwegs ("Reziprozitätstheorem").

Der Transmissionskoeffizient wird maximal, wenn ϑ_1 bzw. θ'_1 gleich dem kritischen Winkel des Materials ist (vgl. Abb. 3.5). Falls also der ein- oder ausfallende Strahl mit der Oberfläche diesen Winkel einschließt, tritt ein ausgeprägtes Maximum in der diffusen Streuung auf ("Yoneda-Peak").

Nach numerischen Berechnungen von Weber [1992] ist die Intensität der diffusen Streuung in guter Näherung proportional zur Korrelationslänge, sofern letztere nicht "zu groß" ist (im Falle einer Vakuum/Aluminium-Grenzfläche mit $\sigma = 40 \text{ \AA}$ liegt danach diese Grenze bei über $1 \text{ \mu m}$ für 7000 eV -Photonen). Abweichungen treten vor allem für große Streuwinkel $\theta'_1 \gg \vartheta_1$ auf.

Dieses Verhalten kann auf analytischem Wege folgendermaßen eingesehen bzw. präzisiert werden. Nach der Substitution $x = r/\xi$ im Streuintegral und einigen Umformungen ergibt sich

$$R_{\text{diff}} = \frac{k}{2\pi^2\vartheta_1} \frac{\beta^2 + \delta^2}{|\vartheta_2 + \theta_2|^2} |t_R(\vartheta_1) t_R(\theta'_1)|^2 \exp\left(-\sigma^2 \Re[(Q_z^t)^2]\right) \xi F(a, b, h) \quad , \quad (3.79)$$

wobei der reduzierte Strukturfaktor $F(a, b, h)$ definiert ist durch

$$F(a, b, h) := \int_0^\infty dx \cos(ax) \left[\exp\left(b \exp(-x^{2h})\right) - 1 \right] \quad . \quad (3.80)$$

Er hängt außer vom Rauigkeitsexponenten h von den skalierten Variablen

$$\begin{aligned} a &:= \xi Q_r \\ b &:= \sigma^2 |Q_z^t|^2 \end{aligned} \quad (3.81)$$

ab, wobei a gleichzeitig die Abweichung vom spekularen Reflex ($a = 0$) parametrisiert. Im typischen Fall einer Grenzfläche mit $\xi = 1000 \text{ \AA}$ und $\sigma = 10 \text{ \AA}$ und unter üblichen Meßbedingungen mit $k = 4 \text{ \AA}^{-1}$, $\vartheta_1 = 0.5^\circ$ und $\theta'_1 = 1^\circ$ gilt $a \approx -0.5$ und $b \approx 1$.

Nach Gl. (3.79) werden Abweichungen von der einfachen Proportionalität $R_{\text{diff}} \sim \xi$ vom Integral (3.80) hervorgerufen, das jedoch in vielen praktischen Fällen nur schwach von ξ abhängt. Die Proportionalität ist unter spiegelnden Verhältnissen ($a = 0$) streng und für "kleine a " in guter Näherung erfüllt. Je nach Größe von ξ und Q_r kann dieser Bereich noch die gesamte meßbare Streukurve umfassen, wofür im folgenden eine quantitative Bedingung abgeleitet werden soll.

Das Integral $F(a,b,h)$ erstreckt sich über eine gedämpfte Cosinus-Funktion. Die Grundidee ist nun, daß das Resultat dieser Integration kaum von der Periode $2\pi/a$ (und damit von ξ) abhängt, wenn die Einhüllende vergleichsweise rasch abfällt. Am ersten Nulldurchgang der Cosinus-Funktion bei $x = \frac{\pi}{2|a|}$ sei die Einhüllende bereits mindestens auf einen vorgegebenen kleinen Wert ϵ gefallen (für praktische Rechnungen ist $\epsilon = 0.01$ ausreichend) :

$$\exp\left[b \exp(-x_0^{2h})\right] - 1 = \epsilon \quad . \quad (3.82)$$

Damit ergibt sich mit $\ln(1 + \epsilon) \approx \epsilon$

$$x_0 = \left[\ln \frac{b}{\epsilon} \right]^{\frac{1}{2h}} \leq \frac{\pi}{2|a|} \quad , \quad (3.83)$$

woraus folgt, daß die Proportionalität $R_{\text{diff}} \sim \xi$ unter der Bedingung

$$\sigma |Q_z^t| \leq \sqrt{\epsilon} \exp \left[\frac{1}{2} \left(\frac{\pi}{2\xi |Q_r|} \right)^{2h} \right] \quad (3.84)$$

gilt. Bei fester Korrelationsfunktion und Photonenenergie legt diese Beziehung also die Bereiche von ϑ_1 und θ'_1 fest, in denen die diffus gestreute Intensität in guter Näherung proportional zur Korrelationslänge ist. Die Wahl für ϵ ist nicht sehr kritisch, weil in vielen Anwendungsfällen der Exponentialterm um Größenordnungen über dem Term auf der linken Seite liegt.

Im Sonderfall $h = 0.5$ läßt sich das Streuintegral $F(a,b,h)$ weitgehend analytisch berechnen. Eine Reihenentwicklung der ersten Exponentialfunktion, die für $b \approx 1$ nicht nach dem linearen Glied abgebrochen werden darf, liefert mittels Fourier-Cosinus-Transformationen

$$F(a, b, h = 0.5) = \sum_{N=1}^{\infty} \frac{b^N}{N!} \frac{N}{N^2 + a^2} \quad . \quad (3.85)$$

Die Reihe ist mit dem Exponentialintegral Ei verwandt. Diese spezielle Funktion ist folgendermaßen definiert :

$$Ei x := \gamma + \ln x + \sum_{N=1}^{\infty} \frac{x^N}{N!N} \quad (x > 0) \quad (3.86)$$

($\gamma = 0.57721 \dots$ bezeichnet die Eulersche Konstante). Mit Hilfe der Kummerschen Reihentransformation folgt

$$F(a, b, h = 0.5) = Ei b - \ln b - \gamma - a^2 \sum_{N=1}^{\infty} \frac{b^N}{N!N(N^2 + a^2)} \quad . \quad (3.87)$$

In diesem Fall wird die geringe Abhängigkeit des Streuintegrals von der Korrelationslänge (sowohl für $|a| \ll 1$ als auch für $|a| \gg 1$) explizit deutlich. Für numerische Berechnungen ist natürlich Gl. (3.85) vorzuziehen.

In Simulationsrechnungen ergeben sich leicht für $h < 0.25$ numerische Probleme, da sich dann bereits die Divergenz des Streuintegrals $F(a,b,h)$ für $h \rightarrow 0$ bemerkbar machen kann. Die Stärke dieser Divergenz läßt sich für spiegelnde Verhältnisse wiederum analytisch angeben. Nach einer Reihenentwicklung der ersten Exponentialfunktion in (3.80) und mit Hilfe der Identität

$$\int_0^\infty dx \exp(-Nx^{2h}) \equiv \Gamma\left(1 + \frac{1}{2h}\right) \frac{1}{N^{\frac{1}{2h}}} \quad (h > 0) \quad (3.88)$$

ergibt sich

$$F(a=0, b, h) = \Gamma\left(1 + \frac{1}{2h}\right) \sum_{N=1}^{\infty} \frac{b^N}{N! N^{\frac{1}{2h}}} \leq \Gamma\left(1 + \frac{1}{2h}\right) (\exp(b) - 1) \quad . \quad (3.89)$$

$\Gamma(x)$ bezeichnet die Gammafunktion. Dieser Ausdruck kann für beliebige h zur Kontrolle numerischer Algorithmen eingesetzt werden.

Für $a \neq 0$ und $h < 0.25$ hat es sich als effektiv erwiesen, das Streuintegral (3.80) in Teilintegrale aufzuspalten, die von Nullstelle zu Nullstelle der Cosinus-Funktion reichen. Die so entstehende alternierende Reihe konvergiert für $h \rightarrow 0$ nur sehr schlecht, da das Verhältnis aufeinanderfolgender Summanden nahe bei -1 liegt. In solchen Fällen stellt die Eulersche Reihentransformation die bestangepaßte Methode zur Konvergenzbeschleunigung dar [Drummond 1984]. Sie erlaubt eine zuverlässige Summation der Reihe mit nur wenigen Termen, wodurch eine Simulation der Streukurven auf einer VAX mit einer Geschwindigkeit von ca. 0.1 sec/ Punkt möglich wird.

Kapitel 4

Experimenteller Aufbau

4.1 Spektrometer

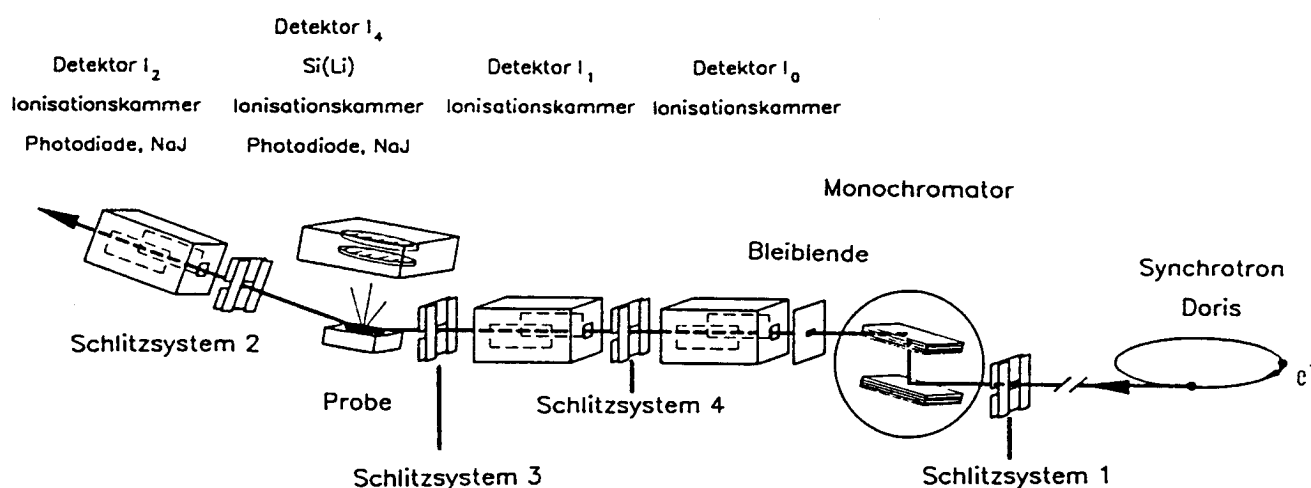


Abbildung 4.1: Schematischer Aufbau des Spektrometers [Hüppauff 1993].

Abb. 4.1 zeigt das im Hamburger Synchrotronstrahlungslabor HASYLAB verwendete Spektrometer. Es wird am Meßplatz RÖMO I (Fächer E2) betrieben und nutzt die intensive Röntgenstrahlung der von einem Ablenkmagneten beschleunigten Elektronen. Die im Speicherring DORIS III umlaufenden Elektronen besaßen zur Zeit der Messungen Energien von 4.45 GeV (Hauptbenutzerzeit) bzw. 5.3 GeV (Nebenbenutzerzeit). Etwa alle drei Stunden wurde der Strom wieder durch eine Neuinjektion auf einen Maximalwert von 50 mA gebracht. Aufgrund der relativistischen Energien emittieren die Elektronen sehr gut kollimierte Röntgenstrahlen; die vertikale Strahldivergenz liegt bei 0.2 mrad (FWHM). Weitere Vorzüge dieser Röntgenquelle sind das breite und kontinuierliche Energiespektrum sowie ihre Berechenbarkeit. In der Bahnebene der Elektronen ist die emittierte Strahlung vollständig linear polarisiert. Für Messungen unter streifen-

dem Einfall wird wegen der perspektivischen Verkürzung der Probe ein Strahlfleck von $75 \mu\text{m}$ (vertikal) $\times$ 12 mm (horizontal) ausgeblendet. Bei einem Abstand von 36 m zur Strahlquelle und typischen Photonenergien von 10 keV steht dann am Ort der Probe noch eine Ausgangsintensität in der Größenordnung von 10^8 Photonen pro Sekunde und eV zur Verfügung (vgl. [Stanglmeier 1990]).

4.1.1 Monochromator

Das energetische Spektrum der Synchrotronstrahlung reicht hinter dem Beryllium-Austrittsfenster des Vakuum-Strahlrohres von 4 keV bis hin zu einer oberen Grenzenergie von etwa 100 keV . Es wird mit einer Doppelkristall-Anordnung monochromatisiert. Mit den vorhandenen Si(111)-, Si(311)- und Si(511)-Einkristallen steht ein Energiebereich von 4.5 bis 30 keV für Experimente zur Verfügung. Die einzelnen Kristalle unterscheiden sich nicht nur in ihrem Einsatzgebiet (z.B. Si(111) : 4.5 bis 12 keV), sondern auch in ihrer Energieauflösung, wie folgende Rechnung zeigt : Aus der Braggschen Gleichung

$$n \lambda = 2 d \sin \theta \quad (4.1)$$

mit dem Netzebenenabstand d und dem Braggwinkel θ folgt durch Differentiation für die Energieauflösung

$$\frac{\Delta E}{E} = -\cot \theta \Delta \theta \quad (4.2)$$

Je höher indiziert die beugende Netzebene ist, desto besser ist also die Energieauflösung (bei gleicher Energie und Winkeldivergenz der einfallenden Strahlung). Eine typische Energieauflösung bei 10 keV Photonenergie ist für Si(311)-Kristalle 1.5 eV . Diese gute Monochromatisierung bei hoher Intensität ist nur möglich aufgrund der hervorragenden Kollimation der Synchrotronstrahlung ¹.

Der Doppelkristall-Monochromator ist auf ein Goniometer (Huber 421) montiert, das mit einer Genauigkeit von 80000 Schritten pro Grad angesteuert wird. Beim Verfahren zu größeren Energien (d.h. zu kleineren Einfallswinkeln) verschlechtert sich dabei nach Gl. (4.2) die Energieauflösung, sie bleibt jedoch stets unter 10 eV . Gleichzeitig ändert sich der Strahlversatz, so daß der gesamte Experimentiertisch, auf dem die Apparatur aufgebaut ist, zur Kompensation in der Höhe nachgefahren werden muß.

Neben der Grundwelle werden nach Gl. (4.1) auch höhere Harmonische vom Monochromator durchgelassen. Diese werden durch eine geringe Verkipfung des ersten Monochromator-Kristalls unterdrückt, die in der Größenordnung von Bogensekunden liegt und durch Piezokristalle realisiert wird. Aufgrund des energieabhängigen Brechungsindex (3.16) liegt der Schwerpunkt der Durchlaßkurve für die Grundwelle am weitesten von dem durch Gl. (4.1) definierten Braggwinkel entfernt. Gleichzeitig sinkt die Darwinbreite der Durchlaßkurven mit kürzerer Wellenlänge, so daß eine leichte Verstimmung des Braggwinkels die höheren Harmonischen eliminiert, ohne die Intensität der Grundwelle wesentlich zu beeinträchtigen. Praktisch erfolgt die Verkipfung des ersten Kristalls durch einen Regelkreis, der eine Rückkopplung mit der Intensität der

¹In die Winkelunschärfe $\Delta \theta$ geht neben der vertikalen Öffnung des Schlitzsystems 1 (s. Abb. 4.1) auch die vertikale Ausdehnung des Elektronenstrahls ein. Sie beträgt typischerweise in der Hauptbenutzerzeit 1.3 mm (Nebenbenutzerzeit : 1.9 mm , FWHM-Werte).

monochromatisierten Strahls aufweist (Ionisationskammer 0 aus Abb. 4.1). Der Anteil höherer Harmonischer wurde mit einem energieauflösenden Festkörpertektor kontrolliert (s. Abschnitt 4.1.4). Die Energiekalibration des Spektrometers geschieht an den Absorptionskanten bekannter Materialien. In der Regel wird die Cu K-Kante benutzt, deren erstem Maximum in der ansteigenden Flanke der Wert 8982.7 eV zugeordnet wird.

Eine detailliertere Beschreibung des Monochromators ist bei Weber [1992] zu finden.

4.1.2 Goniometer

Das in den Experimenten benutzte Goniometer ist in Abb. 4.2 dargestellt. Es wurde

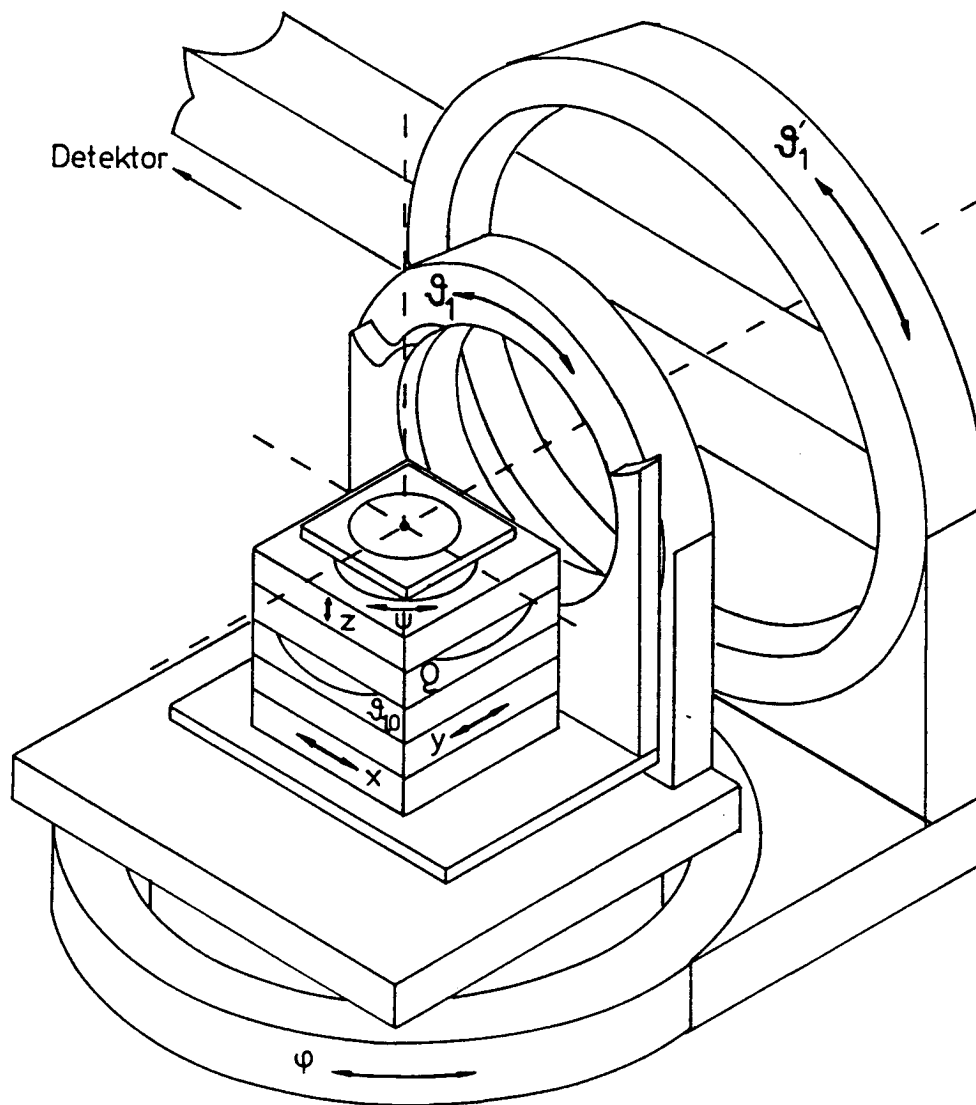


Abbildung 4.2: Schematischer Aufbau des Goniometers [Hüppauff 1993].

von der Firma Huber (Rimsting/Chiemsee) gebaut und weist zwei Freiheitsgrade zur Positionierung des Detektors sowie sechs Freiheitsgrade zur Positionierung der Probe gegenüber dem einfallenden Strahl auf.

Der Einfallswinkel wird vom Freiheitsgrad ϑ_1 bestimmt, der Detektorwinkel vom Freiheitsgrad ϑ'_1 . Hier ist für winkeldispersive Reflexionsmessungen eine hohe Präzision notwendig. Das Winkelprotokoll des Herstellers (aufgenommen mit einem Heidenhain-Encoder RDD 800 / VRZ 166) gibt den maximalen Teilungsfehler des Einkreisgoniometers für ϑ_1 (Huber 420) mit weniger als 0.004° auf 360° an. Im für Messungen unter streifendem Einfall interessierenden Bereich von 0° bis 6° übersteigt der Fehler sogar 0.0005° nicht. Der entsprechende Fehler für das ϑ'_1 -Einkreisgoniometer (Huber 512) liegt bei 0.0056° auf 360° . Die Drehachsen dieser beiden Teilgoniometer stimmen sehr gut überein. Bei Messungen muß diese Achse auf der Probenoberfläche liegen und vom Synchrotronstrahl getroffen werden, damit das Zentrum des Strahlflecks auch bei veränderlichem Einfallswinkel an derselben Stelle der Oberfläche bleibt.

Der Freiheitsgrad z dient dazu, die Probenoberfläche in das Drehzentrum zu bringen, während mit dem Freiheitsgrad ψ kristalline Proben ggf. azimuthal justiert werden. Sollte die Probenoberfläche nicht parallel zum 12 mm breiten Synchrotronstrahl liegen, kann sie mittels der Wiege ρ ausgerichtet werden. Durch den azimuthalen Detektorwinkel ϕ ist man bei der Messung von Bragg-Reflexen nicht auf die vertikale Streuebene beschränkt.

Die Justage des Goniometers erfolgt in mehreren Schritten. Nach dessen Ausbalancierung auf dem Experimentiertisch mit Hilfe einer Wasserwaage wird die optische Achse parallel zum einfallenden Synchrotronstrahl ausgerichtet. Dies geschieht über einen x-y-Schlitten des Experimentiertisches (in Abb. 4.2 nicht gezeigt) mittels Polaroid-Filmen. Die Drehachse der Wiege ρ wird über den Schlitten y ebenfalls unter Verwendung von Polaroid-Filmen in die Strahlmitte gebracht. Mit Hilfe einer eigens angefertigten Justageblende, die auf den Probenhalter aufgesetzt wird, wird der Experimentiertisch in der Höhe so verfahren, daß der Synchrotronstrahl durch die Drehachse von ϑ_1 bzw. ϑ'_1 geht. Danach werden Tisch und Monochromator nur noch korreliert bewegt. Diese Justage muß nur einmal pro Meßzeit nach dem Aufbau des Goniometers durchgeführt werden. Die Justage von z und ρ sowie die Kalibration von ϑ_1 und ϑ'_1 wird dagegen für jede Probe neu durchgeführt.

4.1.3 Blendensystem

Die den Strahl definierenden bzw. die Streustrahlung begrenzenden Schlitzsysteme sind in Abb. 4.1 gezeigt. Das erste Schlitzsystem ist dem "weißen" Spektrum der Synchrotronstrahlung ausgesetzt. Es blendet aus der Strahlmitte einen 0.8 mm hohen und 12 mm breiten Strahlfleck aus. Dabei (und beim Auftreffen auf den ersten Monochromatorkristall) entsteht starke Streustrahlung, die unter anderem von der eingezeichneten 5 mm starken Bleiblende vor dem Detektor I_0 abgeschirmt wird. Das Schlitzsystem 4 definiert die Höhe des Strahls, welcher auf die Probe fällt. Bei Messungen unter streifendem Einfall ist dies i. d. R. $75 \mu\text{m}$, bei größeren Einfallswinkeln entsprechend mehr. Die am Schlitzsystem 4 entstehende Blendenstreuung weitet den Synchrotronstrahl auf. Vom Schlitzsystem 3, das den Strahl nicht mehr berührt, wird die resultierende diffuse Streuung auf die Probe reduziert. Das Schlitzsystem 2 verringert den in den Detektor

gestreuten Untergrund und definiert den Öffnungswinkel des Detektors. Falls es einen Teil des reflektierten Strahls ausblendet, definiert es ebenfalls die Auflösung.

Die Backen aller Schlitzsysteme bestehen aus 2 mm starken Molybdänblechen. Während die vertikalen Backenpaare mit Motoren angesteuert werden, geschieht die Verstellung des lateralen Backenpaares manuell (z. B. bei Proben mit einer kleineren Breite als 12 mm). Die Schlitzsysteme 3 und 4 werden per Schrittmotor in die Strahlmitte gefahren. Das Schlitzsystem 2 ist fest vor den Detektor I_2 montiert und wird mit diesem zusammen bewegt.

In der sich an die Monochromatorkammer anschließende Experimentierkammer herrscht ein inhomogen verteilter Untergrund. Er stammt aus der oben erwähnten Streuung hochenergetischer Photonen des Synchrotronspektrums und führte bei einer Elektronenenergie von 5.3 GeV typischerweise zu Untergrund-Zählraten von 50 pro Sekunde [Weber 1992]. Solche Untergrund-Zählraten stören die Messung diffus gestreuter Intensität empfindlich. Sie können um eine Größenordnung verringert werden, wenn in der Monochromatorkammer zusätzliche Bleiabschirmungen an folgenden Stellen vorhanden sind : Zum einen wird der durch den ersten Monochromatorkristall z. T. gestreute, z.T. durchgehende hochenergetische Anteil des Synchrotronspektrums von zwei hintereinander gestellten Bleiziegeln zu je 5 cm Dicke absorbiert. Der erste Ziegel weist dazu noch einen Wolfram-Einsatz in Höhe des Strahlzentrums auf. Zum anderen hat es sich zur Abschirmung der Streustrahlung als sehr effektiv erwiesen, den monochromatisierten Strahl beim Verlassen der Monochromatorkammer durch eine lediglich 5 mm hohe und 26 mm breite Aussparung in einem Bleiziegel obiger Dicke hindurchzuführen. Auf Polaroid-Filmen, die vor der in Abb. 4.1 eingezeichneten Bleiblende belichtet werden, verschwindet dann praktisch der Halo um den monochromatisierten Strahl. Weber [1992] diskutiert das Blendensystem sowie den Untergrund durch Streustrahlung ausführlicher.

4.1.4 Detektoren

Zum Nachweis der Röntgenstrahlung werden verschiedene Detektortypen verwendet : Ionisationskammern, Photodioden, Szintillationszähler und ein Lithium-gedrifteter Silizium-Festkörperdetektor. Den Einsatz der unterschiedlichen Detektoren verdeutlicht Abb. 4.1.

Die beiden Detektoren I_0 und I_1 sind Ionisationskammern, da sie im Strahlengang vor der Probe stehen müssen. Sie stellen im wesentlichen Plattenkondensatoren dar, deren Füllgase (N_2 , Ar und He) von der Röntgenstrahlung ionisiert werden. Die Absorption in I_1 beträgt ungefähr 10 % der einfallenden Intensität. Während die Kammer I_0 ein Rückkopplungssignal zur Monochromatorstabilisierung bereitstellt, mißt die Kammer I_1 eine Referenzintensität, auf welche die von der Probe gestreute Intensität bezogen wird. Dies ist erforderlich, weil die Stromstärke im Speicherring auf der Zeitskala der Experimente beständig absinkt.

Als Detektor I_2 kommen je nach Problemstellung verschiedene Nachweisgeräte in Frage. Für EXAFS-Messungen wird eine Ionisationskammer verwendet, da eine hohe Intensität bei vergleichsweise geringer Dynamik nachzuweisen ist. Bei der Verwendung von Photodioden kann der kristalline Charakter des Siliziums zu Artefakten in den Absorptionskurven führen, wenn Bragg-Reflexe angeregt werden [Storb 1990]. Bei Reflek-

tivitätsmessungen werden hohe Zählraten mit lichtdicht gekapselten Photodioden auf Silizium-Basis nachgewiesen. In diesen PIN-Dioden erzeugt die Absorption der Röntgenstrahlung in der einige 100 μm dicken intrinsischen Schicht Elektron-Loch-Paare. Da die Ladungsträger typischerweise über eine Sekunde aufintegriert werden, arbeiten diese Detektoren im Strommodus. Photodioden als Detektoren im harten Röntgenbereich werden ausführlich von Storb [1990,1991] und Müllender [1992] behandelt. Zum Nachweis niedriger Zählraten ist ein Szintillationszähler geeignet. Er wird im Pulsmodus betrieben und besteht aus einem dotierten NaJ-Kristall, in dem Farb- bzw. Aktivatorzentren von den Röntgenphotonen angeregt werden. Bei der Rückkehr in den Grundzustand wird sichtbares Licht emittiert, das in einer nachfolgenden Photokathode Elektronen auslöst. Nach Durchlauf des Sekundärelektronenvervielfachers liegt ein verstärkter Strom vor, dessen Spannungsabfall an einem Arbeitswiderstand einen Puls entstehen läßt. Die Frequenz solcher Pulse ist dann ein Maß für die Intensität der Röntgenstrahlung. Experimentelle Details werden von Weber [1992] beschrieben.

Mit dem Detektor I_4 wird Fluoreszenzstrahlung sowie elastisch gestreute Intensität nachgewiesen. Im Rahmen dieser Arbeit wurde nur der energieauflösende Si(Li)-Festkörperdetektor verwendet, um den Anteil höherer Harmonischer im monochromatisierten Strahl festzustellen. Im Gegensatz zu den Photodioden wird dieser Halbleiterdetektor im Pulsmodus betrieben. Aufbau und Funktionsweise werden ausführlich von Hüppauff [1993] diskutiert.

Die im Rahmen dieser Arbeit diskutierten Reflexionskurven mit einer Dynamik von 6 Größenordnungen sind im Bereich hoher Intensitäten mit Photodioden gemessen worden, während für kleine Zählraten ein NaJ-Szintillationszähler verwendet wurde. Photodioden können bis hinab zu Zählraten von 10 Photonen/Sekunde verwendet werden. Da andererseits der NaJ-Detektor etwa ab 10^5 Photonen/Sekunde sättigt, ergibt sich ein großer Überlappbereich zur Anstückelung. Dabei muß allerdings der Offset der Kombination Photodiode/Verstärker (Dunkelstrom und elektronisches Rauschen) sorgfältig berücksichtigt werden. Dieser Offset ist bei dem verwendeten Modell Keithley 428 bei Raumtemperatur relativ hoch und kann stark driften. Er wurde typischerweise alle 90 Sekunden gemessen, indem ein Blei-Absorber rechnergesteuert zwischen den Ionisationskammern I_0 und I_1 in den Strahl gefahren wurde. Die linear interpolierten Offsetwerte wurden von den Meßwerten abgezogen. Abb. 4.3 zeigt, daß die so gewonnenen korrigierten Meßwerte mit den Meßdaten des NaJ-Szintillationszählers auch noch bei einem Signal/Offset-Verhältnis von 1 % sehr gut übereinstimmen. Die Anstückelung von Meßwerten verschiedener Detektoren zu einem Gesamtdatensatz hat sich daher als unproblematisch erwiesen.

Auch bei einer Division durch die Referenzintensität I_1 sind alle Meßdaten zunächst in willkürlichen Einheiten gegeben, da die Nachweiswahrscheinlichkeiten der Detektoren sowie die Absorption in Luft zu berücksichtigen sind. Mit einer Photodiode als Detektor I_2 kann man jedoch nach Entfernen der Probe aus dem Strahlengang die einfallende Intensität bestimmen, so daß die mit der Photodiode gemessenen Reflexionskurven als *Reflektivitäten* angebbare sind. Aufgrund der Möglichkeit, die mit dem NaJ-Detektor gemessenen Daten anstückeln zu können, kann auch für diesen Detektor ein (Photonenenergie-abhängiger) Umrechnungsfaktor N_R bestimmt werden, mit dem die willkürlichen Einheiten I_2/I_1 nur zu multiplizieren sind, um Reflektivitäten zu ergeben. Mit diesem Faktor wird auch die diffus gestreute Intensität normiert.

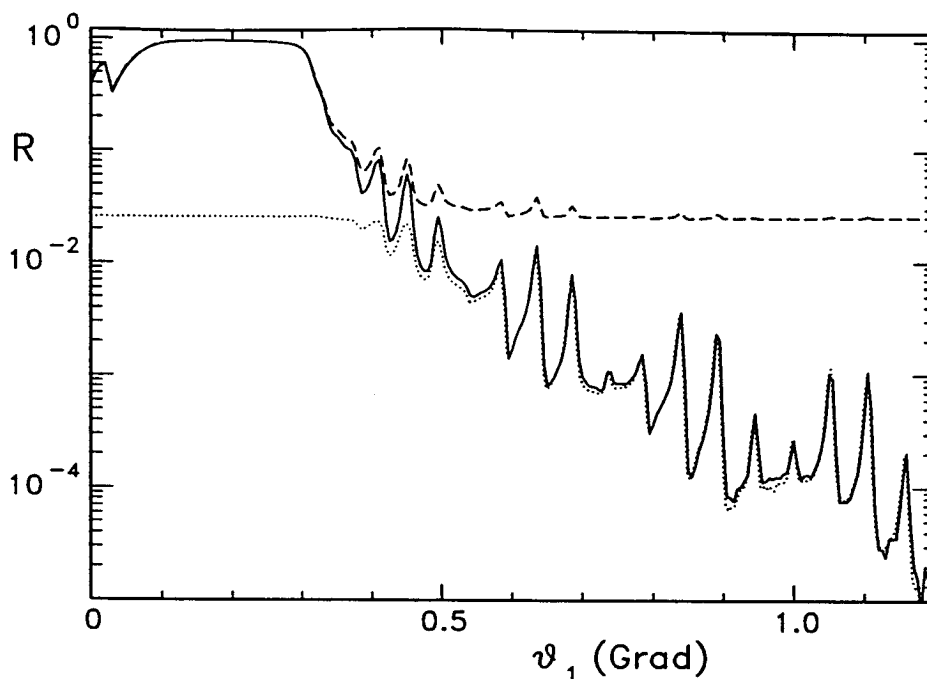


Abbildung 4.3: Vergleich verschiedener Röntgendetektoren anhand der Reflektivität eines GaAs/AlAs-Übergitters für 8048 eV-Photonen. Die Kombination Photodiode/Verstärker Keithley 428 führt zu Meßdaten, denen ein hoher Offset überlagert ist (- - -). Nach dessen Abzug erscheint ein Spektrum (—), das sehr gut mit den Meßdaten eines NaJ-Szintillationszählers übereinstimmt (· · · · ·). Im Anfangsbereich befindet sich der NaJ-Detektor in der Sättigung.

4.1.5 Steuerung und Datenerfassung

Abb. 4.4 zeigt das Blockschaltbild der Spektrometersteuerung und Datenerfassung. Ein Experimentrechner (Microvax von Digital) kontrolliert mittels CAMAC-Modulen die Motore bzw. liest die von den Detektoren registrierten Intensitäten aus. Für die verschiedenen Meßmodi, zur Justage etc. stellt ein Steuerprogramm dem Benutzer verschiedene Menüs zur Verfügung. Goniometer-Freiheitsgrade, Monochromator-Energie und Experimentiertisch-Höhe werden mit Schrittmotoren verfahren. Die Ansteuerung erfolgt über DSP-E500 Treiber mit Phytron(SINCOS)-Leistungsendstufen, die sehr flexibel in der Wahl der elektronischen Schrittauflösung sind (Vollschritt bis hin zum Zwanzigstelschritt). Beim Wechsel der Motorlaufrichtung wird der sogenannte tote Gang berücksichtigt, um Positionen reproduzierbar anfahren zu können. Detaillierte technische Angaben zu den einzelnen Motoren macht Hüppauff [1993].

Die Datenaufnahme erfolgt für Detektoren im Strommodus, indem nachgeschaltete Verstärker (Keithley 428) eine dem Eingangsstrom proportionale Ausgangsspannung liefern, die wiederum in eine entsprechende Frequenz umgewandelt wird. Die Anzahl der von einem Frequenzzähler (Kinetics 3610) registrierten Pulse wird vom Rechner in regelmäßigen Abständen ausgelesen.

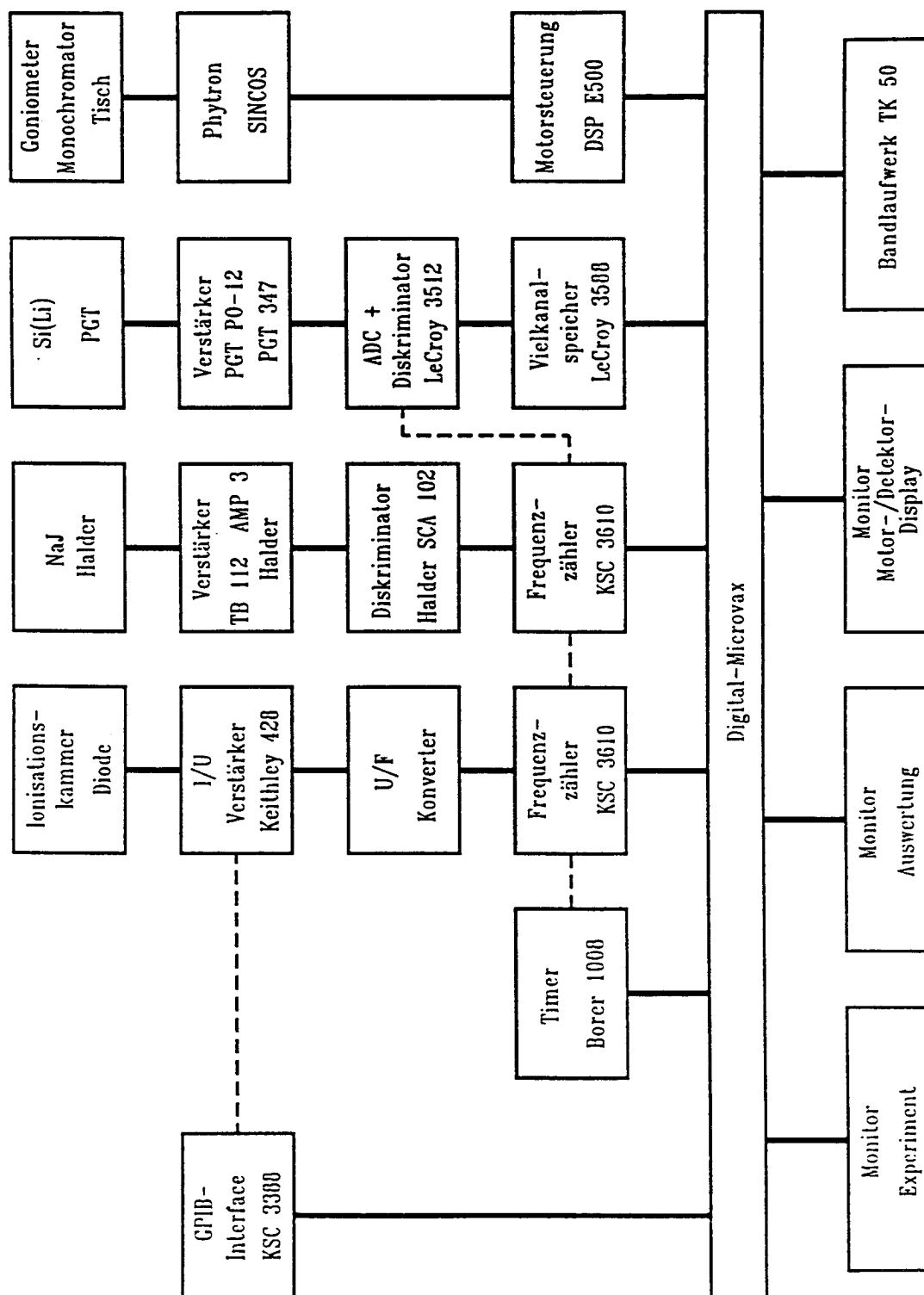


Abbildung 4.4: Blockschaltbild der Experimentsteuerung und Datenerfassung [Hüppauff 1993].

Der Signalfluß verläuft für Detektoren im Pulsmodus (NaJ- und Si(Li)-Detektor) etwas anders, da deren Pulshöhenspektrum einem Energiespektrum der nachgewiesenen Photonen entspricht. Die verstärkten und geformten Pulse werden einem Diskriminator zugeführt, der den interessierenden Teil des Spektrums herausfiltert. Für energieauflösende Messungen ist der Si(Li)-Detektor sehr gut geeignet. Das Energiespektrum wird dabei in Kanäle zerlegt, die einzeln ausgelesen werden. Eine externe Uhr (Timer Borer 1008) taktet die verschiedenen Zählermodule.

Die Verstärker Keithley 428 werden über eine IEEE-Schnittstelle angesteuert, um z.B. unterhalb bzw. oberhalb von vorgebbaren Zählraten selbsttätig den Verstärkungsbereich zu wechseln. Diese Automatisierung ist bei Messungen am Synchrotron besonders wichtig, da während der Datennahme die Verstärker nicht zugänglich sind. Parallel zum Meßbetrieb ist eine Auswertung von Daten möglich, während der die aktuelle Messung graphisch verfolgt werden kann. Darüber hinaus können auf einem separaten Bildschirm Motorpositionen und Intensitäten diverser Detektoren zahlenmäßig ausgegeben werden.

4.2 Probenjustage

Die Proben werden mit zwei Klebestreifen auf einer Glasscheibe befestigt, die danach durch eine Ansaugvorrichtung auf dem Probenhalter festgehalten wird. Ein direktes Ansaugen würde dünne Proben wie die hier untersuchten Halbleiterwafer stark krümmen. Die Probenjustage soll beispielhaft für Reflexionsmessungen unter streifenförmigem Einfall skizziert werden. Die Winkelskalen ϑ_1 und ϑ'_1 sind für jede Probe neu zu kalibrieren, da in der Auswertung absolute Winkel (und nicht Winkeldifferenzen) benötigt werden. Dies geschieht folgendermaßen: Der Nullpunkt der ϑ'_1 -Skala ist durch den direkten Strahl gegeben. Dazu wird die Blende vor dem Detektor I_2 auf $75\ \mu\text{m}$ verengt und ein ϑ'_1 -Scan gefahren. Die Lage des Maximums wird sodann zu Null Grad rekaliert. Die Probe war für diesen Vorgang natürlich unter den Synchrotronstrahl abgesenkt worden. Sodann wird die Blende vor dem Detektor I_2 weit geöffnet und die Probe bei einem Einfallswinkel von annähernd 0° in den Strahl hineingefahren (z-Scan). Dieser Scan dient der Normierung der folgenden Meßkurven, da er die Intensität des direkten Strahls enthält, sowie der Ermittlung desjenigen z-Wertes, bei welchem 50 % der Intensität des direkten Strahls erreicht wird. Auf diesen z-Wert wird die Probe gefahren, damit die Oberfläche der Probe im Drehzentrum (auf Höhe des Synchrotronstrahls) liegt. Danach wird bei einer Detektorposition von z.B. $\vartheta'_1 = 0.8^\circ$ (mit $75\ \mu\text{m}$ -Blende) die Probe mit einem ϑ_1 -Scan um den Wert $\vartheta_1 = 0.4^\circ$ bewegt. Die Winkellage der Maximalintensität wird zu $\vartheta_1 = 0.4^\circ$ rekaliert. Da die ϑ_1 -Kalibration den Wert für z beeinflusst, wird die z- sowie die ϑ_1 -Kalibration wiederholt. Mit dieser Methode kann z auf $\pm 10\ \mu\text{m}$ sowie ϑ_1 auf besser als 0.001° bestimmt werden. Die ϑ_1 -Kalibration wird zur Kontrolle für einen anderen ϑ'_1 -Wert (z. B. 1°) wiederholt. Die Fehler in der Winkelskala liegen in der Regel unterhalb von 0.0005° .

Eine Kalibration dieser Art setzt eine sehr gute Übereinstimmung der Drehachsen von ϑ_1 und ϑ'_1 voraus. Sie ist insbesondere für Messungen an Halbleiterschichtsystemen geeignet, die im Vergleich zu Gläsern stark gekrümmt sind (Radien von 50-400 m, s. Abschnitt 5.2.7). Diese Probenkrümmungen weiten den Strahl entsprechend der Aus-

leuchtung der Probenoberfläche auf (s. Abschnitt 4.4). Dies stellt ein Problem für eine Winkelkalibration mit Polaroid-Filmen dar, die ungefähr $D = 1$ m hinter der Probe vertikal angebracht werden. Es wird auf demselben Film sowohl der direkte als auch der unter einem nominellen Winkel ϑ_1 reflektierte Strahl festgehalten. Der Abstand d der beiden Strahlen auf dem Photo ergibt dann nach $2\vartheta_1 = \arctan(d/D)$ den tatsächlichen Einfallswinkel [Stanglmeier 1990]. Dieses Verfahren benötigt aufgrund der Filmempfindlichkeit Einfallswinkel im Bereich der Totalreflexion. Dort ist aber ein großer Teil einer gekrümmten Probe ausgeleuchtet. Die zugehörige Strahlaufweitung läßt den Reflex zum Teil sehr unscharf werden, was eine präzise Winkelbestimmung erschwert. Im allgemeinen benötigt eine Winkelkalibration mit Photodioden bei Einfallswinkeln oberhalb des kritischen Winkels deutlich weniger Zeit als die konventionelle Methode mittels Photos, die nur noch verwendet wurde, um die ρ -Verkipfung zu kontrollieren bzw. um eine Vorstellung von der allgemeinen Güte der Probenoberfläche zu bekommen (Inhomogenitäten im Reflex).

4.3 Arten der Messung

Die in den vorigen Abschnitten beschriebene Apparatur erlaubt winkeldispersive Messungen spekulärer und nicht-spekulärer Reflektivitäten sowohl unter streifenden Ein- und Ausfallswinkeln als auch im Großwinkelbereich. Außerdem ist Absorptionsspektroskopie in Transmission und unter streifendem Einfall möglich. Die im Rahmen dieser Arbeit benutzten Meßmodi werden im folgenden kurz erläutert. Der Detektorwinkel ϑ'_1 wird dabei als Streuwinkel auf den einfallenden Strahl bezogen.

4.3.1 Spiegelnde Reflektivität bei streifendem Einfall

Da in diesem Meßmodus der Einfallswinkel ϑ_1 gleich dem Ausfallswinkel ist, müssen die Goniometerkreise ϑ_1 und ϑ'_1 gemäß der Beziehung $\vartheta'_1 = 2\vartheta_1$ verfahren werden. Die Reflektivität ergibt sich bis auf einen Normierungsfaktor aus dem Quotienten der vom Detektor I_2 registrierten und der einfallenden Intensität (Referenzkammer I_1 in Abb. 4.1) :

$$R(\vartheta_1) = N_R \frac{I_2(\vartheta_1)}{I_1} . \quad (4.3)$$

Der Normierungsfaktor N_R trägt den unterschiedlichen Nachweiswahrscheinlichkeiten der Detektoren sowie der Absorption in Luft Rechnung. Er kann auf verschiedene Weise bestimmt werden. Der direkte Weg besteht darin, die Probe aus dem Strahl zu fahren und das Intensitätsverhältnis I_1/I_2 als Normierungsfaktor zu verwenden. Diese Messung kann mit der Probenjustage verbunden werden (s. Abschnitt 4.2). Eine Alternative hierzu ist die Extrapolation der unnormierten Reflexionskurve auf $\vartheta_1 = 0$, da unabhängig von der Probenrauhigkeit dort $R = 1$ gilt. Die so bestimmten Normierungsfaktoren unterscheiden sich typischerweise nur um 1 %, wenn die Extrapolation keine Schwierigkeiten bereitet; im Falle starker Absorption ist jedoch die erste Methode vorzuziehen.

4.3.2 Diffuse Streuung bei streifendem Einfall

Messungen der diffusen Streuung unter streifendem Einfall werden bei konstanten Photonenenergien durchgeführt. Das Schlitzsystem 4 ist dabei typischerweise vertikal 75 μm und horizontal maximal (24 mm) weit geöffnet. Die vertikale Öffnung erlaubt eine gute Auflösung bei noch vertretbaren Zählraten, während die horizontale Öffnung einer Integration der aus der Einfallsebene heraus gestreuten Intensität mit einem Schlitzdetektor entspricht. Ein Wert von 24 mm reicht bei einem 12 mm breiten Strahl dazu nach Rechnungen von Weber [1992] völlig aus.

Als diffus gestreute Intensität wird definiert

$$I_{\text{diff}}(\vartheta_1, \vartheta'_1) = N_R \frac{I_2(\vartheta_1, \vartheta'_1)}{I_1} \quad , \quad (4.4)$$

wobei N_R der aus den Reflexionsmessungen bekannte Umrechnungsfaktor ist (s. Abschnitt 4.1.4).

Diffuse Streuung kann mittels verschiedener Scantypen gemessen werden. Im Meßmodus $\vartheta_1 = \text{const.}$ wird ϑ'_1 zwischen ϑ_1 und einem beliebigen Maximalwert verfahren; beim Modus $\vartheta'_1 = \text{const.}$ wird ϑ_1 zwischen 0 und ϑ'_1 bewegt (die Beschränkungen sind auf die Abschattung des einfallenden bzw. reflektierten Strahls durch die Probe zurückzuführen). Außerdem gibt es noch sogenannte Offset-Scans, die gemäß der Beziehung $\vartheta'_1 = 2\vartheta_1 + \text{const.}$ ausgeführt werden.

Für den Meßmodus $\vartheta_1 = \text{const.}$ existiert im Steuerprogramm ein eigenes Menü; die beiden anderen Meßmodi können mit dem Menü für Reflexionsmessungen durchgeführt werden, in welchem die funktionale Abhängigkeit des Streuwinkels ϑ'_1 vom Einfallswinkel ϑ_1 frei vorgebar ist.

Den verschiedenen Scantypen entsprechen sehr unterschiedliche Wege durch den reziproken Raum, wie Abb. 4.5 zeigt. Die Umrechnung in Streuvektor-Komponenten erfolgt gemäß

$$\begin{aligned} Q_{\perp} &= 2k \sin\left(\frac{\vartheta'_1}{2}\right) \cos\left(\frac{\vartheta'_1}{2} - \vartheta_1\right) \\ Q_{\parallel} &= 2k \sin\left(\frac{\vartheta'_1}{2}\right) \sin\left(\frac{\vartheta'_1}{2} - \vartheta_1\right) \end{aligned} \quad . \quad (4.5)$$

Der Meßmodus $\vartheta'_1 = \text{const.}$ zeichnet sich durch einen praktisch konstanten Impulsübertrag senkrecht zur Oberfläche aus, während im Meßmodus $\vartheta_1 = \text{const.}$ auch bei kleinen Einfallswinkeln relativ große parallele Streuvektor-Komponenten erreicht werden können. Die Offset-Scans verbleiben in der Nähe der spekularen Reflexionskurve und spiegeln deren Übergang in den diffusen Untergrund wider.

4.3.3 Beugung

Beugungsmessungen unterscheiden sich von den bisher betrachteten Reflektivitätsmessungen meßtechnisch nur durch die wesentlich größeren Einfalls- und Streuwinkel und werden daher mit demselben Menü des Steuerprogrammes durchgeführt. Dabei erweist es sich bei der Messung asymmetrischer Braggreflexe von Schichtsystemen als vorteilhaft, daß die funktionelle Abhängigkeit des Streuwinkels ϑ'_1 vom Einfallswinkel ϑ_1 frei

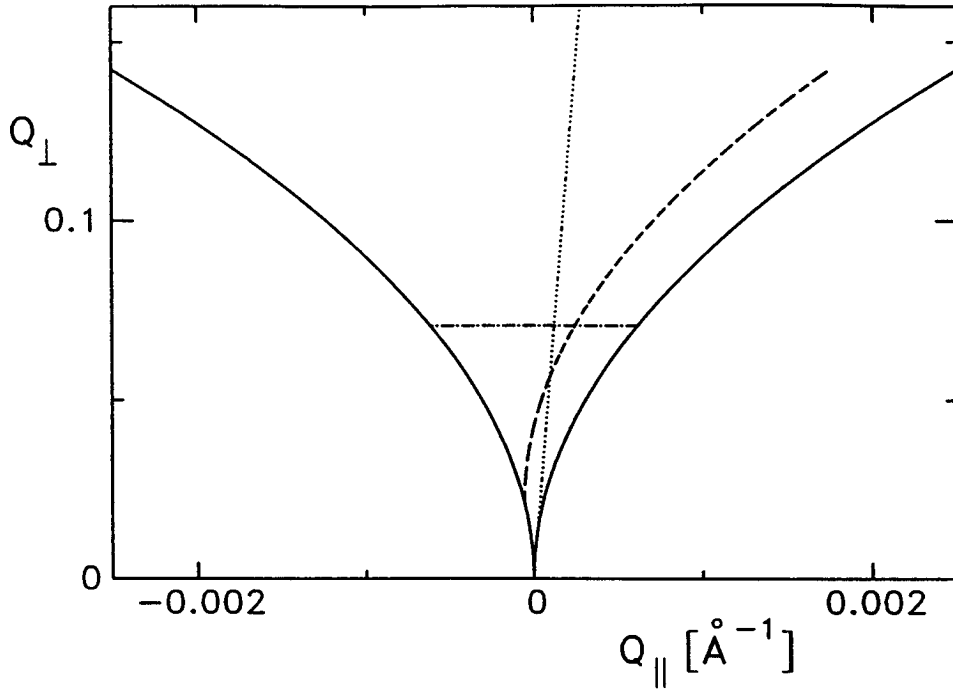


Abbildung 4.5: Repräsentation der verschiedenen Meßmodi für diffuse Streuung im reziproken Raum bei 8000 eV Photonenenergie : $\vartheta_1 = 0.3^\circ$ und $\vartheta'_1 = 0.3^\circ - 2^\circ$ (---), $\vartheta'_1 = 1^\circ$ und $\vartheta_1 = 0^\circ - 1^\circ$ (- · - · -) sowie $\vartheta'_1 = 2\vartheta_1 + 0.2^\circ$ (· · · · ·). Der Bereich unterhalb der durchgezogenen Linien ist experimentell nicht zugänglich (vgl. Abb. 3.6). Man beachte die unterschiedliche Skalierung für $Q_\perp$ und $Q_\parallel$.

vorgebar ist. Interessiert man sich für die vom Schichtsystem herrührenden Satelliten des Braggreflexes, die im reziproken Raum auf Geraden parallel zur $Q_\perp$ -Richtung (senkrecht zur Kristalloberfläche) liegen, sollten Einfalls- und Streuwinkel unter der Bedingung

$$\frac{\Delta\vartheta'_1}{\Delta\vartheta_1} = 1 + |b| \quad (4.6)$$

verfahren werden, um Scans entlang dieser Geraden durchzuführen. Der Asymmetriefaktor b ist definiert als das Verhältnis des jeweiligen Richtungskosinus (bezüglich der Oberflächennormalen) von einfallendem und reflektiertem Strahl. Für praktische Zwecke ist b approximativ gegeben durch

$$b = \frac{\sin(\vartheta_B - \varphi)}{\sin(\vartheta_B + \varphi)} \quad , \quad (4.7)$$

wobei ϑ_B der Braggwinkel aus Gl. (4.1) und φ der von der beugenden Netzebene mit der Oberfläche eingeschlossene Winkel ist. Insbesondere bei streifendem Ausfall kann b große Werte annehmen.

Falls die Blende vor dem Detektor I_2 groß genug ist, kann auch ein Mitfahren des Detektors im Verhältnis $\Delta\vartheta'_1/\Delta\vartheta_1 = 2 : 1$ ausreichen, um hinreichend viele Satelliten zu erfassen.

Bei Beugungsmessungen im HASYLAB waren jedoch vor dem Detektor I_2 stets zwei Schlitzsysteme angebracht (in Abb. 4.1 wird nur eines gezeigt), um den Untergrund mittels dieses Kollimators zu reduzieren.

4.3.4 Kantenstruktur u. EXAFS in Transmission

Absorptionsspektroskopie in Transmission wird mit einem anderen als dem in Abb. 4.2 dargestellten Probenhalter durchgeführt. Die zu untersuchenden Systeme werden als Metallfolien bzw. Pulverproben zwischen die Ionisationskammern I_1 und I_2 gebracht, um die Abhängigkeit des linearen Absorptionskoeffizienten μ von der Photonenenergie E direkt zu bestimmen. Nach Gl. (3.21) gilt

$$\mu(E) \cdot d = \ln \frac{I_1(E)}{I_2(E)} + N_T(E) \quad , \quad (4.8)$$

wobei d die Probendicke sowie N_T den Logarithmus des Normierungsfaktors für die von den Kammern nachgewiesenen Intensitäten bezeichnet.

Absorptionsmessungen an Proben unterschiedlicher Dicke und mit verschiedenen Detektoren können leicht verglichen werden, wenn sie einheitlich normiert sind. Nach Abzug eines linearen Untergrundes wird dazu $\mu \cdot d$ weit oberhalb der Absorptionskante auf eins normiert. Die unbekannten Größen d und N_T fallen dabei heraus. Für eine detaillierte Diskussion sei auf Lengeler [1987,1990] verwiesen.

4.3.5 Kantenstruktur u. EXAFS bei streifendem Einfall

Dieser Meßmodus stellt eine oberflächenempfindliche Variante der Absorptionsspektroskopie dar. Die Eindringtiefe der Röntgenstrahlen hängt vom Einfallswinkel ϑ_1 und der Photonenenergie E ab (s. Abschnitt 3.1.3). Mit der Energie kann auch ϑ_1 variiert werden, so daß während der Messung die Eindringtiefe konstant ist. Die Kantenstruktur bzw. EXAFS kann auf zwei Arten bestimmt werden :

Einerseits ist dazu die Fluoreszenzintensität

$$I_F(E) = N_F(E) \frac{I_4(E)}{I_1(E)} \quad (4.9)$$

geeignet. Sie ist definiert als die mit einem der Fluoreszenzdetektoren (I_4 in Abb. 4.1) gemessene Intensität, die auf die einfallende Intensität bezogen wird. N_F ist wiederum ein energieabhängiger Normierungsfaktor, mit dem unterschiedliche Nachweiswahrscheinlichkeiten sowie die Absorption in Luft berücksichtigt werden.

Andererseits kann völlig analog zu den Transmissionsmessungen mit dem Detektor I_2 die Absorption mit Hilfe des spiegelnd reflektierten Strahls registriert werden.

Die Meßkurven beider Nachweisverfahren werden wie im vorigen Abschnitt beschrieben normiert.

4.4 Auflösungsbetrachtungen

Der Doppelkristall-Monochromator weist die parallele, dispersionsfreie (1,-1)-Anordnung der Kristalle auf (s. Abschnitt 4.1.1). Aufgrund der sehr guten Kollimation der Synchrotronstrahlung wird der monochromatisierte Strahl innerhalb eines Winkelbereichs reflektiert, der in der Größenordnung der Reflexbreite liegt (Bogensekunden). Beispielsweise beträgt die Halbwertsbreite des GaAs(004)-Reflexes für 8048 eV-Photonen $\Delta\vartheta_{FWHM} = 8'' = 0.0022^\circ$. Der mit Si(111)-Monochromator-Kristallen gemessene Wert war $\Delta\vartheta_{FWHM} = 0.0057^\circ$. Die Messung von Reflexionskurven wird von solch kleinen Winkelverbreiterungen wie $\Delta\vartheta_1 = 0.0035^\circ$ nicht beeinträchtigt, sofern der Winkelabstand der Schichtdickenoszillationen deutlich darüber liegt, was bei den typischerweise vorkommenden Dicken (unter 2000 Å) der Fall ist (vgl. [Hüppauff 1993]). Weit gravierender können Verfälschungen sein, die stark gekrümmte Proben zusammen mit der Blende vor dem Detektor I_2 hervorrufen, wie im folgenden gezeigt wird.

Einerseits findet Reflexion unter einem ganzen Winkelintervall statt, wenn der Primärstrahl auf eine gekrümmte Probe fällt. Die Meßkurve stellt eine Überlagerung der unter diesen Einfallswinkeln reflektierten Intensitäten dar und kann daher verschmierte Oszillationen aufweisen.

Andererseits weiten gekrümmte Proben den Strahl in Abhängigkeit von ihrer Ausleuchtung auf (Abb. 4.6). Für einen parallelen Primärstrahl der Höhe h beträgt die Divergenz des reflektierten Strahls bei einem Probenradius R und einem mittleren Einfallswinkel ϑ_1

$$\Delta\theta' = \frac{2h}{R \sin \vartheta_1} \quad , \quad (4.10)$$

wie man leicht nachrechnen kann. Das Schlitzsystem vor dem Detektor I_2 kann dann unter Umständen einen Teil der reflektierten Intensität abschneiden, wenn die vertikale Öffnung der Blende (im folgenden mit b_2 bezeichnet) zu eng gewählt ist. Die gemess-

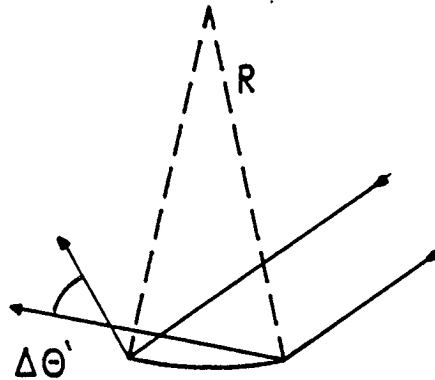


Abbildung 4.6: Eine gekrümmte Probe (Krümmungsradius R) weitet den reflektierten Strahl auf (Winkeldivergenz $\Delta\theta'$).

senen Intensitäten geben dann nur einen Teil der Reflektivität wieder, der von der Probenausleuchtung und somit vom Einfallswinkel abhängt.

Abb. 4.7 illustriert dies anhand der Reflektivität eines Übergitters (10 Perioden Si (200 Å) / Si_{0.8}Ge_{0.2} (120 Å) auf Si-Substrat) für 8048 eV-Photonen. Die Probe besitzt einen Krümmungsradius von 28 m, der mittels optischer Konturmessung bestimmt wurde (s. Abschnitt 5.2.7). Die Blende vor dem Detektor I_2 ist $r_0 = 410$ mm vom Goniometer-Drehzentrum entfernt, das mit der Probenmitte übereinstimmt. Die

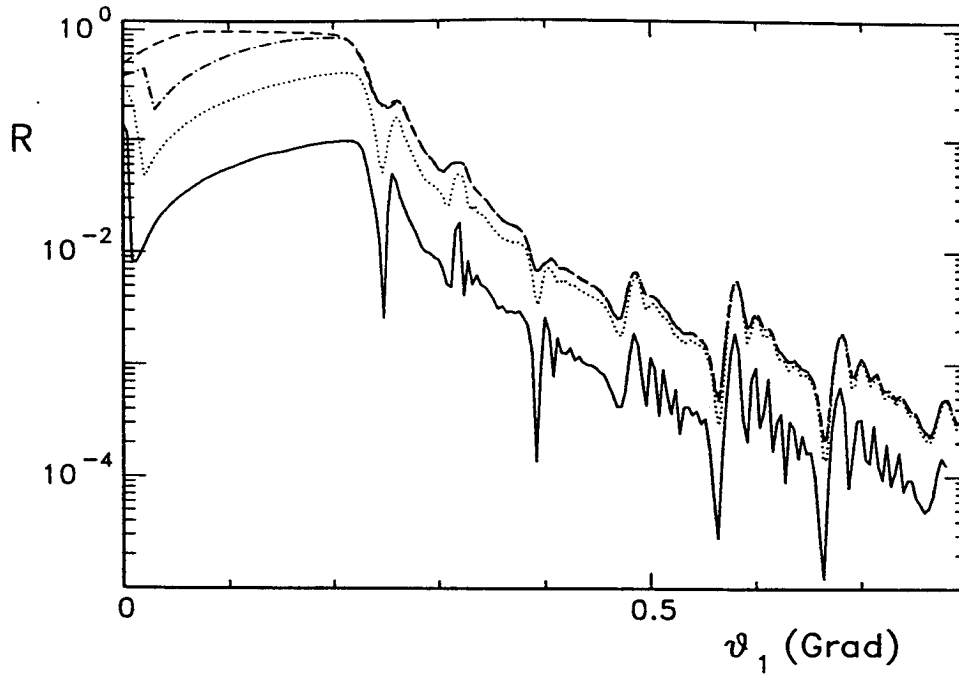


Abbildung 4.7: Reflektivitätsmessungen an einer stark gekrümmten Probe (im Text näher beschrieben) mit verschiedenen Blendenöffnungen vor dem Detektor I_2 : 5 mm (---), 600 μm (- · -), 250 μm (···) und 75 μm (—). Die gemessenen Intensitäten sind auf die einfallende Intensität normiert.

Messung mit der 5 mm-Öffnung vor dem Detektor zeigt als einzige ein Plateau der Totalreflexion. Dafür wird jedoch über ein Intervall $\Delta\vartheta_1 = \Delta\theta'/2$ von Einfallswinkeln integriert, so daß die stark strukturierte Reflexionskurve dementsprechend geglättet wiedergegeben wird. Eine Abschätzung zeigt, unterhalb eines welchen Einfallswinkels bei der Messung mit der 600 μm -Öffnung reflektierte Intensität abgeschnitten wurde. Der Ansatz $r_0 \Delta\theta' \cong b_2 = 600 \mu\text{m}$ ergibt eine Strahlaufweitung von $\Delta\theta' = 0.084^\circ$, die nach Gl. (4.10) bei einem Einfallswinkel von $\vartheta_1 = 0.21^\circ$ erreicht wird. Dies stimmt gut mit Abb. 4.7 überein. Bei größeren Einfallswinkeln lassen beide Blendeneinstellungen die gesamte reflektierte Intensität hindurch, so daß sich die zugehörigen Meßkurven nicht unterscheiden. Auch die Messung mit der 250 μm -Öffnung zeigt die sukzessive Ausblendung reflektierter Intensität zu kleinen Winkeln hin. Analog zu obiger Rechnung geht unterhalb einer Strahlaufweitung von $\Delta\theta' = 0.035^\circ$ bzw. eines Einfallswinkels von $\vartheta_1 = 0.50^\circ$ reflektierte Intensität verloren bei gleichzeitig besserer Auflösung, wie

Abb. 4.7 bestätigt. Einen Extremfall stellt die Messung mit der 75 μm -Öffnung dar, die einer Winkelauflösung von $\Delta\vartheta_1 = 0.005^\circ$ entspricht. Sie verdeutlicht, daß die gut aufgelöste Struktur der Reflexionskurve mit einem winkelabhängigen Verlust an reflektierter Intensität erkauft wird, um den korrigiert werden muß, wenn die Kurve durch die Simulation von Fresnel-Reflektivitäten ausgewertet werden soll. Dabei müssen jedoch Zusatzannahmen wie z.B. die gleichmäßige Krümmung der Probe gemacht werden.

Die obigen Messungen belegen, daß diese Effekte die Auflösung bei Reflexionsmessungen dominieren können. Aufgrund dieser Probleme wurde daher vorzugsweise die Blende vor Detektor I_2 so weit geöffnet, daß keine Intensität verloren ging. Zur Messung wurden - soweit möglich - nur Proben mit einem großen Krümmungsradius verwendet.

Diffuse Streuung unter streifendem Einfall wird aus Auflösungsgründen mit einer engen Blende vor dem Detektor I_2 gemessen. Für die Beziehung zwischen dem theoretischen Reflexionsvermögen R_{diff} und der über den Öffnungswinkel integrierten diffus gestreuten Intensität gilt nach Rechnungen von Weber [1992], falls die Schlitzsysteme Nr. 2 und 4 identische Öffnungen besitzen :

$$I_{\text{diff}}(\vartheta_1, \vartheta'_1) \cong R_{\text{diff}}(\vartheta_1, \vartheta'_1) \frac{b_2}{r_0} \quad . \quad (4.11)$$

Dabei ist wie oben b_2 die vertikale Öffnung der Detektorblende und r_0 der Abstand dieser Blende zum Drehzentrum des Goniometers.

Kapitel 5

Proben

5.1 Beschreibung der Proben

Die im Rahmen dieser Arbeit untersuchten epitaktischen GaAs/Al_xGa_{1-x}As-Schichtsysteme werden in Tabelle 5.1 bzw. Abb. 5.1 näher beschrieben. Sie enthalten zwei Heteroübergänge und sind mittels Molekularstrahl-Epitaxie (s. Abschnitt 2.3) in einer rechnergesteuerten Apparatur der Firma Varian (Typ MBE-Modular Gen. II) im Institut für Schicht- und Ionentechnik des Forschungszentrums Jülich hergestellt worden.

Es wurden (001)-orientierte, semi-isolierende GaAs-Substrat-Wafer mit einem Durchmesser von 2 Zoll und einer Dicke von 0.4 mm verwendet. Nach einer naßchemischen Vorreinigung wurden die Wafer zunächst im Vakuum ausgeheizt, um leicht flüchtige Verunreinigungen zu entfernen. Das Oxid wurde sodann thermisch desorbiert, bis die rekonstruierte GaAs-Oberfläche anhand eines deutlichen (2x4)-RHEED-Musters nachweisbar war ¹. Bei einer Substrattemperatur von 600°C wurde daraufhin bei allen Proben ein GaAs-Puffer von 0.5 µm Dicke aufgebracht. Der As₄-Strahläquivalentdruck betrug stets $2.7 \cdot 10^{-3}$ Pa. Während der Epitaxie lag das V/III-Flußverhältnis (gemessen als Verhältnis der Strahläquivalentdrücke) für die Probe A bei 30 und für die restlichen Proben bei 39 (vgl. Abb. 2.4). Es wurde nicht dotiert.

Probe A wurde mit Wachstumsraten von 0.82 µm/h (GaAs) bzw. 0.32 µm/h (AlAs) hergestellt. Die geringere Wachstumsrate für AlAs sollte der Tendenz zur Aufrauung entgegenwirken, die mit der langsameren Oberflächendiffusion der Al-Atome verbunden ist. Ebenfalls der Glättung dienten Wachstumsstopps von 60 Sekunden Dauer an der normalen und invertierten Grenzfläche. Die Wachstumsrate des AlGaAs (Proben B bis E) lag bei 0.64 µm/h. Bei diesen Proben wurde an der invertierten Grenzfläche ein Wachstumsstopp (90 Sekunden) durchgeführt. Die Kalibration der Wachstumsraten erfolgte über RHEED-Messungen. Die Temperaturen der Effusionszellen, die beim Wachstum ternären Materials dessen Zusammensetzung bestimmen (Proben B bis E), hielten Eurotherm-PID-Regler mit einer Genauigkeit von $\pm 0.1^\circ\text{C}$ konstant. Die in Tabelle 5.1 angegebenen Werte für die Schichtdicken und den Al-Gehalt stellen insbesondere für die Proben B, D und E lediglich nominelle Werte dar, die entsprechend dem Wachstum bei Standardtemperatur (635°C) berechnet wurden. Mögliche

¹Für Details sei auf Kubon [1991] verwiesen.

Invertierte Grenzfläche	GaAs	d_1
	$\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$	d_2
Normale Grenzfläche	GaAs-Puffer	$0.5\ \mu\text{m}$
	GaAs (001) – Substrat	

Abbildung 5.1: Schematischer Aufbau der untersuchten Heterostrukturen. Die einzelnen Schichtdicken d_1 und d_2 sowie der Al-Gehalt x sind der nachfolgenden Tabelle zu entnehmen.

Probe	d_1 [Å]	d_2 [Å]	x	Substrat-Temperatur [°C]	Hersteller-Bezeichnung
A	600	200	1	635	3012
B	87	930	0.63	605	3030
C	87	930	0.63	635	3031
D	87	930	0.63	660	3032
E	87	930	0.63	685	3033

Tabelle 5.1: Herstellungsparameter und nominelle Struktur der einzelnen Proben.

Änderungen der Wachstumsbedingungen bei Veränderung der Substrattemperatur wurden dabei nicht berücksichtigt. Die Bestimmung der Wachstumstemperaturen erfolgte mit Hilfe eines Thermoelementes, das mittels eines Ircon-Strahlungspyrometers kalibriert worden war. Der maximale Temperaturfehler beträgt etwa 10°C.

Nach Beendigung der Epitaxie kühlten die Proben unter As-Partialdruck bis zu einer Temperatur von 400°C ab. Die weitere Abkühlung auf Raumtemperatur erfolgte ohne As-Stabilisierung. Die Proben wurden zur weiteren Untersuchung erst nach den Röntgenmessungen gespalten, um Beschädigungen, Verspannungen etc. zu vermeiden.

5.2 Charakterisierung der Proben mit anderen Methoden

Um den Einfluß systematischer Fehler abschätzen zu können, wurden die Proben auch mit Methoden charakterisiert, die nicht auf der Streuung harter Röntgenstrahlen beruhen. Im folgenden werden die Aussagen der einzelnen Methoden zur Realstruktur der Proben lediglich zusammengestellt; eine vergleichende Diskussion ist im nächsten Kapitel zu finden.

5.2.1 Transmissionselektronenmikroskopie

Die Rauigkeit innerer Grenzflächen kann mittels hochauflösender Transmissionselektronenmikroskopie (HRTEM) bestimmt werden. Dabei kommt es auf eine Abbildung des Gitters mit *chemischer Selektivität* an, um in einem epitaktischen System den Übergang vom GaAs zum AlGaAs zu erfassen. Aufgrund des damit verbundenen hohen Aufwands wurde dies nur für die normale Grenzfläche der Probe C (s. Abb. 5.1) durchgeführt.

Diese Methode ("chemical lattice imaging" [Ourmazd et al. 1990]) basiert - anders als die konventionelle Hell- oder Dunkelfeldabbildung - auf einem Interferenzkontrast. Die hohe räumliche Auflösung wird erreicht, indem auch solche abgelenkten Strahlen zur Kontrastentstehung beitragen, die Information über atomare Abstände enthalten. Eine Bildsimulation ist für die Auswertung unerlässlich, da alle Amplituden und Phasen des angeregten Vielstrahlfalls sowie die Übertragungsfunktion des Mikroskops zu berücksichtigen sind. Die chemische Empfindlichkeit ist nur für spezielle Abbildungsbedingungen gegeben, die durch Bildsimulation ermittelt werden müssen. Beispielsweise sind zur Abbildung der AlAs/GaAs-Grenzfläche in einer (100)-Querschnittsebene Defokuswerte zwischen -150 und -300 Å bei Probendicken zwischen 70 und 140 Å erforderlich [Walther 1993]. Unter diesen Bedingungen erscheinen Intensitätsmaxima für AlAs an den Orten der Al-Atomsäulen und für GaAs an den Orten *aller* Atomsäulen.

Es wurde eine (100)-Querschnittsprobe präpariert, indem zwei Probenstücke aus der Wafermitte mit einander zugewandten epitaxierten Seiten zu einem Paket zusammengeklebt wurden. Nach einer mechanischen Abdünnung wurde die Probe schließlich in einer Ionendünnungsanlage mit Ar⁺-Ionen bis zur Perforation beschossen. Die so erhaltenen, wenige nm dicken Lochränder konnten dann durchstrahlt werden. Dazu wurde ein Elektronenmikroskop JEOL 4000 EX mit 400 kV Beschleunigungsspannung verwendet.

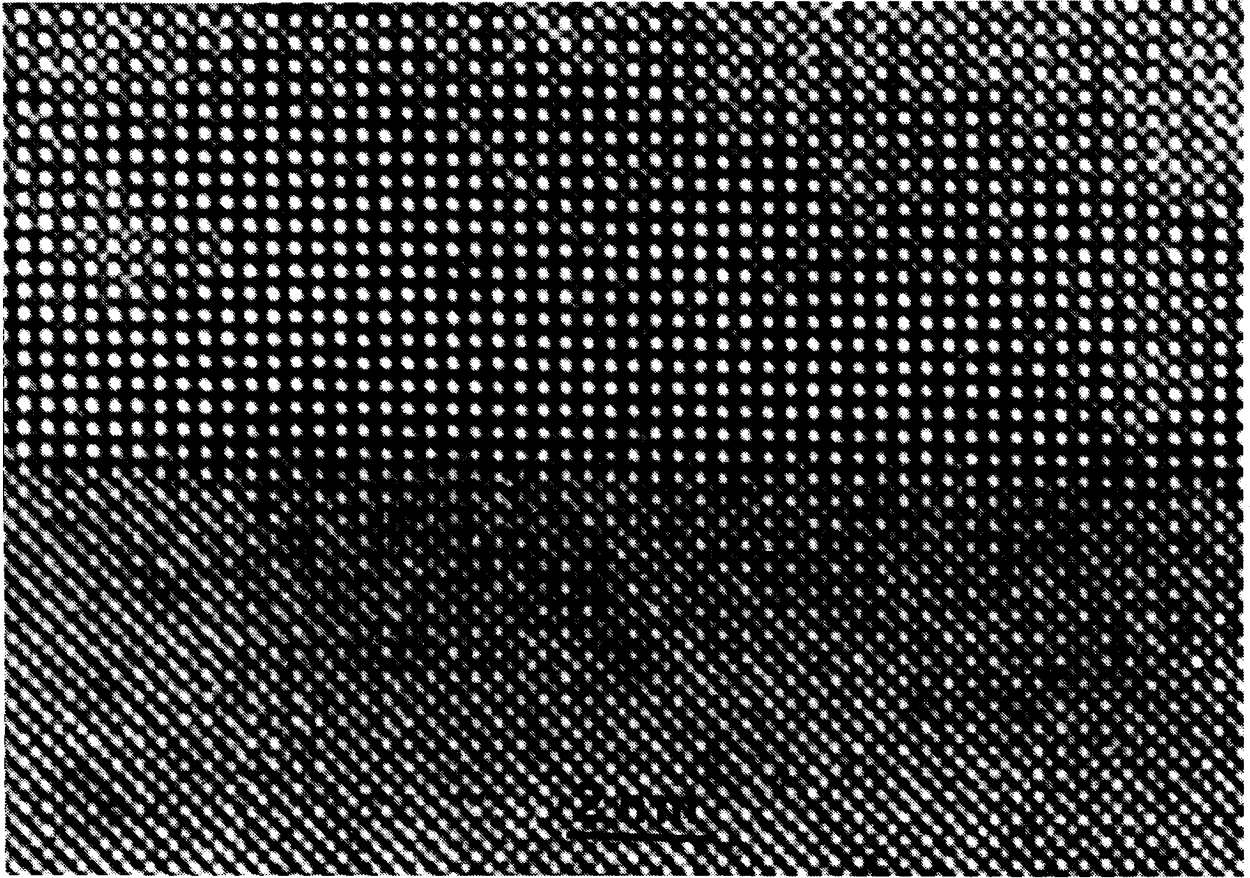


Abbildung 5.2: Hochauflösende TEM-Aufnahme der normalen Grenzfläche von Probe C. Es wurde eine (100)-Querschnittsebene präpariert; die Wachstumsrichtung zeigt von unten (GaAs) nach oben (AlGaAs).

In Abb. 5.2 wird die hohe kristalline Perfektion der Grenzfläche deutlich. Sie ist jedoch nicht atomar scharf, sondern weist eine - durch Interdiffusion bedingte - Übergangsbreite von ungefähr 2 Monolagen auf. Da die Helligkeit der GaAs-typischen Maxima (s.o.) an der Grenzfläche variiert, kann geschlossen werden, daß innerhalb der zugehörigen Atomsäulen der Anteil von Ga und Al fluktuiert.

Zur quantitativen Bestimmung der Übergangsbreiten wurde ein Ausschnitt des photographischen Negativs mit einer CCD-Kamera aufgenommen und digitalisiert. Die Fouriertransformation lokaler Bildeinheitenzellen ermöglicht die Zuordnung eines lokalen Al-Gehaltes. In dem hier vorliegenden Fall eines (100)-Querschnitts besteht sogar ein weitgehend linearer Zusammenhang zwischen der Zusammensetzung x des $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ und der Amplitude der (200)- und (020)-Bildfrequenzen. Referenzwerte der Amplituden werden weit weg von der Grenzfläche durch Mittelung über 100 bis 200 Bildeinheitenzellen bestimmt. Für eine ausführliche Diskussion des Analyseverfahrens sei auf Walther [1993] verwiesen.

Abb. 5.3 zeigt eine Grauwertdarstellung der Konzentrationsfluktuationen an der Grenzfläche. Für jede parallel zur Grenzfläche liegenden Monolagen wurde sodann ein mittlerer Al-Gehalt bestimmt. Als Übergangsbreite der Grenzfläche wurde diejenige Länge

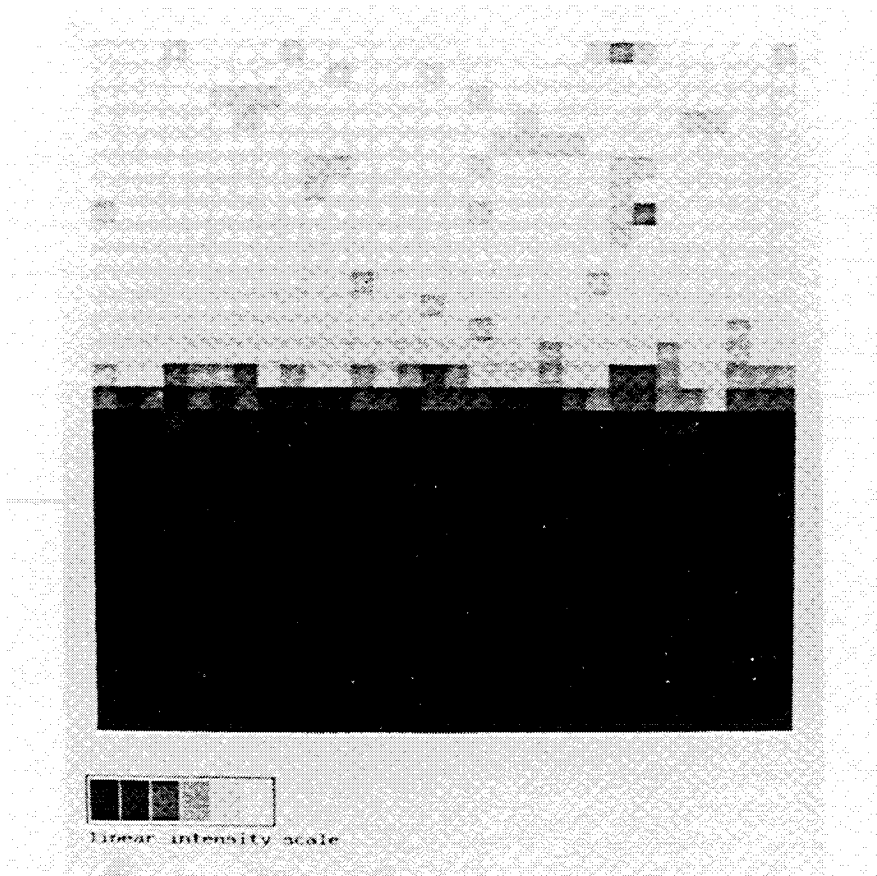


Abbildung 5.3: Quantitative Kompositionsanalyse der hochauflösenden TEM-Aufnahme nach Digitalisierung und Fouriertransformation. Der lokale Al-Gehalt der Bildeinheitellen (Kantenlänge $2.83 \text{ \AA}$) wird durch eine sechsstufige lineare Grauwertskala dargestellt. Maximum und Minimum der Skala entsprechen den Kompositionen weit weg von der Grenzfläche.

definiert, auf welcher der Anstieg des mittleren Al-Gehaltes von $1/6$ auf $5/6$ der gesamten Änderung zwischen den Referenzwerten erfolgt. Die so bestimmte Übergangsbreite der normalen Grenzfläche beträgt 2.3 ± 0.2 Monolagen.

Mit der hochauflösenden TEM ließ sich auch das die Probe bedeckende Oxid abbilden ². Bei der Probenpräparation werden Teilstücke des Wafers aneinandergeklebt (s.o.). Abb. 5.4 zeigt eine Aufnahme aus diesem Bereich : ganz oben befindet sich der amorphe Klebstoff (Araldit), darunter ist eine ca. $20 \text{ \AA}$ dicke amorphe Schicht zu sehen, welche einen anderen Kontrast aufweist. Erst darunter beginnt der kristalline Probenbereich, der zugleich einen Längenmaßstab liefert. Beide Grenzflächen des Oxids sind rau (die Übergangsbreiten entsprechen mehreren Monolagen GaAs) und auf der Längenskala des Bildes (zwischen 10 und $100 \text{ \AA}$) gewellt.

²Dabei handelt es sich nicht um die bei der Probenpräparation entstehende Oxidschicht. Letztere bedeckt die dargestellte Querschnittsebene und führt in den Abb. 5.2 und 5.3 zu lokalen Kontrastschwankungen.

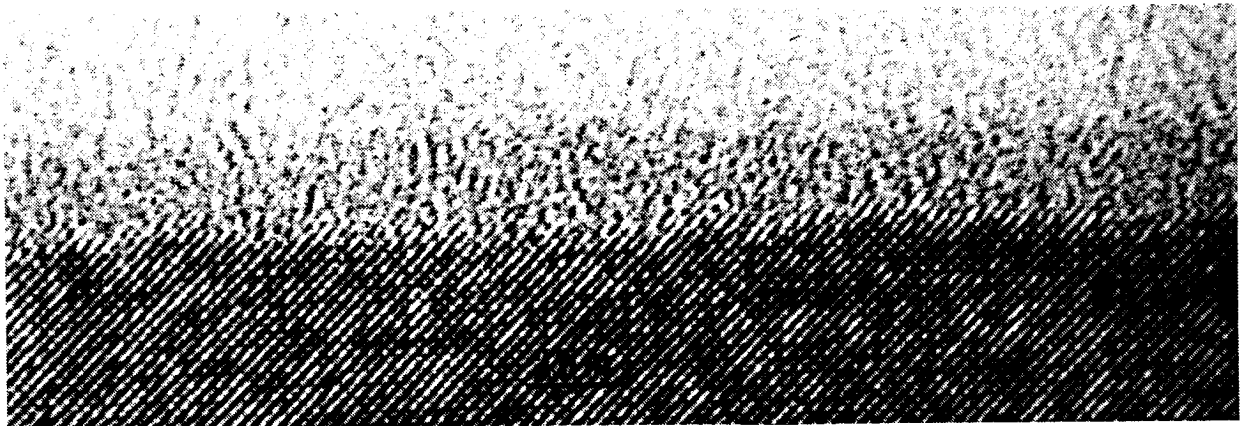


Abbildung 5.4: Hochauflösende TEM-Aufnahme des Deckschichtbereiches von Probe C. Zwischen dem kristallinen GaAs (unten) und dem amorphen Kleber (aus der Probenpräparation, oben) befindet sich noch eine ca. 20 Å dicke amorphe Oxidschicht.

5.2.2 Rasterkraftmikroskopie

Die Oberfläche der Proben B bis E wurde mit einem Rasterkraftmikroskop untersucht. Mit einem solchen Mikroskop werden Oberflächen wie bei der Tunnelmikroskopie abgerastert; da jedoch statt des Tunnelstroms die Kraft zwischen einer Spitze und der Oberfläche gemessen wird, können auch nichtleitende Oberflächen untersucht werden. Die Spitze, die an dem freien Ende einer Biegefeder befestigt ist, wird mittels Piezo-Stellgliedern über die Probe hinweggeführt. Dabei führen die zwischen der Spitze und der Probe wirkenden Kräfte zu einer Auslenkung der Biegefeder, welche im sogenannten Kontaktmodus die eigentliche Meßgröße darstellt.

Die folgenden Bilder sind in diesem Modus entstanden. In dieser Betriebsart wird die Spitze so nah an die Oberfläche gebracht, daß sich die Elektronenwolken der Atome der Spitze und der Probe bereits zu überlappen beginnen, so daß eine dominierende abstoßende Kraft resultiert. Über einen Regelkreis wird die Entfernung zwischen Probe und Spitze so eingestellt, daß die Auslenkung der Biegefeder konstant bleibt. Den Bewegungen der Spitze entspricht also eine Fläche konstanter Kraft, die die Oberflächen-topographie wiedergibt. Verfälschungen können dabei durch den Verrundungsradius der Spitze entstehen, der bei den Experimenten ungefähr 500 Å betrug. Die Auslenkung der Biegefeder wurde optisch mit Hilfe eines Glasfaserinterferometers gemessen. Das Meßprinzip und der experimentelle Aufbau werden ausführlich von Schneider [1992] diskutiert.

Die Abb. 5.5 bis 5.8 zeigen einen repräsentativen $1.25\ \mu\text{m} \times 1.25\ \mu\text{m}$ großen Ausschnitt aus der Mitte der Probe. Die Höhen werden in eine Grauwertdarstellung umgewandelt (großes Bild); ein Schnitt entlang des hellen Striches wird als Höhenkontur rechts oben gezeigt. Die makroskopische Verkippung der Probe überlagert der Kontur einen linearen Trend. Die Skalierung der vertikalen Achse des Höhenkonturbildes ist

unten angegeben (bei Abb. 5.5 beispielsweise 7 nm). Der horizontale Bildausschnitt entspricht der Länge des Striches auf der Topographie bis zum Mittelpunkt des Kreuzes.

Abb. 5.5 zeigt die Oberfläche der Probe B. Auffällig sind die anisotropen (ovalen) Hügel, die im wesentlichen parallel angeordnet sind. Ihre Länge liegt typischerweise bei $0.5\ \mu\text{m}$ mit einer um einen Faktor 10 kleineren Ausdehnung in der dazu senkrechten Richtung. Die Höhen der Hügel liegen deutlich unter $10\ \text{\AA}$. Aus dem Bild folgt eine Dichte der Hügel in der Größenordnung von $10^9/\text{cm}^2$.

Ein ähnliches Bild bietet Probe C (Abb. 5.6). Auch hier treten wieder weitgehend parallel ausgerichtete anisotrope Hügel mit einer vergleichbaren Höhe auf. Die Anisotropie ist jedoch unterschiedlich stark ausgeprägt. Die Längenabmessungen sind deutlich verkleinert, und die Dichte der Hügel hat zugenommen.

Ein gänzlich anderes Bild liefert Probe D (Abb. 5.7). Die Oberfläche weist zahlreiche Löcher auf, die relativ tief in die Probe hineinreichen. Die Höhenkontur zeigt ein $50\ \text{\AA}$ tiefes Loch mit einem Durchmesser von ca. $500\ \text{\AA}$. Da dieser Wert mit dem Verrundungsradius der Spitze vergleichbar ist, handelt es sich wahrscheinlich um ein apparativ verfälschtes Bild eines noch tieferen Loches. Auf der Abbildung sind viele Löcher unterschiedlicher Größe und Form erkennbar. Die Dichte der Löcher kann daraus zu ungefähr $10^9 - 10^{10}/\text{cm}^2$ abgeschätzt werden. Hügel sind nicht mehr zu erkennen.

Abb. 5.8 zeigt die Oberfläche der Probe E. Auch hier treten Löcher auf, jedoch ist im Vergleich zu Probe D ihre Dichte etwa um eine Größenordnung reduziert. Die in den Höhenkonturen dargestellten Löcher besitzen jedoch vergleichbare Tiefe. Der Durchmesser der Löcher ist deutlich kleiner geworden. Es sind auch Hügel zu sehen, deren Form und Verteilung an die Strukturen auf Probe B erinnert.

Zusammenfassend läßt sich feststellen, daß die Oberflächenstrukturen in zwei Klassen eingeteilt werden können. Die Proben B und C zeigen im wesentlichen Hügel mit einer Höhe unter $10\ \text{\AA}$, während die Proben D und E Löcher in der Oberfläche aufweisen, die mindestens $50\ \text{\AA}$ tief sind. Die glattesten Oberflächen sind den Proben B und C zuzuordnen, die rauheste Oberfläche besitzt die Probe D.

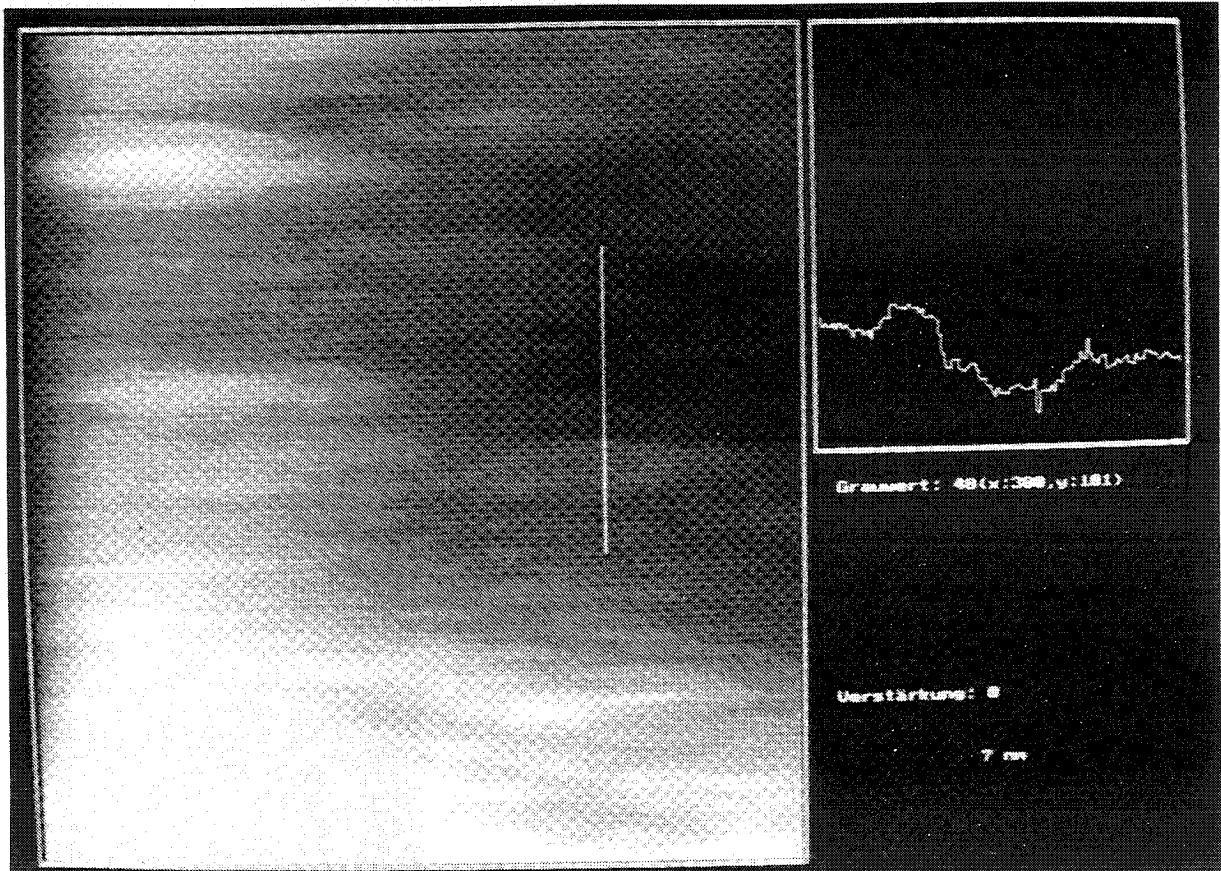


Abbildung 5.5: Mit einem Rasterkraftmikroskop abgebildete Oberflächenstruktur der Probe B. Der Bildausschnitt beträgt $1.25 \mu\text{m} \times 1.25 \mu\text{m}$.

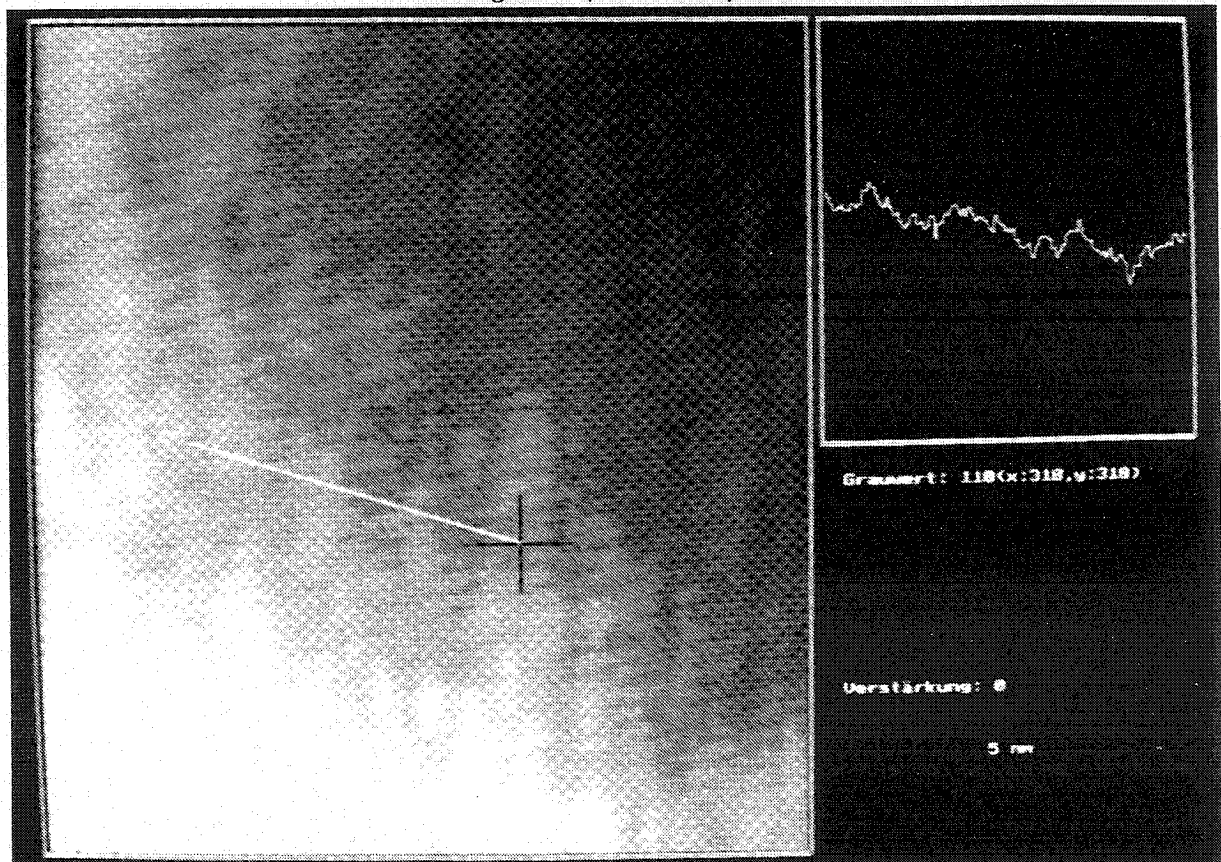


Abbildung 5.6: Oberflächenstruktur der Probe C.

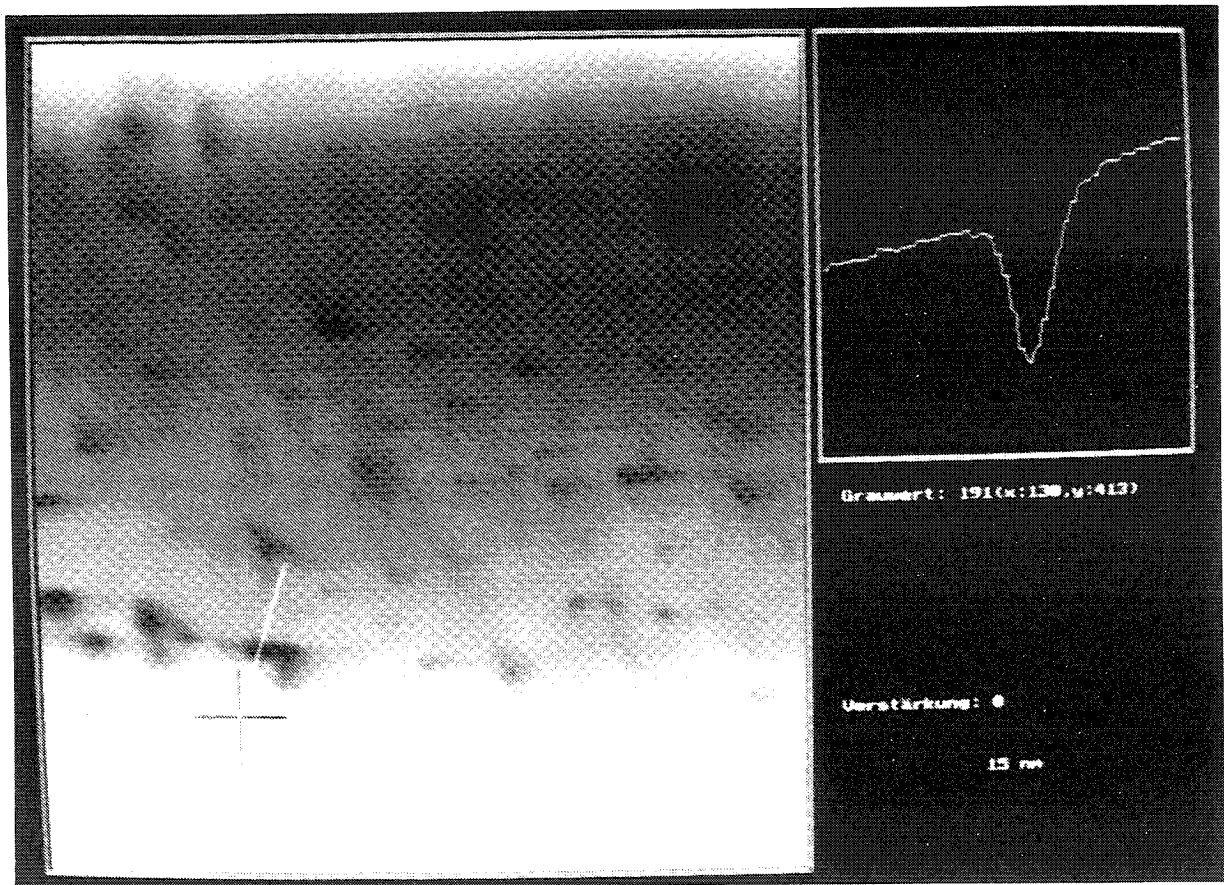


Abbildung 5.7: Oberflächenstruktur der Probe D.

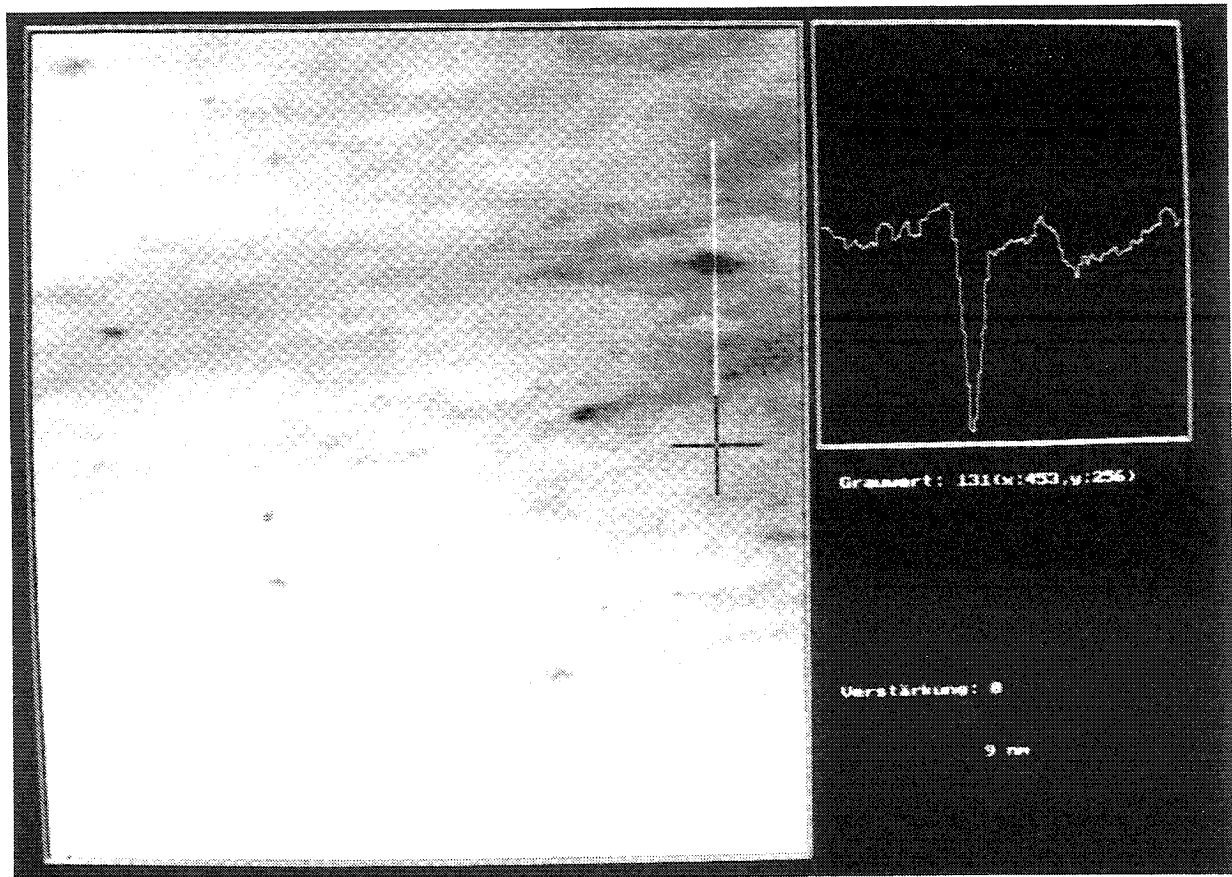


Abbildung 5.8: Oberflächenstruktur der Probe E.

5.2.3 Rutherford-Rückstreuung

Alle Proben wurden im Institut für Schicht- und Ionentechnik mit Rutherford-Rückstreuung (RBS) untersucht. Bei dieser Methode werden hochenergetische Ionen auf die Probe geschossen und die Energieverteilung der rückgestreuten Ionen gemessen. Die in die Probe eintretenden Ionen werden sowohl durch elastische Stöße mit den Atomkernen als auch durch inelastische Stöße mit den Elektronen abgebremst. Mit Hilfe dieser Stöße können Informationen über die im Probenmaterial vorhandenen Elemente und deren Tiefenverteilung gewonnen werden. Elastische Stöße geben Aufschluß über die chemische Zusammensetzung, da die Energie eines rückgestreuten Ions von der Masse des Stoßpartners abhängt. Die inelastischen, statistischen Abbremsprozesse entlang des Ein- und Austrittsweges der Ionen führen zu einem kontinuierlichen dickenabhängigen Energieverlust, der spezifisch für das jeweilige Material ist. Dadurch kann die Tiefe bestimmt werden, in der sich das rückstreuende Atom befindet.

In den Experimenten wurden auf 2 MeV beschleunigte He^+ -Ionen verwendet, deren Energieverteilung von einem Si-Sperrschichtzähler registriert wurde. Die Auswertung der Spektren erfolgte über das Simulationsprogramm RUMP [Doolittle 1985]. Tabelle 5.2 zeigt die Ergebnisse. Die verwendeten Bremsquerschnitte basieren auf den Werten von Littmark und Ziegler [1980], die einen Fehler von 7 % angeben. Diese Werte scheinen jedoch z.T. zu hoch zu liegen; so wird beispielsweise für Si mittlerweile ein gegenüber dieser Referenz um 7 % reduzierter Wert verwendet ³. Bei den Simulationen wurden durchgehend für Ga und As um 9 % verminderte Bremsquerschnitte benutzt.

Die kristalline Qualität der Proben C und D wurde außerdem mit der Methode der Ionen-Gitterführung ("Channeling") untersucht. Während bei den zuvor angeführten Rückstreu-Experimenten die Probe willkürlich zum einfallenden Ionenstrahl orientiert war, wurde hier die Probe so ausgerichtet, daß der Ionenstrahl in [001]- bzw. [111]-Richtung einfiel. In diesen Richtungen existieren Kanäle, in denen die Ionen unter gewissen Voraussetzungen vom Gitterpotential geführt werden. Dadurch wird die Rückstreuintensität um so deutlicher reduziert, je höher die Perfektion des Einkristalls ist. Ein quantitatives Maß dafür ist das Verhältnis χ_{Min} der Intensität des Gitterführungs-Spektrums (in Oberflächennähe) zum Spektrum mit zufällig orientierter Probe. Für die Proben C und D ergab sich sowohl unter der [001]- als auch unter der [111]-Einschußrichtung ein χ_{Min} zwischen 4 und 5 %. Da perfekte Einkristalle ein χ_{Min} von wenigen Prozent aufweisen, sind die untersuchten Proben von sehr guter kristalliner Qualität. Die Spektren zeigten keine Hinweise auf strukturelle Unordnung an den Grenzflächen. Eine Oxidschicht war ebenfalls nicht nachweisbar.

5.2.4 Ellipsometrie

Die Proben B bis E wurden im Institut für Festkörperphysik der TU Berlin mittels Ellipsometrie strukturell charakterisiert. Für eine Beschreibung des Meßprinzips sowie des experimentellen Aufbaus sei auf Zettler et al. [1992] verwiesen. Die Modellierung der dielektrischen Funktion des $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ erfolgte ebenfalls gemäß dieser Referenz, die dabei verwendeten spektroskopischen Daten stammen von Aspnes et al. [1981,1986]. Die Resultate sind in Tabelle 5.3 zusammengestellt.

³K. Schmidt, private Mitteilung.

Probe	d_1 [Å]	d_2 [Å]	x
A	660	210	(1)
B	80	880	0.7
C	80	830	0.7
D	80	830	0.7
E	80	880	0.7

Tabelle 5.2: RBS-Analyse der Schichtdicken und des Al-Gehaltes x. Eine Abschätzung der statistischen und systematischen Fehler ergibt eine Genauigkeit von ± 10 % der angegebenen Werte. Bei Probe A wurden nur die Schichtdicken angepaßt. Die Spektren der Proben B und E bzw. der Proben C und D waren innerhalb der Meßgenauigkeit identisch.

Probe	d_{Oxid} [Å]	d_1 [Å]	d_2 [Å]	x
B	31 ± 2	62 ± 2	869 ± 4	0.66 ± 0.02
C	29 ± 2	53 ± 2	836 ± 4	0.68 ± 0.01
D	29 ± 2	55 ± 2	833 ± 4	0.69 ± 0.02
E	26 ± 2	48 ± 2	873 ± 4	0.70 ± 0.01

Tabelle 5.3: Ellipsometrisch bestimmte Schichtdicken und Al-Gehalte mit statistischem Auswertefehler.

5.2.5 Ramanspektroskopie

Die Proben B bis E wurden im Institut für Schicht- und Ionentechnik hinsichtlich ihres Al-Gehaltes mit Ramanspektroskopie untersucht. Bei dieser Methode fällt monochromatisches Licht auf die Probe, welches Phononen anregt. Analysiert wird das inelastisch zurückgestreute Licht.

Die Bestrahlung erfolgte mit Laserlicht der Wellenlänge $0.457\ \mu\text{m}$ (Eindringtiefe in GaAs ca. $500\ \text{\AA}$) in einer Streukonfiguration, in der longitudinal-optische Phononen angeregt werden. Die Streulicht-Analyse mittels eines Monochromators zeigte u.a. zwei energetisch verschobene Linien, die der Anregung GaAs-artiger und AlAs-artiger Schwingungsmoden in der AlGaAs-Schicht zugerechnet werden. Die Frequenz-Differenz dieser Linien ist unabhängig von der Kalibration des Spektrometers und der Proben temperatur und stellt ein empfindliches Maß für den Al-Gehalt der Schicht dar [Saint-Cricq et al. 1987]. Unter Verwendung dieser Referenz ergeben sich die folgenden Werte :

Probe	B	C	D	E
x	0.78 ± 0.02	0.80 ± 0.02	0.81 ± 0.02	0.78 ± 0.02

Tabelle 5.4: Mittels Ramanspektroskopie ermittelte Al-Gehalte mit statistischem Auswertefehler.

5.2.6 Photoemissionsspektroskopie

Zur Charakterisierung der Oxidschicht wurde die Probe D auch mit Photoemissionsspektroskopie untersucht. Bei dieser Methode werden durch elektromagnetische Strahlung der Energie E Photoelektronen ausgelöst, deren kinetische Energie E_{kin} mit Hilfe eines Analysators gemessen wird.

Aufgrund der Beziehung $E_{\text{kin}} = E - E_{\text{B}} - \phi$ (E_{B} : Bindungsenergie des ausgelösten Photoelektrons, ϕ : Austrittsarbeit des Festkörpers) können die (elementspezifischen) Bindungsenergien im Material bestimmt werden. Sogenannte chemische Verschiebungen der Bindungsenergien geben Aufschluß über den chemischen Zustand der untersuchten Atome. Die geringe Austrittstiefe der Photoelektronen macht die Methode oberflächenempfindlich.

Es wurden mit Mg K_{α} -Strahlung ($E = 1254\ \text{eV}$) die Ga 3d- bzw. As 3d-Rumpfniveaus sowie mit Al K_{α} -Strahlung ($E = 1487\ \text{eV}$) die jeweiligen 2p-Rumpfniveaus spektroskopiert. Die Informationstiefe entsprach ca. $26\ \text{\AA}$ (Mg K_{α}) bzw. $8\ \text{\AA}$ (Al K_{α}). Die Analyse der Daten ergab eine hauptsächlich aus Ga-Oxid bestehende Oxidschicht. Der genaue Oxidationszustand des Ga konnte nicht ermittelt werden. Es gab jedoch auch Hinweise auf As-Oxid. Vermutlich besteht es zu vergleichbaren Anteilen aus As_2O_3

und As_2O_5 und ist nicht homogen verteilt, sondern in der Nähe der Oberfläche zu finden. Der Anteil des As-Oxids in der Oxidschicht wurde auf ungefähr 20 % abgeschätzt. Unter der Annahme glatter Grenzflächen ergab sich eine Schichtdicke von ca. 10 Å.

5.2.7 Optische Konturmessung

Probenkrümmungen wurden mit einem optischen Konturmeßgerät (Rodenstock Laser Stylus RM 600) bestimmt. Bei diesem Gerät tastet ein senkrecht einfallender Infrarot-Laserstrahl (Leuchtfleckdurchmesser $2\text{ }\mu\text{m}$) die Oberfläche entlang einer geraden Linie ab. Mit Hilfe des reflektierten Strahls wird der Laserstrahl automatisch auf die Probenoberfläche fokussiert. Dies ermöglicht die Abbildung der Oberflächenkontur mit einer vertikalen Auflösung von 10 nm bei einer horizontalen Auflösung von $4\text{ }\mu\text{m}$.

Den in $[110]$ - und $[\bar{1}\bar{1}0]$ -Richtung ⁴ ausgemessenen Oberflächenkonturen wurden - soweit sinnvoll - Krümmungsradien angepaßt. Ein negativer Krümmungsradius bedeutet, daß der zugehörige Kreismittelpunkt auf der Substratseite des Schichtsystems liegt. Bei allen Proben waren dem mittleren Verlauf der Kontur typische Fluktuationen von $0.2\text{ }\mu\text{m}$ auf 3 mm horizontalem Weg überlagert. Die Proben A und E wiesen in $[\bar{1}\bar{1}0]$ -Richtung lediglich langwellige Modulationen von $1.5\text{ }\mu\text{m}$ Höhe auf 20 mm horizontalem Weg auf, so daß die Zuordnung eines Krümmungsradius nicht sinnvoll war. Tabelle 5.5 faßt die Resultate zusammen. Da für Reflexionsmessungen unter streifendem Einfall flache Proben von Vorteil sind (s. Abschnitt 4.4), wurden die Proben so orientiert, daß der Synchrotronstrahl in etwa parallel zur $[110]$ -Richtung einfiel. Bei einer exakten Ausrichtung können störende asymmetrische Braggreflexe angeregt werden.

Probe	A	B	C	D	E
$R_{[110]}\text{ [m]}$	68	132	486	166	65
$R_{[\bar{1}\bar{1}0]}\text{ [m]}$	—	-127	-82	-161	—

Tabelle 5.5: Optisch bestimmte Krümmungsradien der einzelnen Proben in $[110]$ - und $[\bar{1}\bar{1}0]$ -Richtung.

⁴Die $[110]$ -Richtung lag dabei parallel zum kurzen Flat des Wafers.

Kapitel 6

Auswertung der Röntgenstreuungsmessungen und Diskussion

6.1 Absorptionsspektroskopie

Der chemische Zustand der Probenoberfläche wurde mit Hilfe von Röntgenabsorptionsspektroskopie in Reflexion analysiert, um die Existenz einer Oxidschicht zu überprüfen und gegebenenfalls vorhandene natürliche Oxide chemisch zu identifizieren. Da selbst eine dünne Oxidschicht auf den epitaktischen Schichten die Reflektivität für Röntgenstrahlen unter streifendem Einfall merklich verändern kann (s. Abschnitt 6.3), dienten die Messungen auch dazu, in diesem Punkt für die Auswertung der Reflexionsmessungen Klarheit zu schaffen.

Falls der Einfallswinkel kleiner als der kritische Winkel ist, wird die Meßmethode oberflächenempfindlich (s. Abschnitt 4.3.5). Bei den vorliegenden Messungen betrug der Einfallswinkel stets 0.15° (Eindringtiefe in GaAs ca. 46 Å, vgl. Abb. 3.4). Die Energieskala wurde mit Hilfe von Referenzproben bekannter Zusammensetzung kalibriert, deren Absorption in Transmission gemessen wurde. Beim Vergleich von Reflexions- und Transmissionsmessungen in Form eines normierten Absorptionskoeffizienten ist zu berücksichtigen, daß in der unmittelbaren Umgebung der Kante die in Reflexion gemessenen Kantenstrukturen gegenüber den in Transmission gemessenen überhöht erscheinen.

Abb. 6.1 zeigt die normierten Absorptionskoeffizienten von GaAs, GaP, Ga_2O_3 und LaGaO_3 in der Nähe der Ga-K-Kante. Die unterschiedlichen Kantenstrukturen belegen die Empfindlichkeit der Methode auf die chemische und strukturelle Umgebung des absorbierenden Elementes (s. Abschnitt 3.1.2). Beispielsweise zeigt das Oxid Ga_2O_3 eine deutliche chemische Verschiebung der Kantenlage gegenüber GaAs und GaP. Substituiert man ein Ga-Atom des Oxids durch ein La-Atom, bleibt die chemische Verschiebung bestehen, aber die Form der Kante sowie die sich anschließenden Oszillationen ändern sich stark.

Abb. 6.2 weist mittels dieses "Fingerabdruck-Verfahrens" die Existenz von Ga_2O_3 auf Probe D nach. Das oberflächenempfindlich gemessene Absorptionssignal dieser Probe läßt sich durch eine Überlagerung der Kantenstrukturen von GaAs und Ga_2O_3 deu-

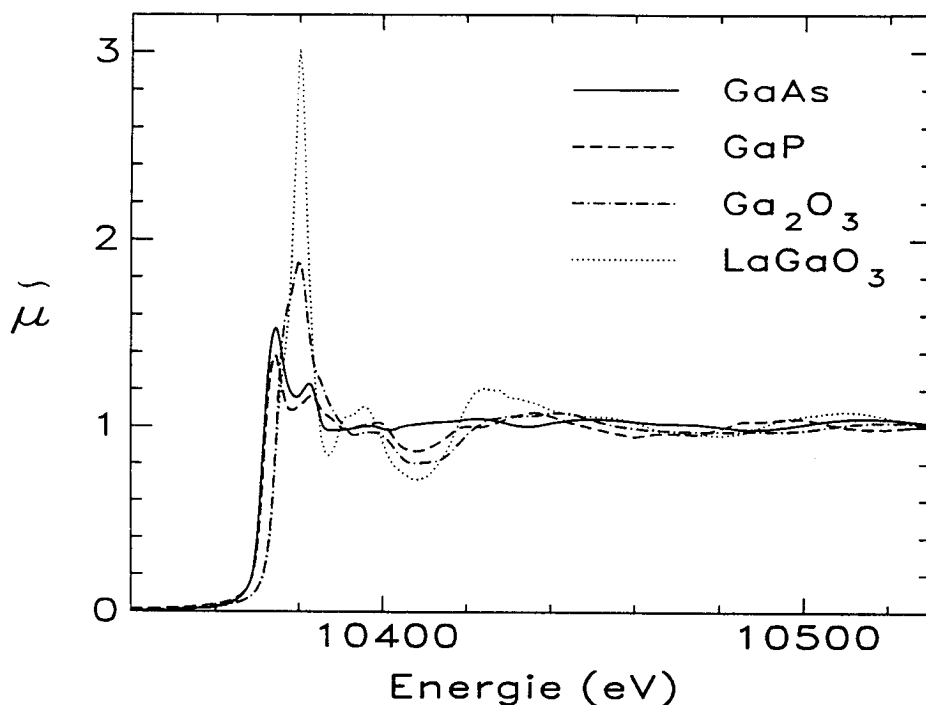


Abbildung 6.1: Normierter Absorptionskoeffizient im Bereich der Ga-K-Kante für verschiedene Ga-Verbindungen (Transmissionsmessungen).

ten. Während die energetische Lage von Kante und weißer Linie für GaAs typisch ist, entspricht die Position des zweiten, etwas niedrigeren Maximums genau der Lage der weißen Linie von Ga_2O_3 . Das zweite Maximum im Absorptionskoeffizienten von GaAs liegt energetisch nur wenig, jedoch signifikant zu hoch, um mit dem entsprechenden Signal von Probe D identifiziert werden zu können. Für die Präsenz von Ga_2O_3 spricht auch die Kurvenform des Probensignals im Bereich 10390 - 10420 eV, in dem das GaAs-Signal vergleichsweise strukturlos ist. Die Überlagerung GaAs- und Ga_2O_3 -typischer Strukturen läßt auf eine Dicke der Oxidschicht schließen, die deutlich kleiner als die Eindringtiefe der Röntgenstrahlen ist.

Abb. 6.3 stellt die normierten Absorptionskoeffizienten von Probe D, As_2O_3 und GaAs im Bereich der As-K-Kante dar. Das in Reflexion gemessene Probensignal zeigt keinerlei Übereinstimmungen mit den Kantenstrukturen des As_2O_3 und bildet im wesentlichen das GaAs-Signal ab. Die Oxidschicht kann daher höchstens einen geringen Anteil As_2O_3 oder eines anderen As-Oxids enthalten.

Die Abb. 6.4 und 6.5 zeigen unter gleichen Bedingungen gemessene Kantenstrukturen der Proben B, D, E und A sowie zwei weiterer Proben, die unmittelbar im Anschluß an A produziert wurden. Zwischen der Herstellung der erst- und letztgenannten drei Proben lag ungefähr eine Woche. Die ähnlichen, jedoch nicht in allen Details identischen Kurvenformen in Abb. 6.4 belegen die Existenz strukturell und chemisch vergleichbarer Ga-Oxide auf den Proben. Die energetische Lage des zweiten, etwas niedrigeren Maximums ist für alle Proben gleich (≈ 10380 eV) und weist auf die Bildung von

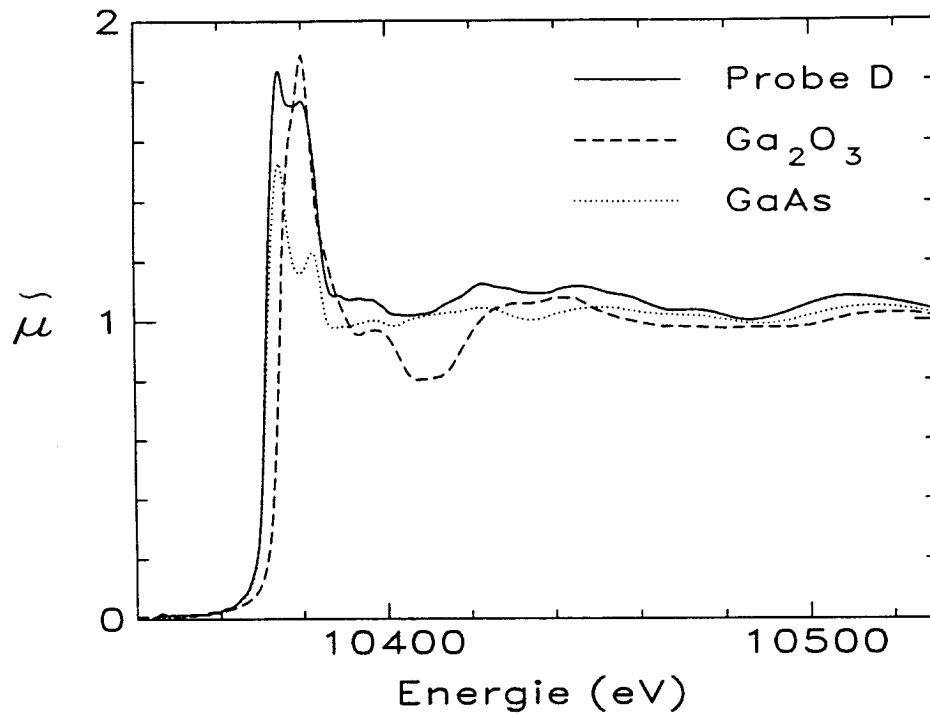


Abbildung 6.2: Normierter Absorptionskoeffizient im Bereich der Ga-K-Kante an Probe D oberflächenempfindlich in Reflexion sowie an den Referenzproben Ga_2O_3 und GaAs in Transmission gemessen.

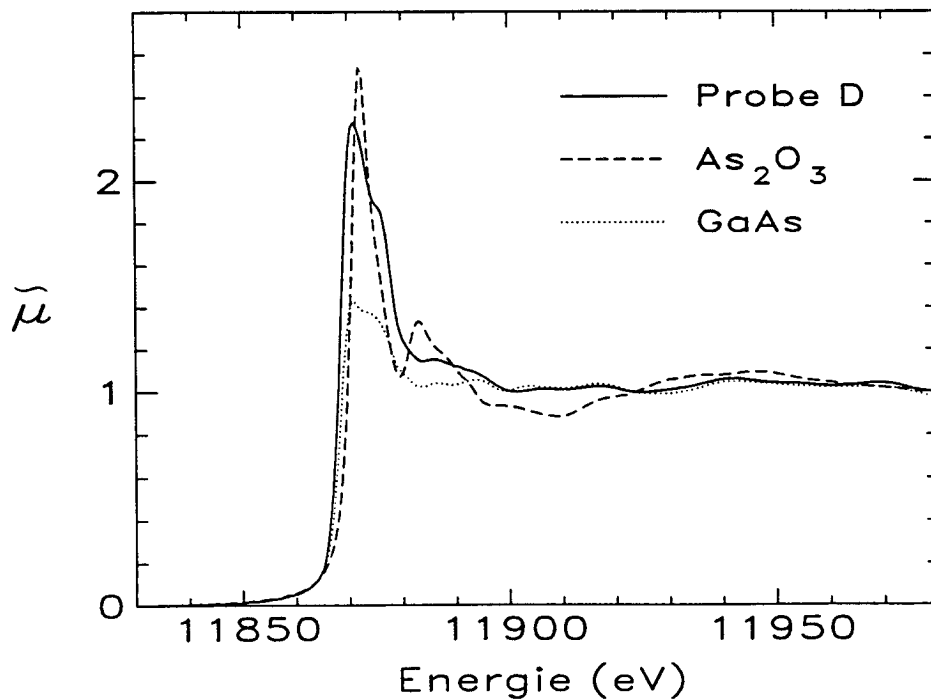


Abbildung 6.3: Wie Abb. 6.2, jedoch im Bereich der As-K-Kante und mit den Referenzproben As_2O_3 und GaAs gemessen.

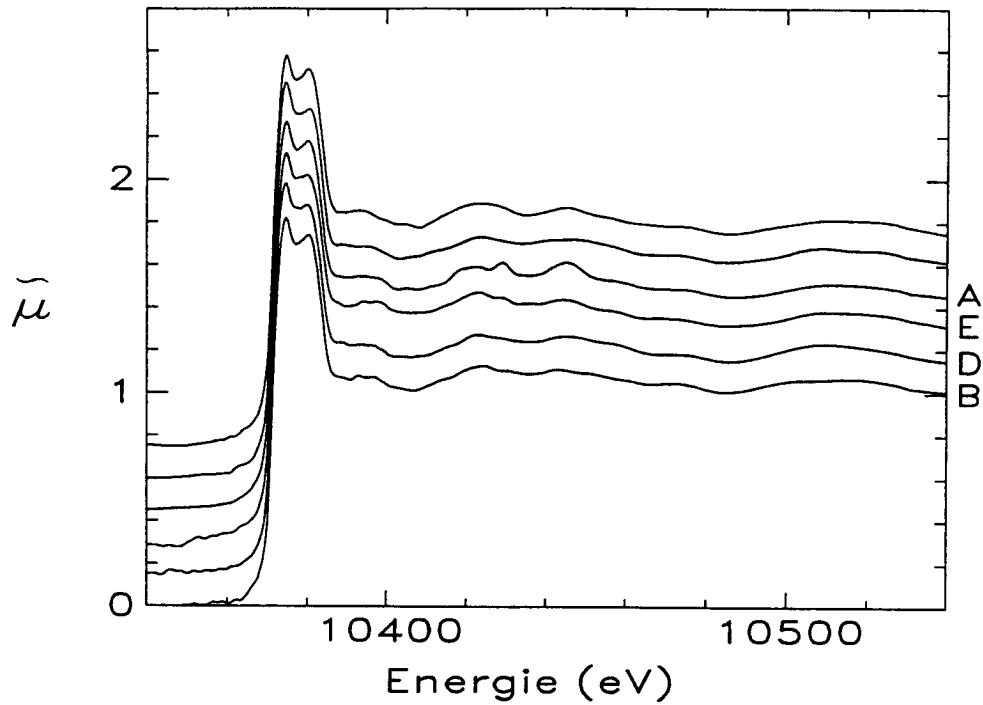


Abbildung 6.4: Normierter Absorptionskoeffizient für verschiedene Proben im Bereich der Ga-K-Kante (oberflächenempfindliche Reflexionsmessungen). Die Meßkurven werden der Übersichtlichkeit halber versetzt dargestellt.

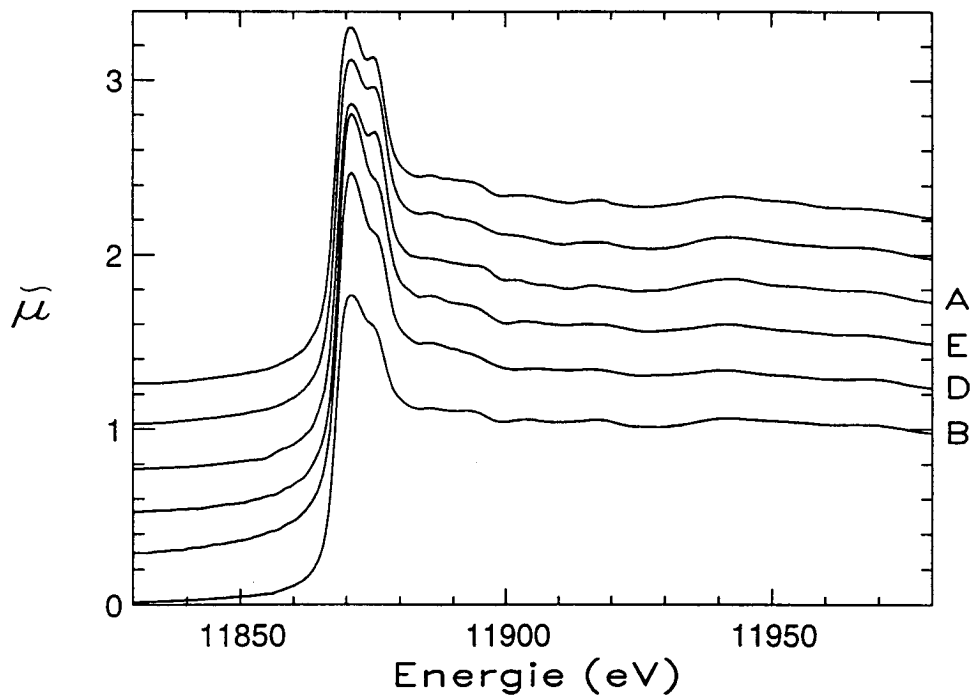


Abbildung 6.5: Wie Abb. 6.4, jedoch im Bereich der As-K-Kante.

Ga₂O₃ hin (s.o., vgl. Abb. 6.2). Die Bedeutung der insbesondere bei Probe A ab 10420 eV auftretenden zusätzlichen Struktur blieb ungeklärt.

Abb. 6.5 zeigt die normierten Absorptionskoeffizienten der Proben im Bereich der As-K-Kante. Vor allem in unmittelbarer Nähe der Kante unterscheiden sich die Meßkurven deutlich voneinander; verglichen mit der Ga-K-Kante liegen hier stärkere Variationen vor. Während die Kantenstrukturen der Proben B, D und E bei einer Energie von 11875 eV lediglich eine Schulter aufweisen, liegt an dieser Stelle für die restlichen Proben ein Maximum vor. Dies ist ein deutlicher Hinweis auf ein As-Oxid, da die Kantenstruktur von GaAs bei dieser Energie ebenfalls nur eine Schulter zeigt. Versucht man, dieses Maximum der weißen Linie eines As-Oxids zuzuordnen, scheidet As₂O₃ aufgrund von Abb. 6.3 aus (die entsprechenden Maxima liegen 3.5 eV auseinander). Für As₂O₅ spricht die mit der höheren Wertigkeit des As einhergehende größere chemische Verschiebung der Kantenlage. Die weiße Linie von As₂O₅ liegt jedoch etwa 4.5 eV über derjenigen von As₂O₃¹, so daß auch unter Berücksichtigung der experimentellen Energieauflösung ein sicherer Nachweis nicht möglich ist.

Zusammenfassend kann festgestellt werden, daß auf allen Proben eine Oxidschicht vorhanden ist, deren Dicke deutlich kleiner als die Eindringtiefe der Röntgenstrahlen unter Totalreflexionsbedingungen ist. Während Ga-Oxid in Form von Ga₂O₃ auf allen Proben nachweisbar ist, scheint As-Oxid in unterschiedlichem Ausmaß gebildet worden zu sein, da von den Proben A, B, D und E nur Probe A einen deutlichen Hinweis auf As-Oxid zeigt (vermutlich As₂O₅).

6.2 Röntgenbeugung

Alle Proben wurden mit Röntgenbeugung untersucht, um die Dicke und ggf. Relaxation der kristallinen Schichten, ihre laterale Homogenität sowie den Al-Gehalt (Proben B bis E) zu bestimmen. Dazu wurde bei einer Energie von 8048 eV in einem größeren Winkelbereich um die GaAs(004)- und GaAs(224)_{+, -}-Reflexe Rockingkurven gemessen². Abb. 6.6 zeigt die Beugungsprofile der Proben B bis E in der Nähe des GaAs(004)-Reflexes. Da die Eindringtiefe der Röntgenstrahlen deutlich die Gesamtdicke des Schichtsystems übertrifft (die Extinktionslänge beträgt bei dieser Energie für den GaAs(004)-Reflex ungefähr 0.8 µm), ist das ausgeprägte Maximum bei $\vartheta = 33.02^\circ$ dem Substratreflex zuzuordnen (genaugenommen entsteht dieser Reflex jedoch aufgrund der begrenzten Eindringtiefe hauptsächlich durch die Beugung an den Netzebenen der GaAs-Pufferschicht (vgl. Abb. 5.1)). Wie bereits in Abschnitt 3.3.1 erwähnt, kann das breite Maximum links vom Substratreflex (im weiteren auch Satellit 0. Ordnung genannt) im wesentlichen als (004)-Reflex der nominell 930 Å dicken Al_xGa_{1-x}As-Schicht (nomineller Al-Gehalt $x = 0.63$) aufgefaßt werden. Bei dieser Interpretation ist jedoch zu beachten, daß aufgrund der nur wenig voneinander abweichenden Gitterkonstanten der Al_xGa_{1-x}As-Reflex sehr nahe beim GaAs-Substratreflex liegt und die vergleichsweise geringe Schichtdicke einen Überlapp der Reflexe hervorruft. Allein die dadurch bewirkte Interferenz verändert den Winkelabstand der Maxima; bei den hier betrachteten Proben kommt

¹B. Lengeler, unveröffentlicht.

²Der Index des asymmetrischen Reflexes kennzeichnet steilen (+) bzw. flachen (-) Einfall der Röntgenstrahlen (s. Abschnitt 3.3.1).

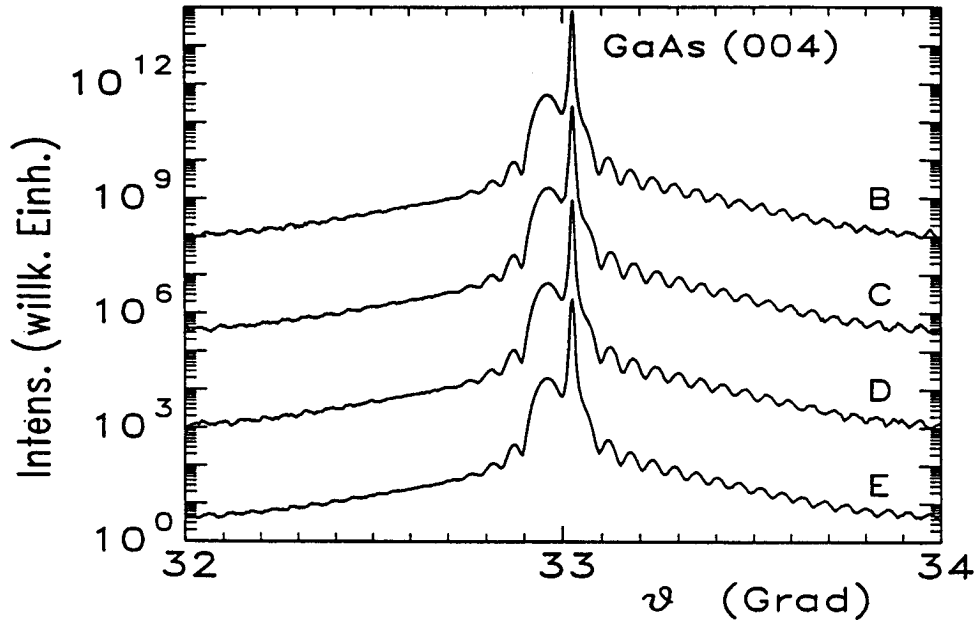


Abbildung 6.6: Rockingkurven der Proben B bis E (Messungen am GaAs(004)-Reflex; der Übersichtlichkeit halber versetzt dargestellt).

noch die Interferenz mit dem Reflex der GaAs-Deckschicht (nominelle Dicke 87 Å) hinzu.

Alle experimentellen Kurven dieser Proben zeigen ein ähnliches Beugungsprofil, was auf vergleichbare kristalline Qualität und strukturelle Parameter schließen läßt. Während die Amplitude der Oszillationen für alle Meßdaten praktisch identisch ist, zeigen sich kleine Unterschiede in der Periode.

Die kinematisch abgeleitete differentielle Gl. (3.63) liefert für diese Proben eine Beziehung zwischen dem Winkelabstand $\Delta\vartheta$ der Nebenmaxima und der Dicke D des gesamten Schichtpakets. Da zur Auswertung sehr viele Oszillationen in einem großen Winkelintervall zwischen 33.1° und 34.0° zur Verfügung stehen, wurde die Gesamtschichtdicke D in einer etwas modifizierten Form ermittelt. Aufgrund der bekannten Winkellage des Substratreflexes kann jedem Satelliten der Ordnung m eine Position ϑ_m zugeordnet werden. Sodann wird $\sin \vartheta_m$ gegen die Ordnung m aufgetragen und aus der Steigung s der Ausgleichsgeraden die Gesamtdicke D gemäß der Formel

$$D = \frac{\lambda}{2s} \quad (6.1)$$

bestimmt. Da der relative Fehler der Wellenlänge im Experiment kleiner als 10^{-4} ist, dominiert der Fehler δs der Steigung das Ergebnis. Der relative Fehler $\delta s/s$ liegt dabei stets zwischen 10^{-3} und 10^{-4} . Er rührt von der Unsicherheit in der Bestimmung der Satellitenpositionen her. Einerseits ist ein Ablesefehler von typischerweise 0.001° zu berücksichtigen; andererseits überlagert sich den Dickenoszillationen eine langwellige Modulation, die in der Simulation (Abb. 6.7 b) deutlich hervortritt und von der Deckschicht hervorgerufen wird. Auch daher ist eine Bestimmung der Gesamtdicke D , welche viele Satelliten umfaßt, der Auswertung einzelner Winkelabstände vorzuziehen.

Probe	B	C	D	E
D [Å]	937	911	915	942

Tabelle 6.1: Mittels der kinematischen Näherung (6.1) ermittelte Gesamtschichtdicken D der Proben B bis E. Der statistische Auswertefehler beträgt ± 1 Å.

Die Ergebnisse sind in Tabelle 6.1 zusammengefaßt, wobei der Fehlerrechnung eine Gaußsche Fehlerfortpflanzung zugrunde gelegt wurde. Ein Vergleich mit Tabelle 5.1 zeigt, daß der nominelle Wert $D = 1017$ Å in jedem Fall deutlich unterschritten wird.

Eine Verkipfung der (001)-Netzebenen des Schichtsystems gegenüber denen des Substrats liegt nicht vor, wie jeweils zwei Messungen am (004)-Reflex mit entgegengesetztem Strahlengang ergaben. Nach dem in Abschnitt 3.3.1 beschriebenen Verfahren wurden aus der Winkelseparation zwischen dem Substratreflex und dem Satelliten 0. Ordnung die relativen Gitterfehlpassungen $\left(\frac{\Delta d}{d}\right)^\perp$ und $\left(\frac{\Delta d}{d}\right)^\parallel$ unter Verwendung der (004)-, (224)- und $(\bar{2}\bar{2}4)$ -Reflexe bestimmt (Tabelle 6.2). Die Ablesegenauigkeit betrug für Messungen am (004)-Reflex und an {224}-Reflexen mit steilem Einfall 0.001° . Für die Messungen an {224}-Reflexen mit flachem Einfall wurde ein Fehler von 0.002° angesetzt, da in dieser Streugeometrie der Satellit 0. Ordnung eine vergrößerte Halbwertsbreite besitzt. Eine Fehlerrechnung zu den Gl. (3.66) ergibt dann eine Unsicherheit von $\pm 3 \cdot 10^{-5}$ für $\left(\frac{\Delta d}{d}\right)^\perp$ und $\pm 4 \cdot 10^{-5}$ für $\left(\frac{\Delta d}{d}\right)^\parallel$ (Gaußsche Fehlerfortpflanzung). Die Gitterfehlpassungen variieren etwas von Reflex zu Reflex, stimmen jedoch im Rahmen des Fehlers überein. Insbesondere gibt es keine signifikanten Hinweise auf eine Relaxation der Schichten, da die Werte für $\left(\frac{\Delta d}{d}\right)^\parallel$ innerhalb der Fehlergrenzen Null ergeben, wie man es für epitaktische GaAs/AlGaAs-Schichten dieser Dicke auch erwarten würde. Dennoch wurde an Probe D exemplarisch überprüft, ob pseudomorphes Wachstum vorliegt. Die Auswertung zusätzlicher Messungen am $(2\bar{2}4)$ - und $(\bar{2}24)$ -Reflex bestätigte jedoch die tetragonale Symmetrie der Schicht-Einheitszelle. Der Tabelle 6.2 kann eine mittlere senkrechte Gitterfehlpassung von $\left(\frac{\Delta d}{d}\right)^\perp = 1.73 \cdot 10^{-3} \pm 3 \cdot 10^{-5}$ entnommen werden. Es muß aber betont werden, daß wegen der zu Beginn erwähnten Interferenzeffekte dieser Wert nicht ohne weiteres der $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -Schicht zugeordnet werden darf. Um den Einfluß dieser Effekte auf die Bestimmung des Al-Gehaltes x zu demonstrieren, soll trotzdem mittels Gl. (2.6) dieser vertikalen Gitterfehlpassung unter Verwendung der Materialparameter aus Anhang B ein rechnerischer Al-Gehalt zugeordnet werden, der mit den aus der Simulation der Beugungsprofile folgenden Werten (s.u.) zu vergleichen ist. Mit $\left(\frac{\Delta d}{d}\right)^\parallel = 0$ ergibt sich $x = 0.61 \pm 0.01$. Der angegebene Fehler ist rein statistischer Natur. Eine Abschätzung des systematischen Fehlers muß in erster Linie die vergleichsweise schlecht bekannte Gitterkonstante des AlAs berücksichtigen, welche in der linearen Interpolation des Al-Gehaltes zu einem relativen Fehler von

Probe	B	C	D	E
$\left(\frac{\Delta d}{d}\right)_{004}^{\perp}$	$1.72 \cdot 10^{-3}$	$1.74 \cdot 10^{-3}$	$1.77 \cdot 10^{-3}$	$1.74 \cdot 10^{-3}$
$\left(\frac{\Delta d}{d}\right)_{224}^{\perp}$	$1.75 \cdot 10^{-3}$	$1.71 \cdot 10^{-3}$	$1.73 \cdot 10^{-3}$	$1.77 \cdot 10^{-3}$
$\left(\frac{\Delta d}{d}\right)_{\bar{2}\bar{2}4}^{\perp}$	$1.74 \cdot 10^{-3}$	$1.68 \cdot 10^{-3}$	$1.72 \cdot 10^{-3}$	$1.73 \cdot 10^{-3}$
$\left(\frac{\Delta d}{d}\right)_{224}^{\parallel}$	$0.8 \cdot 10^{-5}$	$-0.1 \cdot 10^{-5}$	$0.5 \cdot 10^{-5}$	$-0.8 \cdot 10^{-5}$
$\left(\frac{\Delta d}{d}\right)_{\bar{2}\bar{2}4}^{\parallel}$	$0.6 \cdot 10^{-5}$	$-0.1 \cdot 10^{-5}$	$1.4 \cdot 10^{-5}$	$1.0 \cdot 10^{-5}$

Tabelle 6.2: Aus dem Satelliten 0. Ordnung ermittelte Gitterfehlpassungen senkrecht und parallel zur Wachstumsrichtung für die Proben B bis E. Der statistische Auswertefehler beträgt $\pm 3 \cdot 10^{-5}$ für $\left(\frac{\Delta d}{d}\right)^{\perp}$ und $\pm 4 \cdot 10^{-5}$ für $\left(\frac{\Delta d}{d}\right)^{\parallel}$, so daß die parallele Gitterfehlpassung im Rahmen der Fehlergrenzen Null ist.

1.2 % führt (s. Anhang B). Die lineare Interpolation der elastischen Konstanten c_{11} und c_{12} des Mischkristalls ist dagegen weniger bedeutsam, weil diese nur über das Verhältnis $c_{11}/(c_{11} + 2c_{12})$ eingehen, das nahe bei 0.5 liegt und lediglich eine schwache Abhängigkeit vom Al-Gehalt zeigt. Für dieses Verhältnis wird ein relativer Fehler von 0.5 % angenommen, so daß der Gesamtfehler des Al-Gehaltes ± 0.02 betragen kann. Eine genauere *absolute* Bestimmung des Al-Gehaltes mittels Röntgenbeugung ist daher mit den vorliegenden Materialparametern nicht möglich.

Probe A wurde nur durch Simulation ausgewertet, weil aufgrund der dünnen AlAs-Schicht der Satellit 0. Ordnung vollständig mit dem Substratreflex überlappt und die Satelliten höherer Ordnung von einer ausgeprägten Einhüllenden moduliert werden.

Die laterale Homogenität aller Proben wurde auf einer Länge von 40 mm sowohl in [110]- als auch in $[1\bar{1}0]$ -Richtung durch eine Folge von Einzelmessungen des (004)-Reflexes überprüft³. Es wurden jeweils nur die ersten Satelliten gemessen und die Variationen der Winkelabstände ausgewertet, wodurch die Fluktuationen der Gesamt-

³Die Messungen wurden mit Cu-K $_{\alpha 1}$ -Strahlung an einem kommerziellen Diffraktometer der Firma Philips (HRXRD-MPD 1880) durchgeführt. Der Strahlfleck auf der Probe war etwa 2 mm x 2 mm groß.

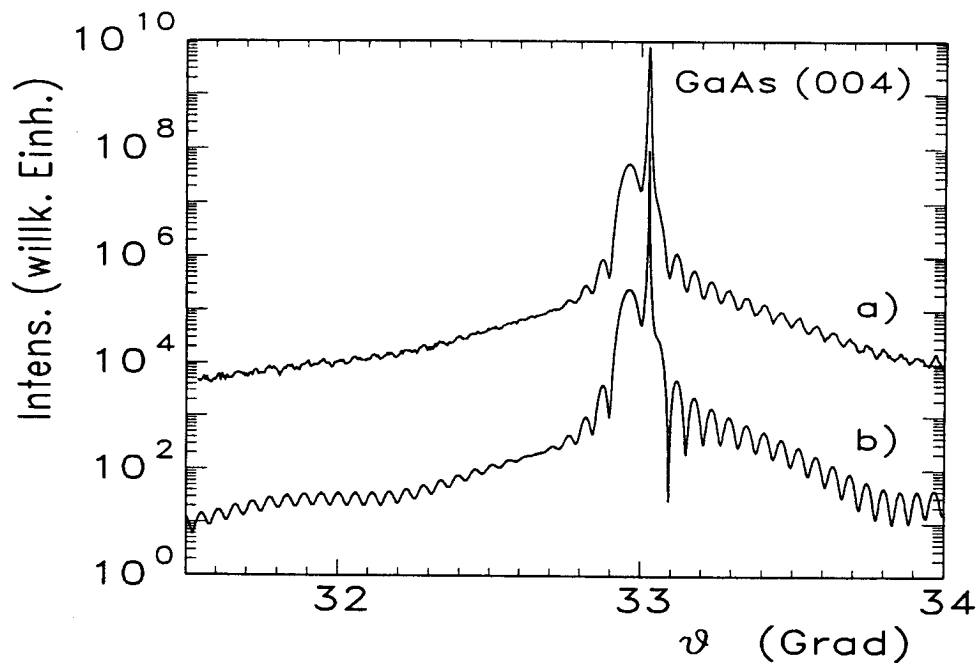


Abbildung 6.7: Gemessenes (a) und simuliertes (b) Beugungsprofil für Probe B in der Nähe des GaAs(004)-Reflexes (der Übersichtlichkeit halber versetzt dargestellt; für die Parameter der Simulation s. Tabelle 6.3).

schichtdicke und (für die Proben B bis E) des Al-Gehaltes abgeschätzt werden konnten. Die Winkelabstände variieren nicht mehr als 1 % mit dem Ort auf der Probe und zeigen keine Tendenz einer zum Waferrand hin ansteigenden Inhomogenität. Die Fluktuation des Al-Gehaltes der Proben B bis E liegt wahrscheinlich noch deutlich unter 1 %, weil Schwankungen der Schichtdicke den Abstand des Satelliten 0. Ordnung zum Substratreflex beeinflussen. Die Proben können also als sehr homogen beurteilt werden. Dies ist von besonderer Bedeutung für die Messungen unter streifendem Einfall, bei denen eine große Fläche ausgeleuchtet wird.

Alle Messungen am (004)-Reflex sind mittels Simulation ausgewertet worden. Die Simulation der Rockingkurven der Proben B bis E (Abb. 6.6) diente vor allem dazu, die chemische Zusammensetzung der $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -Schicht zu bestimmen, da der Al-Gehalt ein vorzugebender Parameter bei der Auswertung der Reflexionsmessungen unter streifendem Einfall ist. Wie Simulationen der Rockingkurve für verschiedene Schichtdicken zeigten, beeinflussen sowohl die Schichtdicken als auch der Al-Gehalt den Abstand des Satelliten 0. Ordnung vom Substratreflex. Da aus Tabelle 6.1 nur die Gesamtschichtdicke bekannt ist, ist eine eindeutige Anpassung nur schwer möglich. Die Dicke der GaAs-Deckschicht sollte sich zwar in einer Modulation der Oszillationen niederschlagen (vgl. Abb. 6.7 b); da jedoch diese Modulation sehr langwellig sind und zudem die experimentell beobachteten Oszillationen nicht stark ausgeprägt sind (darauf wird weiter unten noch eingegangen), wurde ein anderer Weg beschritten. Aufgrund der sehr guten lateralen Homogenität wurden die Meßkurven der spiegelnden Reflektivität unter streifendem Einfall vorläufig mit dem nominellem Al-Gehalt ausgewertet, um die Dicken der GaAs- und $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -Schicht daraus zu bestimmen, die nicht empfindlich

vom Al-Gehalt abhängen. Da sich die größere Schichtdicke mit der größeren relativen Genauigkeit ergibt, wurde dieser Wert den Simulationen der Beugungsmessungen zugrunde gelegt und die Dicke der Deckschicht aus der Differenz zur Gesamtschichtdicke bestimmt. Die Konsistenz von Beugungs- und Reflektivitätsmessungen kann mit Hilfe der unabhängig ermittelten Gesamtschichtdicken überprüft werden. Die Abweichungen betragen für die Proben B bis E in dieser Reihenfolge 0.1 %, 0.2 %, 0.7 % und 0.4 %, so daß dieses Vorgehen unproblematisch erscheint ⁴. Abb. 6.7 zeigt Messung und Simulation des Beugungsprofils für Probe B (auf die Darstellung der analogen Bilder für die Proben C, D und E wird verzichtet). Die Simulation, in der nur der Al-Gehalt angepaßt wurde, gibt die Struktur der experimentellen Kurve gut wieder, jedoch ist der gemessene Intensitätsrückgang zwischen den Satelliten nicht so stark ausgeprägt wie der berechnete. Die Simulation berücksichtigt bereits die Divergenz des Primärstrahls und die Probenkrümmung.

Mehrere Gründe können für die Abweichungen verantwortlich sein : Einerseits können rauhe Grenzflächen zu einer teilweise inkohärenten Überlagerung der gestreuten Röntgenstrahlen führen, wodurch die Intensität der Satelliten verringert wird. Andererseits wirkt sich ein geringer Untergrund an Streustrahlung in einer logarithmischen Darstellung der Meßkurve nur wenig auf die Maxima, jedoch stark auf die Minima aus. Derartige Streustrahlung kann hervorgerufen werden durch Gitterfehler wie z.B. Versetzungen, die eine Verbreiterung der reziproken Gitterpunkte bewirken, sowie durch lokale Gitterverzerrungen beim Einbau statistisch verteilter Gruppe III-Atome in das Kristallgitter (sogenannte Huang-Streuung). Da bei der Messung die Auflösung im reziproken Raum nur durch Blenden vor dem Detektor gegeben war und kein Analysatorkristall zur Verfügung stand, kann dieser Punkt hier nicht weiter verfolgt werden, und eine Interpretation des Intensitätsrückgangs ist nicht möglich.

Die Strukturparameter der bestangepaßten Simulationen sind in Tabelle 6.3 zusammengefaßt. Der kinematisch bestimmte Al-Gehalt $x = 0.61 \pm 0.01$ unterschätzt dabei den tatsächlichen Gehalt von $x = 0.70 \pm 0.01$ stark. Diesem für dünne GaAs/AlGaAs-Schichten typischen systematischen Fehler kann nur durch die Simulation der Beugungsprofile begegnet werden.

Für die Simulation des Beugungsprofils von Probe A wurde angenommen, daß – wie vom Hersteller angegeben – eine Schicht reinen AlAs abgeschieden wurde, so daß nur die Schichtdicken angepaßt wurden. Abb. 6.8 zeigt Messung und Simulation. Die Bestimmung der Schichtdicken wird erleichtert durch die zahlreichen Nebenmaxima, deren Einhüllende empfindlich vom Verhältnis der Schichtdicken abhängt. Wiederum gibt die simulierte Rockingkurve über einen großen Winkelbereich die Struktur der experimentellen Kurve gut wieder. Auch in diesem Fall treten die bereits kommentierten Unterschiede der berechneten und simulierten Intensitätsrückgänge zwischen den Satelliten auf.

⁴Diese Werte unterschreiten die zuvor angegebene laterale Homogenität zum Teil deutlich, weil bereits bei einem Einfallswinkel von 0.5° die Proben nur noch auf einer Länge von 8.6 mm ausgeleuchtet wurden.

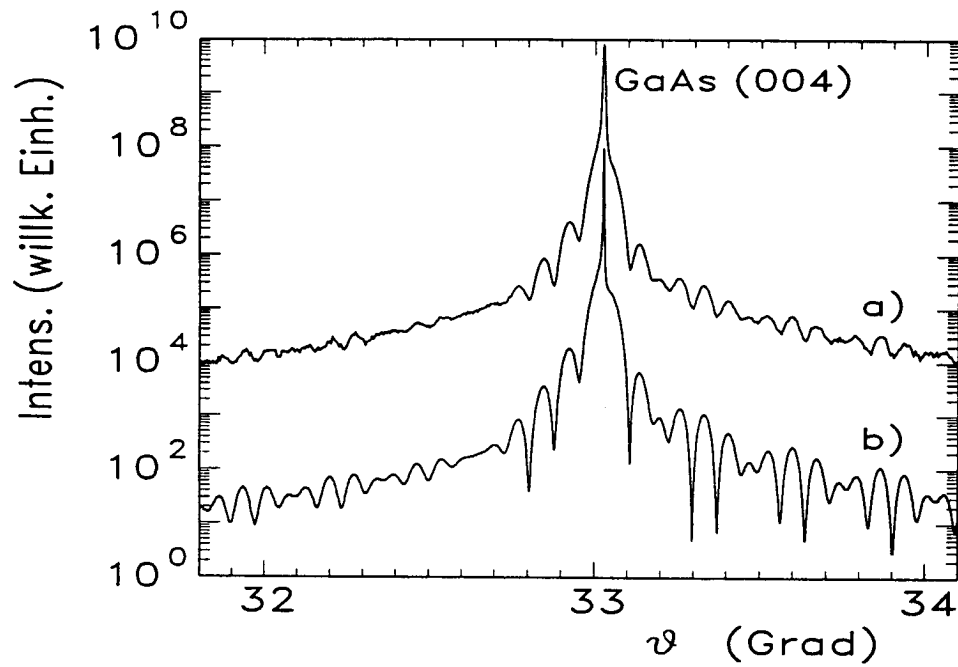


Abbildung 6.8: Gemessenes (a) und simuliertes (b) Beugungsprofil für Probe A in der Nähe des GaAs(004)-Reflexes (der Übersichtlichkeit halber versetzt dargestellt; für die Parameter der Simulation s. nachfolgende Tabelle).

Probe	A	B	C	D	E
d_1 [Å]	600 ± 5	(66)	(70)	(67)	(64)
d_2 [Å]	190 ± 5	(871)	(841)	(848)	(878)
x	(1)	0.69 ± 0.01	0.71 ± 0.01	0.71 ± 0.01	0.70 ± 0.01

Tabelle 6.3: Schichtdicken d_1 (GaAs), d_2 ($\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$), und Al-Gehalt x, mit denen die Meßkurven am besten simuliert werden konnten (einschl. des statistischen Auswertefehlers). Die in Klammern gesetzten Parameter waren bei der Simulation vorgegeben (s. Text).

6.3 Spiegelnde Reflexion unter streifendem Einfall

An allen Proben wurde die spekulare Reflektivität unter streifendem Einfall (im folgenden nur Reflektivität genannt) bei mindestens zwei unterschiedlichen Photonenenergien gemessen. Dabei stand die Frage im Vordergrund, inwieweit sich diese Methode zur Charakterisierung der Realstruktur sehr dünner III-V-Halbleiterschichtsysteme eignet; mit den Messungen bei verschiedenen Photonenenergien konnte die Konsistenz der Ergebnisse überprüft werden. Dazu wurden Energien von 8048 eV, 11100 eV und (für Probe A) 12150 eV benutzt, die für GaAs und AlGaAs auf deutlich differierende Brechungsindizes führen, da die K-Absorptionskante von Ga bei 10368 eV und die von As bei 11865 eV liegt.

Anders als die etablierte Röntgenbeugung an Halbleiterschichtsystemen hängt diese Methode aufgrund der extremen Vorwärtsstreuung, die zu vergleichsweise kleinen Streuvektoren führt, nicht von der Kristallinität der Proben ab. Dies hat den Vorteil, die gemessenen Reflektivitätskurven ohne die Annahme sehr guter kristalliner Qualität auswerten zu können (im Gegensatz zur Simulation von Beugungsprofilen); andererseits können sich nun etwaige amorphe Schichten ebenfalls in den Meßkurven bemerkbar machen. Wie in Abschnitt 3.2 dargelegt, wird bei einer Reflektivitätsmessung wegen des zur Oberfläche senkrechten Streuvektors $\mathbf{Q}$ (Impulsübertrag $|\mathbf{Q}| = Q_z$) das lateral gemittelte Elektronendichteprofil senkrecht zur Oberfläche bestimmt. Solche Messungen an Schichtsystemen enthalten daher implizit Information über die Dicke und Massendichte (bei bekannter chemischer Zusammensetzung) der einzelnen Schichten sowie über die vertikale Rauhmigkeit der Grenzflächen (im Sinne von Übergangsprofilen, vgl. Abschnitt 3.2.2).

Von besonderem Interesse ist die Rauhmigkeit der sogenannten invertierten (GaAs auf AlGaAs) und normalen Grenzfläche (AlGaAs auf GaAs) in Abhängigkeit von der Wachstumstemperatur bei der Epitaxie (vgl. Abb. 5.1 und Tabelle 5.1). Abb. 6.9 zeigt anhand von Simulationen für die Reflektivität, daß bei den zugehörigen Proben B bis E die Rauhmigkeit der normalen und invertierten Grenzfläche getrennt bestimmt werden kann. Bei den Simulationen wurde die nominelle Probenstruktur 87 Å GaAs / 930 Å $\text{Al}_{0.63}\text{Ga}_{0.37}\text{As}$ / GaAs-Substrat verwendet, um den Effekt *einer* rauhen inneren Grenzfläche abzuschätzen; alle anderen Grenzflächen wurden als glatt behandelt. Die Modellierung der Grenzflächenrauhmigkeit erfolgte nach Névot und Croce, wobei der Parameter σ die Breite des Übergangs quantifiziert (s. Abschnitt 3.2.2). Im weiteren soll in Anlehnung an Abb. 5.1 die Rauhmigkeit der invertierten Grenzfläche mit σ_1 und die der normalen Grenzfläche mit σ_2 bezeichnet werden. Die um mehr als einen Faktor 10 unterschiedlichen Dicken der GaAs- und der AlGaAs-Schicht führen zu einer lang- und einer kurzperiodigen Modulation der nach dem kritischen Winkel rasch abfallenden Reflektivität. Die langperiodige Modulation oder Einhüllende ist der geringen GaAs-Schichtdicke zuzuordnen, und der kurzperiodigen Oszillation entspricht die Gesamtschichtdicke. Den Simulationen ist zu entnehmen, daß die Rauhmigkeit der normalen Grenzfläche eine sukzessive Dämpfung der Amplitude der kurzperiodigen Oszillation bewirkt, während die langperiodige Oszillation davon nicht beeinflusst wird (Kurve b). Umgekehrt schlägt sich eine rauhe invertierte Grenzfläche in einer gedämpften langperiodigen Oszillation nieder, wobei die Amplitude der kurzperiodigen Oszillation praktisch unverändert bleibt (Kurve c). Die Unabhängigkeit dieser

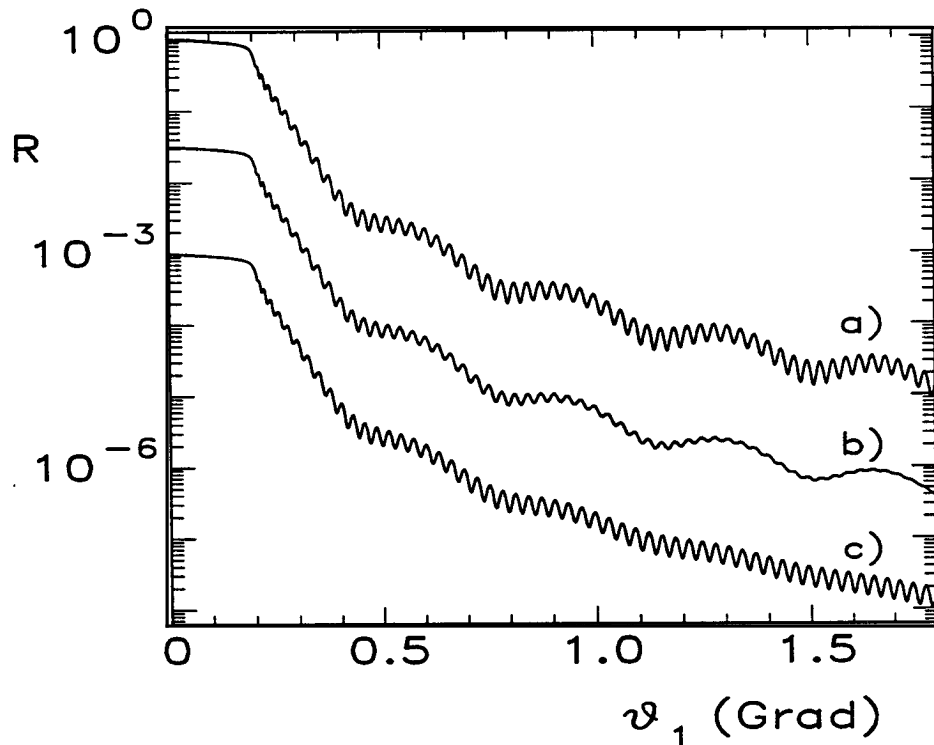


Abbildung 6.9: Einfluß der Rauigkeit innerer Grenzflächen auf die Reflektivität eines Schichtsystems mit der nominellen Struktur der Proben B bis E. Simulationen für 11100 eV-Photonen unter der Voraussetzung glatter Grenzflächen (a), einer rauhen normalen Grenzfläche mit $\sigma_1 = 7 \text{ \AA}$ (b) bzw. einer rauhen invertierten Grenzfläche mit $\sigma_2 = 7 \text{ \AA}$ (c).

Effekte macht eine getrennte Bestimmung der Rauigkeit beider Grenzflächen möglich. Bei den Simulationen war eine glatte Oberfläche vorausgesetzt worden; eine endliche Oberflächenrauigkeit läßt zwar die gesamte Reflektivitätskurve mit steigendem Einfallswinkel schneller abfallen (vgl. Abb. 3.11), führt ansonsten jedoch zum selben Resultat. Die Information über die Rauigkeit der inneren Grenzflächen ist daher bei sehr niedrigen Reflektivitäten von 10^{-4} bis 10^{-6} zu finden. Bei der Messung von Signalen, die so viele Größenordnungen unter der einfallenden Intensität liegen, ist besonders darauf zu achten, daß die experimentellen Daten nicht Artefakte enthalten, die bei einer Interpretation im Sinne von Abb. 6.9 zu systematisch verfälschten Resultaten führen. Wie noch gezeigt wird, wirkt sich beispielsweise ein starker Untergrund durch Streustrahlung direkt auf die Amplitude der Oszillationen aus und täuscht eine größere Rauigkeit vor als tatsächlich vorhanden ist.

Die Verfügbarkeit von Synchrotronstrahlung erwies sich als entscheidender Vorteil bei der Untersuchung dieser Probleme. Einerseits bedurfte es einer hohen Primärintensität bei gleichzeitig geringer Winkeldivergenz, um die Oszillationen mit genügender Intensität aufzulösen⁵. Andererseits konnte leicht die Photonenenergie verändert wer-

⁵Eine große Winkeldivergenz würde die Oszillationen verschmieren und somit ebenfalls eine zu große Rauigkeit vortäuschen.

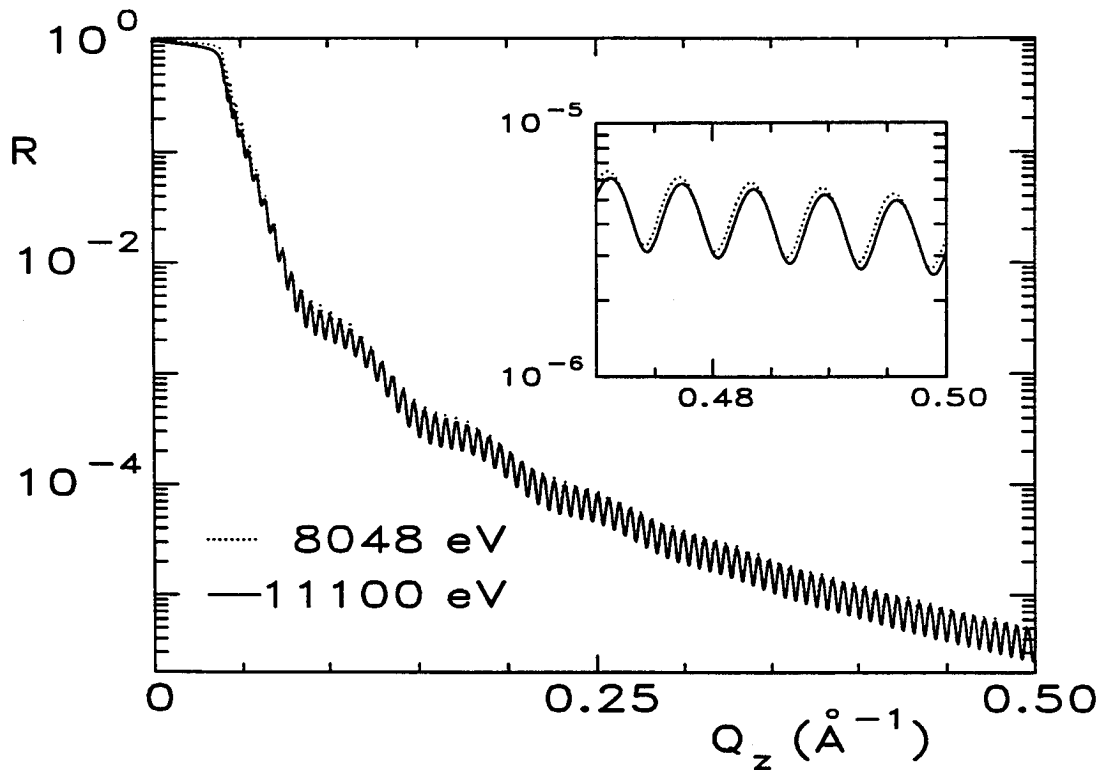


Abbildung 6.10: Die Reflektivitäten für verschiedene Photonenenergien stimmen im wesentlichen überein, wenn sie als Funktion des Streuvektors aufgetragen werden; das gilt insbesondere auch bei rauen Grenzflächen für die Amplitude der Oszillationen. Die Simulationen beziehen sich auf Fall c aus Abb. 6.9.

den. Abb. 6.10 belegt mittels Simulation, daß die bei zwei verschiedenen Energien gemessenen Reflektivitäten in guter Näherung übereinstimmen sollten, wenn sie in Abhängigkeit vom Impulsübertrag Q_z dargestellt werden. Diese Auftragung gibt dann näherungsweise die Struktur des reziproken Raumes in Ursprungsnähe wieder. Da die Brechungsindizes von der Energie der Röntgenphotonen abhängen, stimmen die Reflektivitäten jedoch nicht vollständig überein. Bei einer Energie von 11100 eV absorbiert Ga wegen des Überschreitens der K-Kante stärker als bei 8048 eV. Das macht sich vor allem im Bereich der Totalreflexion in einer niedrigeren Reflektivität bemerkbar, da bis zum kritischen Winkel lediglich die Absorption für eine Reflektivität unterhalb von 1 verantwortlich ist. Im folgenden ist vor allem wichtig, daß selbst bei sehr geringen Reflektivitäten praktisch identische Amplituden korrespondierender Oszillationen zu erwarten sind, wie die Vergrößerung in Abb. 6.10 zeigt. Selbstverständlich kann dies nur ein notwendiges Kriterium sein, um die Signifikanz experimenteller Daten zu beurteilen.

Dieses Kriterium wird jedoch von den Reflektivitätskurven *keiner* Probe erfüllt, wie die Abb. 6.11 und 6.12 exemplarisch für die Proben B und E zeigen. In beiden Abbildungen ist ab $Q_z = 0.2 \text{ \AA}^{-1}$ eine wachsende Diskrepanz zwischen den Amplituden der bei 8048 eV und 11100 eV gemessenen Oszillationen zu finden. Das betrifft sowohl die lang- als auch die kurzperiodige Oszillation. Da die bei der höheren Energie gemessenen Oszillationen einen kleineren Winkelabstand aufweisen, muß zuerst das experimentelle

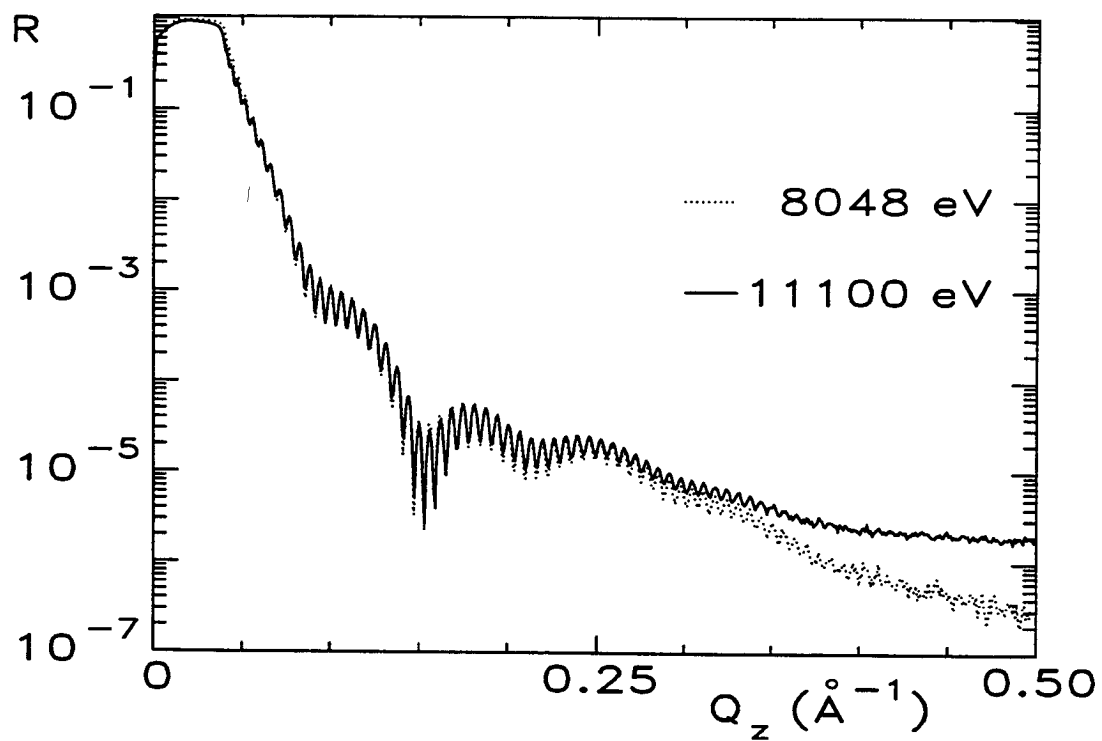


Abbildung 6.11: Scheinbare Reflektivität von Probe B für 8048 eV- und 11100 eV-Photonen als Funktion des Streuvektors.

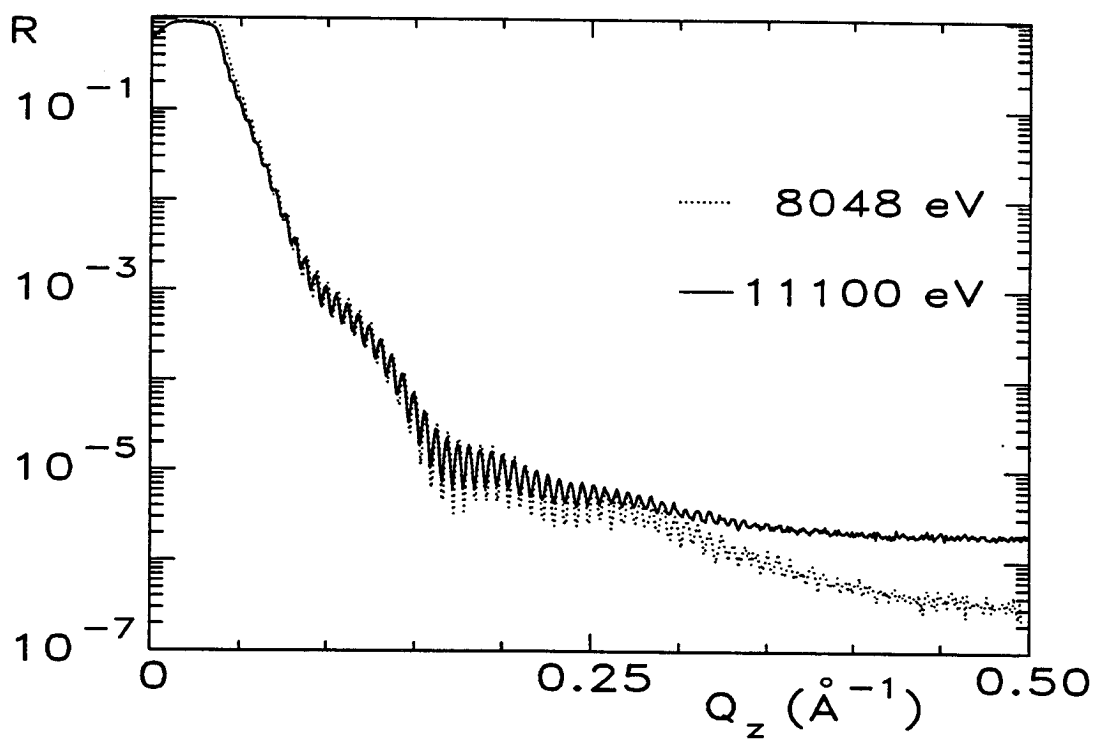


Abbildung 6.12: Wie Abb. 6.11, jedoch für Probe E.

Auflösungsvermögen als Ursache in Betracht gezogen werden (vgl. Abschnitt 4.4). Bei den Messungen wurde eine vertikale Blendenöffnung von $600\text{ }\mu\text{m}$ vor dem Detektor (bei einer Entfernung von 408 mm zum Drehzentrum des Goniometers) verwendet, um die gesamte reflektierte Intensität zu erfassen. In diesem Fall wird die Auflösung nur von der Probenkrümmung bestimmt, die gemäß Gl. (4.10) zu einer Glättung der Reflektivitätskurve aufgrund des zu einem Winkelintervall entarteten Einfallswinkels führt. Dieser Effekt ist ab $Q_z = 0.2\text{ }\text{\AA}^{-1}$ für *alle* hier untersuchten Proben vernachlässigbar, wie aus Gl. (4.10) und den Probenkrümmungen (Tabelle 5.5) folgt. Darüber hinaus sollte er sich vor allem bei kleinen Einfallswinkeln auswirken, da dann die ausgeleuchtete Fläche groß ist, während es sich in den Abb. 6.11 und 6.12 gerade umgekehrt verhält. Das experimentelle Auflösungsvermögen scheidet also als Ursache für die Diskrepanzen aus.

Diese werden vielmehr von einem Untergrund hervorgerufen, der für Reflektivitäten unterhalb von 10^{-5} das Streusignal dominiert. Dies legt insbesondere Abb. 6.12 nahe, in der beide Meßkurven weitgehend dieselbe Reflektivität hinsichtlich der Oszillations-*maxima* aufweisen, der geringere Rückgang der Reflektivität in den Minima der bei 11100 eV gemessenen Kurve jedoch auf einen Untergrund hindeutet, der einen Wert entsprechend $R = 2 \cdot 10^{-6}$ nicht unterschreitet und zu kleinen Q_z bzw. Einfallswinkeln hin leicht ansteigt. Eine solche Tendenz ist auch in Abb. 6.11 zu beobachten. Die Vermutung, der "wahren" Reflektivität (im Sinne der in Abschnitt 3.2 dargestellten Theorie) sei ein Untergrund überlagert, konnte durch Messungen mit festem Q_z (*senkrecht* zur Reflektivitätskurve) experimentell bestätigt werden. Dies geschah im $\vartheta'_1 = \text{const.}$ -Scanmodus (vgl. Abschnitt 4.3.2) unter Beibehaltung der Blendenöffnung vor dem Detektor. Abb. 6.13 zeigt die Ergebnisse für Probe E, wobei die Breite ΔQ_x der Reflektivitätskurve instrumentell bedingt ist. Außerhalb dieser Breite ist *sowohl bei 8048 eV als auch bei 11100 eV* ein Untergrund vorhanden, von dem abhängt, wie viele Größenordnungen der Reflektivität einer Messung zugänglich sind. Eine Steigerung der einfallenden Intensität um mehrere Größenordnungen führt mitnichten zu einer entsprechend größeren Dynamik der Reflexionskurve, weil der Untergrund proportional mitansteigt; dies würde lediglich die Statistik des Untergrund-Streuniveaus verbessern ⁶.

Die Verfälschung der Reflektivität durch einen in spekularer Richtung gestreuten Untergrund muß keineswegs offensichtlich sein. Dies belegt in Abb. 6.12 die bei 8048 eV gemessene Reflektivitätskurve. Erst Abb. 6.13 läßt erkennen, daß bereits ab $Q_z = 0.3\text{ }\text{\AA}^{-1}$ der Untergrund für einen erheblichen Anteil der gemessenen "Reflektivität" verantwortlich ist. Dadurch eröffnet sich die Möglichkeit, die gemessenen Reflektivitätskurven quantitativ um die Streustrahlung in spekularer Richtung zu korrigieren. Dabei wird der Untergrund an einem Punkt der Reflektivitätskurve aus einer $\vartheta'_1 = \text{const.}$ -Messung durch Interpolation für $Q_x = 0$ bestimmt; nachdem dies für alle $\vartheta'_1 = \text{const.}$ -Messungen durchgeführt worden ist, wird zwischen diesen Stützstellen linear interpoliert und mit diesen Werten die gesamte Meßkurve korrigiert. Dies ist möglich, weil der Untergrund nur schwach von Q_z bzw. ϑ_1 abhängt. Die Reflektivitäten aller Proben wurden für alle Photonenenergien in dieser Weise korrigiert. Abb. 6.14 zeigt exemplarisch für

⁶Vgl. in Abb. 6.13 den kaum verrauschten Untergrund bei 11100 eV , der die Dynamik der Meßkurve bei einer Primärintensität von über 10^8 Photonen/Sekunde auf weniger als 6 Größenordnungen beschränkt.

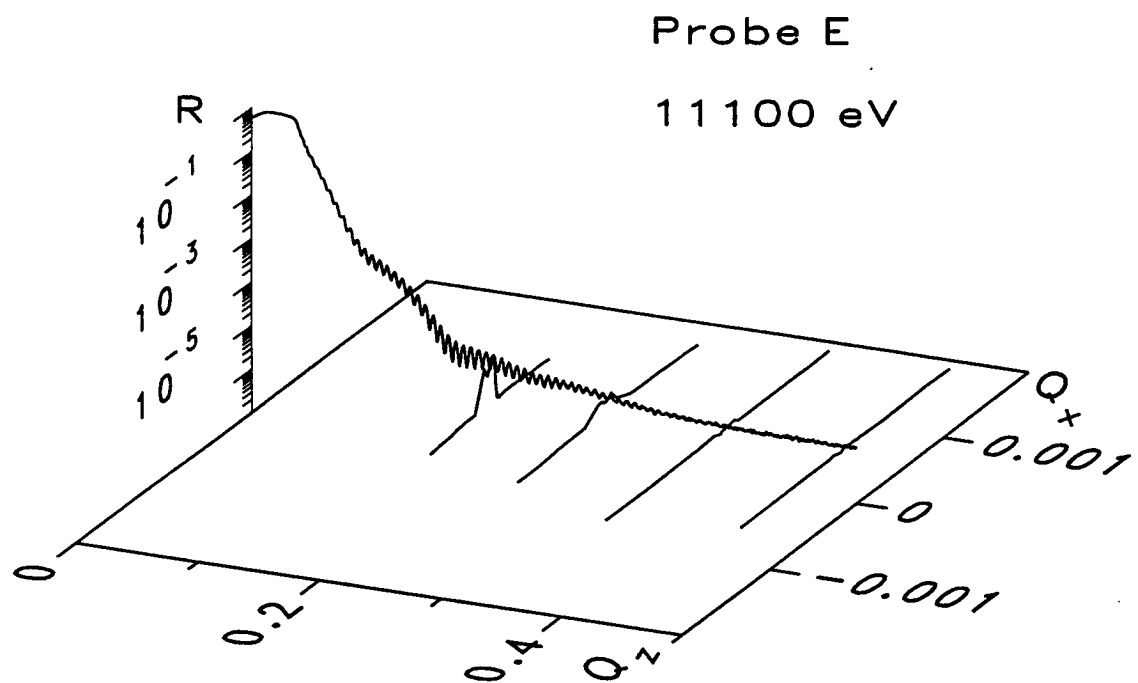
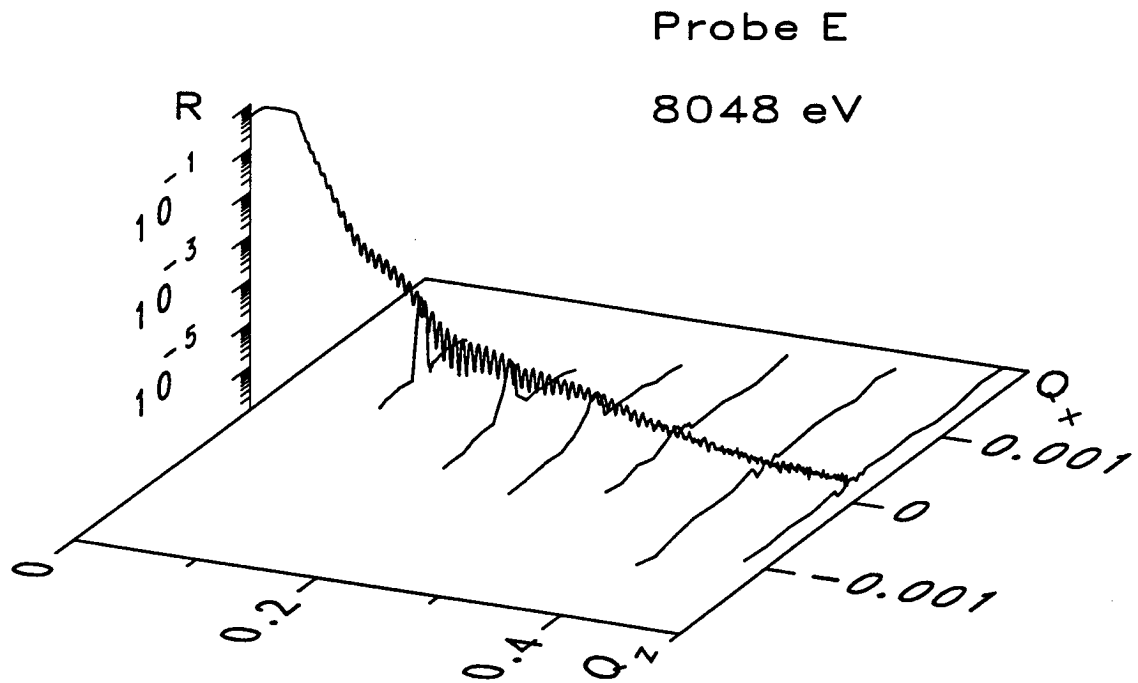


Abbildung 6.13: Experimentell bestimmter Untergrund unter den scheinbaren Reflektivitäten von Probe E. Die Q_x - und Q_z -Achse ist in $\text{\AA}^{-1}$ skaliert. Man beachte die stark unterschiedliche Intensität des Untergrundes bei $Q_z = 0.5 \text{ \AA}^{-1}$.

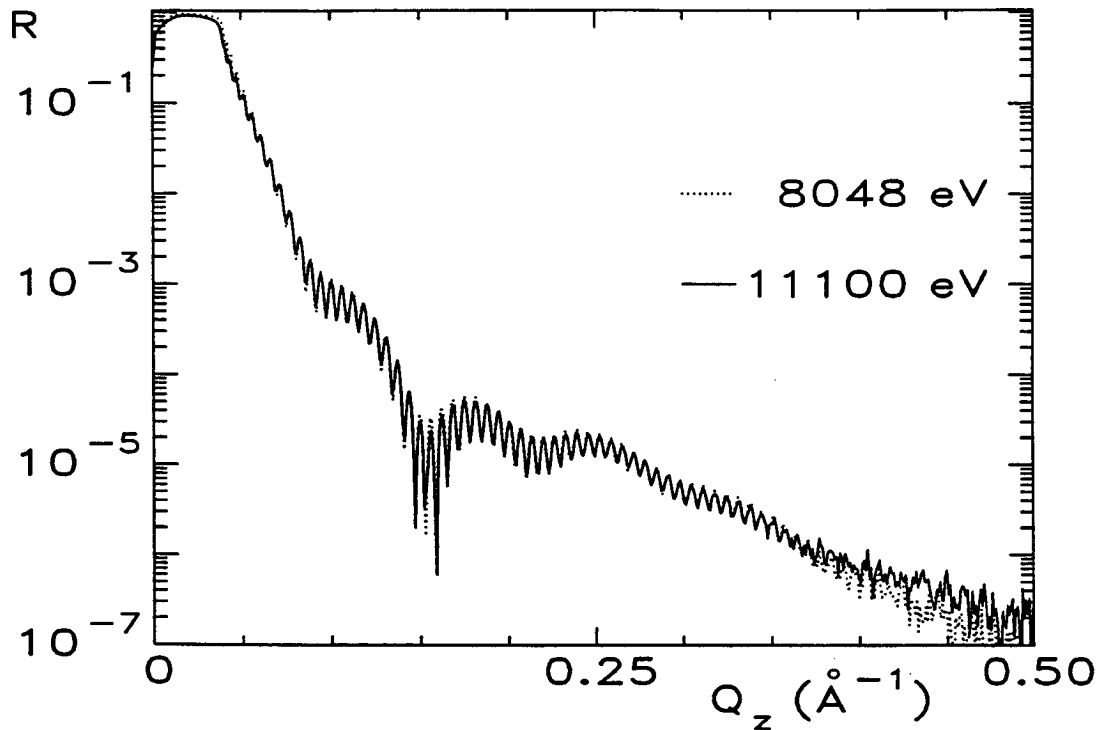


Abbildung 6.14: Um den Untergrund korrigierte Reflektivitäten von Probe B stimmen gut überein.

Probe B die damit erzielte gute Übereinstimmung der experimentellen Daten, an die nun sinnvoll Rauigkeitsparameter angepaßt werden können.

Bislang wurde der Untergrund rein phänomenologisch behandelt. Wie die Abb. 6.11-6.13 belegen, ist dieser bei 11100 eV fast eine Größenordnung höher als bei 8048 eV. Der Grund dafür liegt in der unterschiedlichen physikalischen Ursache der Streustrahlung. Abb. 6.15 zeigt für 8048 eV einen Untergrund, der charakteristisch für diffuse Streuung an Grenzflächenrauigkeiten ist, während Abb. 6.16 für 11100 eV eine dominierende Ga-Fluoreszenzstrahlung nachweist. In beiden Fällen handelt es sich um *inkohärente* Streuung, welche die oben beschriebene Korrektur der Meßdaten rechtfertigt.

Der Untergrund in Abb. 6.15 wurde aus Auflösungsgründen mit einer vertikal 75 μm geöffneten Blende vor dem Detektor im $\vartheta'_1 = \text{const.}$ -Scanmodus gemessen. Falls der Untergrund von diffuser Streuung an Grenzflächenrauigkeiten hervorgerufen wird, sind Yoneda-Peaks zu erwarten, wenn der ein- bzw. ausfallende Strahl mit der Oberfläche den kritischen Winkel einschließt. Die Umkehrbarkeit des Lichtwegs erfordert in diesem Fall außerdem ein symmetrisches Streubild bezüglich des spekularen Reflexes, wenn die Ausleuchtung der Probe berücksichtigt wird. Abb. 6.15 weist diese Charakteristika im Rahmen der Zählstatistik nach, die mit steigendem Einfallswinkel ϑ_1 schlechter wird. Die Abhängigkeit des Untergrundes von der Photonenenergie zeigt Abb. 6.16. Während der Messungen wurden Einfalls- und Streuwinkel festgehalten, die so gewählt waren, daß keine spiegelnd reflektierte Intensität in den Detektor fallen konnte. Beim Überschreiten der Ga-K-Kante steigt der Untergrund sprunghaft um fast eine Größen-

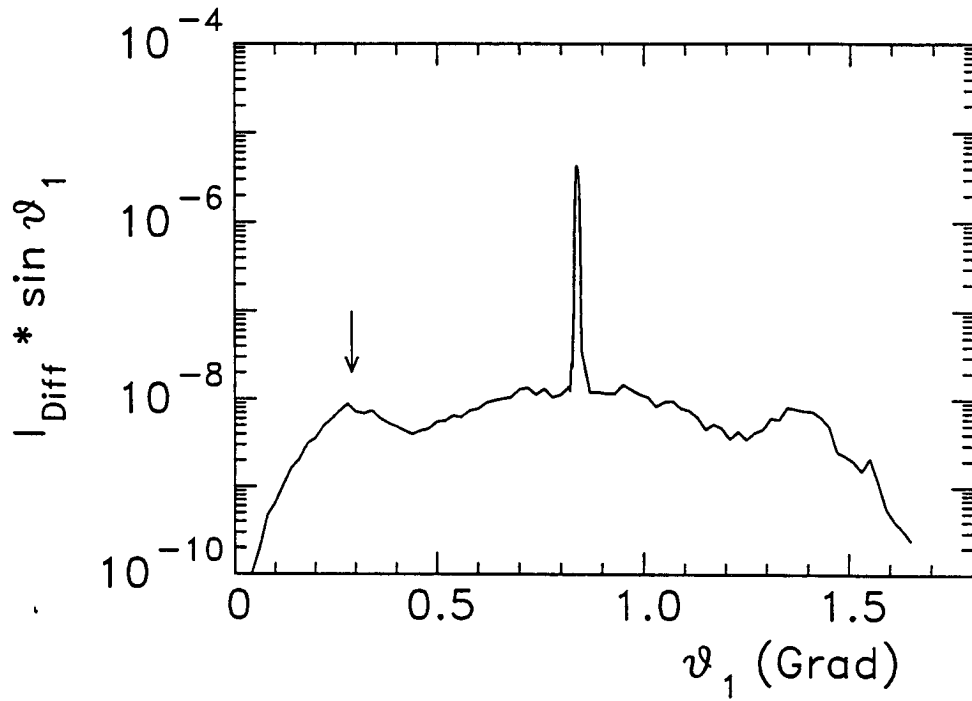


Abbildung 6.15: Der Untergrund bei 8048 eV zeigt charakteristische Eigenschaften der diffusen Streuung an Grenzflächenrauigkeiten. Messung für $\vartheta'_1 = 1.678^\circ$ an Probe E. Der Pfeil markiert den kritischen Winkel von GaAs.

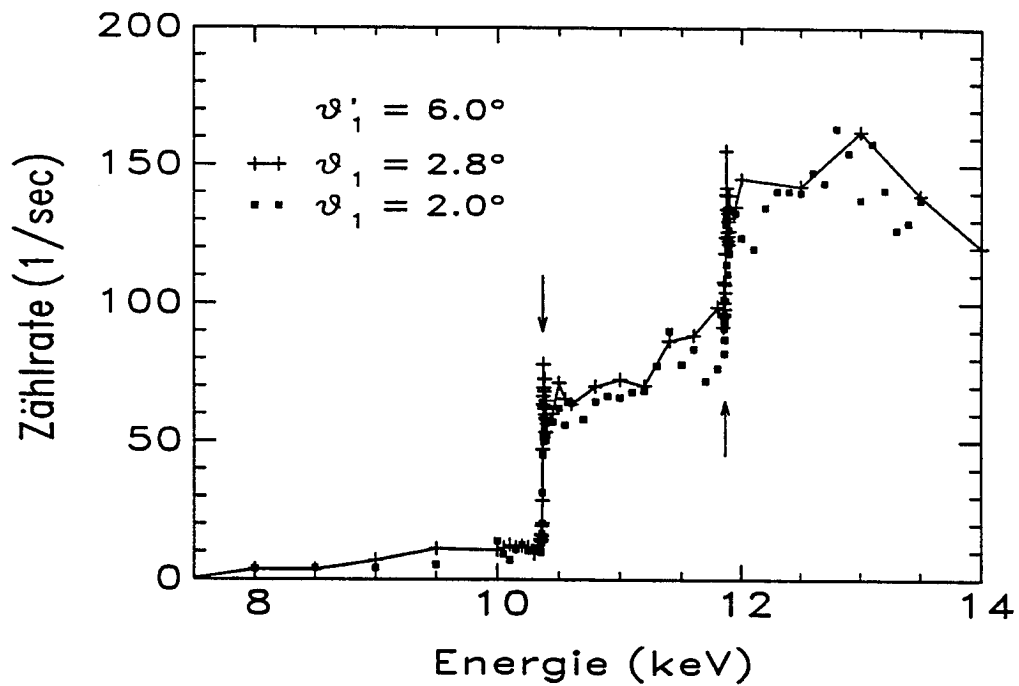


Abbildung 6.16: Messungen der nicht-spekularen Streuung in Abhängigkeit von der Photonenenergie an Probe E. Oberhalb der Ga-K-Kante dominiert Fluoreszenzstrahlung den Untergrund. Die Pfeile markieren die Lage der Ga- bzw. As-K-Kante.

ordnung an und verdoppelt sich noch einmal hinter der As-K-Kante. Der Untergrund bis zur Ga-K-Kante muß daher der diffusen Streuung an Grenzflächenrauigkeiten zugerechnet werden; die mit der Eröffnung neuer Absorptionskanäle einhergehende Fluoreszenzstrahlung ist jedoch wesentlich intensiver und dominiert bei Energien oberhalb der Kanten den Untergrund. Für die Fluoreszenz ist es ebenfalls typisch, daß die gemessene Intensität nur unwesentlich von der relativen Position des Detektors zur Probe abhängt. Der räumliche Öffnungswinkel des Detektors betrug bei diesen Messungen $4 \cdot 10^{-5}$ sterad.

Selbst die noch nicht um den Untergrund korrigierten Reflektivitätskurven aus Abb. 6.11 und 6.12 zeigen eine probenspezifischen Dämpfung der langperiodigen Oszillation. Der Vergleich mit Abb. 6.9 läßt daher unmittelbar den Schluß zu, daß die invertierte Grenzfläche von Probe E deutlich rauher ist als die von Probe B. Ein Fit der Meßdaten zur Quantifizierung dieser Aussage ist jedoch auf der Basis der nominellen Struktur $\text{GaAs}/\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ -Substrat nicht möglich. Das Problem besteht im "Abknicken" der experimentellen Reflektivitätskurven, die ab $Q_z \approx 0.15 \text{ \AA}^{-1}$ sehr flach verlaufen (s. Abb. 6.11 und 6.12). Dieser Knick ist teilweise von einem starken Rückgang der Reflektivität begleitet (Abb. 6.11), der auch nach Abzug des Untergrundes bestehen bleibt (Abb. 6.14). Er tritt in den Meßkurven aller Proben bei allen Photonenenergien auf (vgl. Abb. 6.18ff.) und fehlt in den simulierten Kurven völlig (vgl. Abb. 6.10 und 6.9). Simulationen zeigen, daß im Rahmen des nominellen Probenaufbaus beliebige Kombinationen von Schichtdicken und Grenzflächenrauigkeiten lediglich die Reflektivitätskurven aus Abb. 6.9 variieren, so daß die den Rechnungen zugrunde gelegte Probenstruktur unvollständig sein muß. Tatsächlich manifestiert sich hier indirekt das schon mittels Absorptionsspektroskopie (Abschnitt 6.1) nachgewiesene Oxid auf den Proben. Es besitzt einen anderen Brechungsindex als GaAs und führt wegen der geringen Schichtdicke zu einer weiteren, sehr ausgedehnten Dickenoszillation in der Reflektivität, von der nicht mehr als eine Periode beobachtbar ist.

Abb. 6.17 verdeutlicht anhand von Simulationen den Einfluß einer dünnen Oxidschicht auf die Reflektivität eines GaAs-Substrats. Alle Grenzflächen sind dabei als ideal glatt behandelt worden. Für die Oxidschicht wurde die chemische Zusammensetzung Ga_2O_3 angenommen. Die Dickenoszillationen der Oxidschicht bewirken in diesem einfachen Fall zuerst bei $\vartheta_1 = 0.8^\circ$ ($Q_z = 0.16 \text{ \AA}^{-1}$) eine starke Abweichung von der Reflektivität des Substrats, die sich - abhängig von der Massendichte des Oxids - in Form eines ausgeprägten Minimums oder einer Schulter äußert. Mittels Simulationsrechnungen kann auch für den komplizierteren Aufbau der hier untersuchten Proben nachvollzogen werden, daß ein solches Oxid im wesentlichen zu einer langwelligen Modulation der Reflektivitätskurven aus Abb. 6.9 führt und dabei den experimentell beobachteten abknickenden Verlauf der Kurven hervorruft. Die chemische Zusammensetzung des Oxids spielt dabei nur eine untergeordnete Rolle. Die qualitativen Aussagen zur separaten Bestimmung der Rauigkeiten behalten daher auch ihre Gültigkeit, wenn auf den Proben eine Oxidschicht vorliegt, die wesentlich dünner als die GaAs-Schicht ist.

Zur quantitativen Auswertung wurden den Meßdaten simulierte Reflexionskurven mittels "Least-Square-Fits" angepaßt, wobei die Quadratsumme mit den logarithmierten Reflektivitäten berechnet wurde. Den Rechnungen lag der modifizierte Probenaufbau $\text{Oxid}/\text{GaAs}/\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ -Substrat zugrunde; die Unterscheidung zwischen Puffer und Substrat konnte entfallen, weil sich selbst eine mäßig raue Grenzfläche

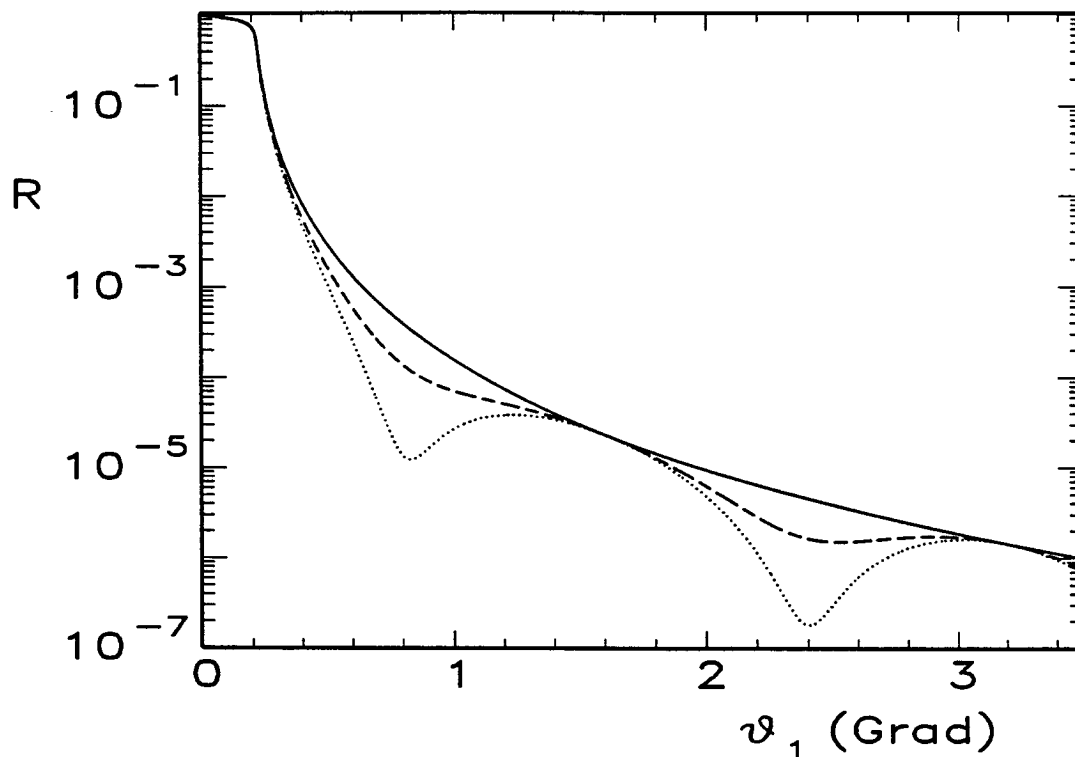


Abbildung 6.17: Einfluß einer dünnen Oxidschicht auf die Reflektivität von GaAs. Simulationen für 11100 eV-Photonen und ein ideales GaAs-Substrat (—) sowie mit 20 Å Ga_2O_3 der Dichte 4 g/cm³ (- - -) bzw. 3 g/cm³ (· · · · ·) darauf.

zwischen Puffer und Substrat in der Simulation nicht bemerkbar macht.

Das Fitprogramm verwendet die Routine VA05 der Harwell Library, in der ein Newton-Raphson- und ein Marquardt-Verfahren mit der Methode des steilsten Abstiegs kombiniert werden. Bei der Berechnung der Reflektivität wird jeder Schicht j ein Brechungsindex $n_j = 1 - \delta_j - i\beta_j$ und eine Dicke d_j sowie jeder Grenzfläche eine Rauigkeit σ_j zugeordnet (s. Abschnitt 3.2). δ_j und β_j enthalten nach Gl. (3.19) unter anderem die Massendichte und chemische Zusammensetzung der Schicht sowie die von der Photonenenergie E abhängigen Massenabsorptionskoeffizienten $\mu_\rho(E)$ der zugehörigen chemischen Elemente sowie die dispersiven Korrekturen $f'(E)$ der entsprechenden Atomformfaktoren.

Diese Parameter wurden bei den Fits bis auf die Massendichte des Oxids vorgegeben. Für die Massendichten der epitaktischen Schichten wurden aufgrund der hervorragenden Kristallinität die in Anhang B zusammengestellten Werte verwendet. Nach Abschnitt 6.1 wurde für die chemische Zusammensetzung des Oxids Ga_2O_3 (Proben B bis E) bzw. eine Mischung aus gleichen molaren Anteilen Ga_2O_3 und As_2O_5 (Probe A) angenommen (die Auswertung hängt jedoch hiervon nicht empfindlich ab). Die Zusammensetzung der $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -Schichten (Proben B bis E) war aus den in Abschnitt 6.2 beschriebenen Beugungsexperimenten bekannt. Für die Massenabsorptionskoeffizienten $\mu_\rho(E)$ von Ga und As wurden Werte von Kruzinski [1993] verwendet, welche die EXAFS-Feinstruktur von kristallinem GaAs enthalten. Die benutzten Werte von $\mu_\rho(E)$

für Al und O entsprechen denen freier Atome und entstammen dem Tabellenwerk von Veigele [1974]. Da diese Atome im Vergleich zu Ga und As nur wenig absorbieren, ist der dadurch entstehende Fehler zu vernachlässigen. Die dispersive Korrektur $f'(E)$ wurde für alle Elemente nach Cromer und Liberman [1970] bzw. Cromer [1983] berechnet, wobei der Beitrag höherer Multipole gemäß Kissel und Pratt [1990] berichtigt wurde.

Fitparameter waren die Schichtdicken von Oxid, GaAs und $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ sowie die Rauigkeiten der Oberfläche, der invertierten und der normalen Grenzfläche und die Dichte des Oxids. Die Anpassung von sieben Parametern an die Meßkurven ist nur sinnvoll, weil diese weitgehend entkoppelt sind und in der bereits beschriebenen charakteristischen Weise die stark strukturierten Reflexionskurven beeinflussen. Nicht entkoppelt sind dagegen die Dichte des Oxids und die Rauigkeit der Grenzfläche Oxid/GaAs, die beide die Amplitude der Oxidschicht-Dickenoszillation verändern. Da das Oxid nicht unbedingt in kompakter Form auf der Oberfläche vorliegen muß, wurde bei der Auswertung dessen Dichte variiert und die Rauigkeit der Grenzfläche zum GaAs zu Null gesetzt. Dies ist bei der Bewertung der angepaßten Dichten zu berücksichtigen.

Die weitgehende Entkopplung der Fitparameter kann nur ausgenutzt werden, wenn ein möglichst großer Teil der Meßkurve angepaßt wird, da beispielsweise der Einfluß der Rauigkeiten erst innerhalb eines ausgedehnten Winkelbereichs sichtbar wird. Die Abb. 6.18-6.25 zeigen Meßdaten und Fits im gesamten angepaßten Winkelbereich, der sich typischerweise vom kritischen Winkel bis zu den ersten mit Rauschen behafteten Oszillationen der korrigierten Meßkurve erstreckte. Die Glättung der Meßkurve aufgrund der Probenkrümmung war fast immer zu vernachlässigen (s.o.); lediglich bei Probe E wurden aus diesem Grund die experimentellen Daten erst ab einem höheren Einfallswinkel angepaßt.

Die Fits stellen für *jeden* der sieben Parameter ein Minimum der Quadratsumme dar, das mittels einer aufeinanderfolgenden Anpassung der einzelnen Parameter erreicht wurde. Jede neue Anpassung berücksichtigte das Ergebnis der vorherigen, wobei nach dem siebten Parameter wieder mit dem ersten begonnen wurde. Die automatisierte Prozedur benötigte häufig einige Iterationen dieser Sequenz, bis sich an den Ergebnissen nichts mehr änderte. Dieses auf den ersten Blick umständliche Verfahren lieferte erstaunlich gute Ergebnisse, die nicht von der Reihenfolge der Parameter innerhalb der Sequenz abhingen (bei einer ungünstigen Reihenfolge dauerte es lediglich länger bis zur Selbstkonsistenz). Zum einen berücksichtigte es die schwache gegenseitige Beeinflussung der Fitparameter, zum anderen reduzierte es drastisch die Abhängigkeit der Ergebnisse von den Startwerten. Eine gleichzeitige Variation aller Fitparameter führte immer auf eine schlechtere Anpassung und hing zudem wesentlich empfindlicher von den Startwerten ab.

Die Ergebnisse der Anpassungen sind in den Tabellen 6.4-6.7 zu finden. Für die beiden unterschiedlichen Photonenenergien ergeben sich gut übereinstimmende Fitparameter, wobei die Schwankungen der einzelnen Parameter eine Abschätzung des statistischen Fehlers erlauben. Typischerweise variieren die Schichtdicken um $\pm 1 \text{ \AA}$ und die Rauigkeitsparameter σ um $\pm 0.2 \text{ \AA}$. Die Dichte des Oxids schwankt maximal um 3.2 %.

Systematische Fehler sind u.a. durch die Genauigkeit des Winkels ϑ_1 und der vorgegebenen Materialparameter bedingt. Für diese Größen gilt: Der Einfallswinkel ist nach Abschnitt 4.2 auf $\pm 0.001^\circ$ genau bestimmt. Der Fehler in den

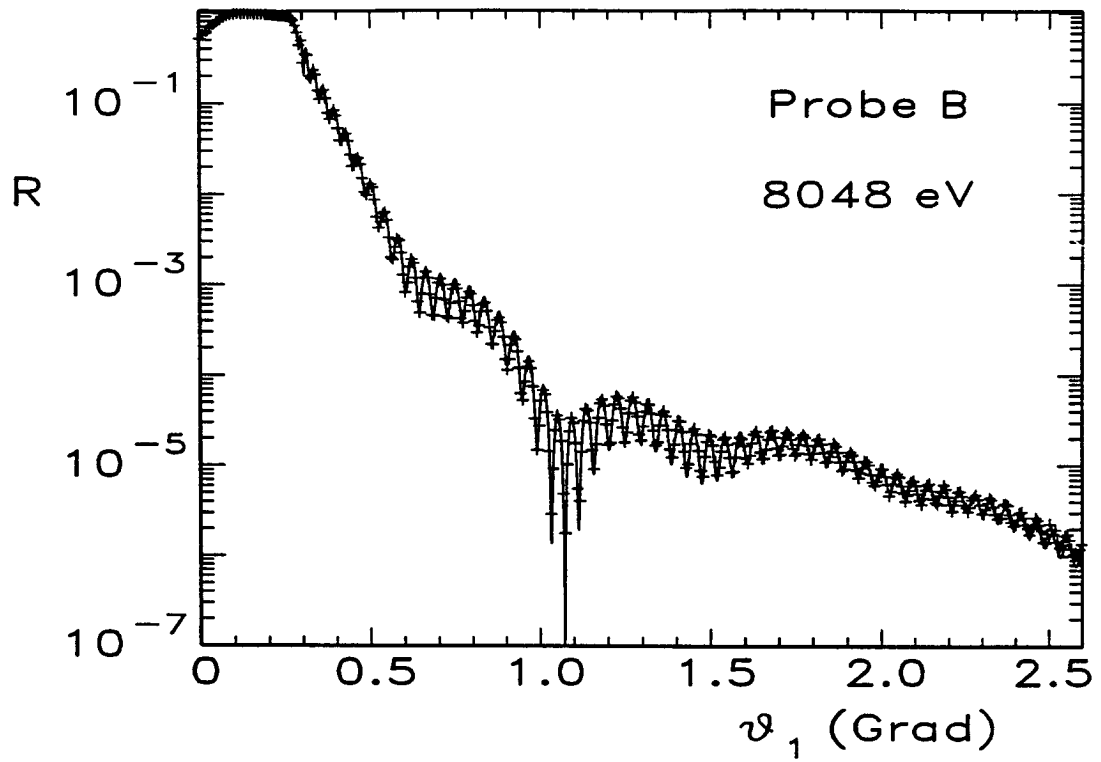


Abbildung 6.18: Um den Untergrund korrigierte Reflektivität $R(\vartheta_1)$ von Probe B für 8048 eV-Photonen (+) und Fit (—).

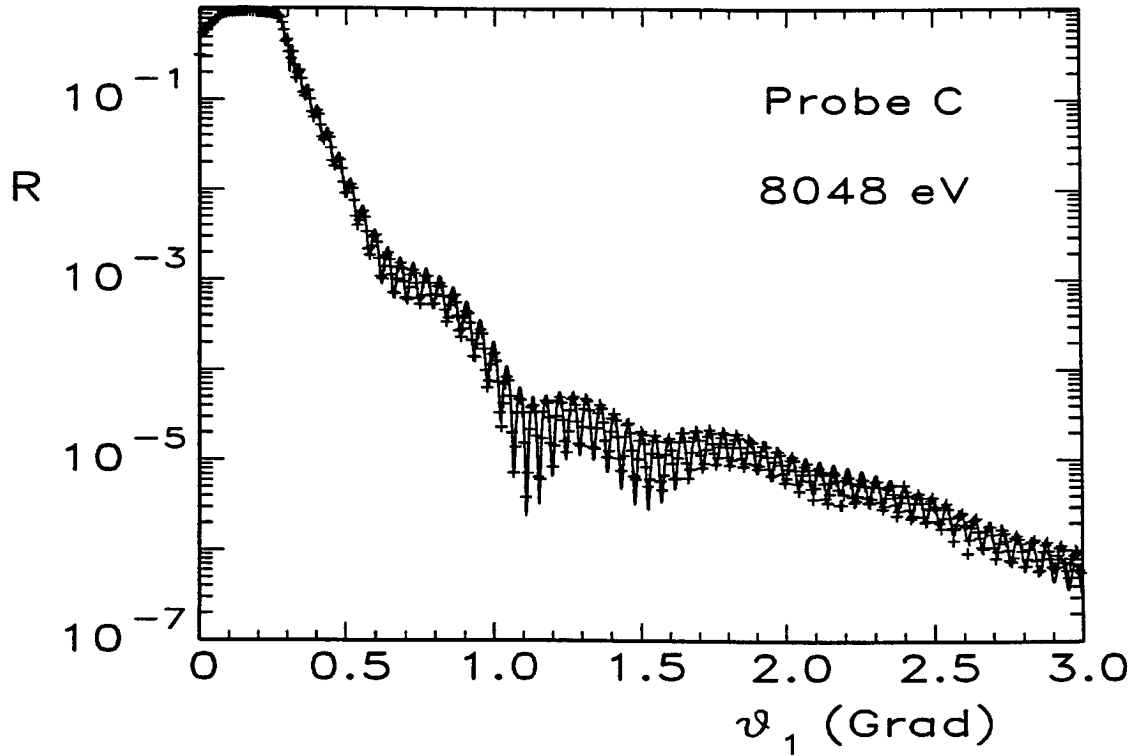


Abbildung 6.19: Wie Abb. 6.18, jedoch für Probe C.

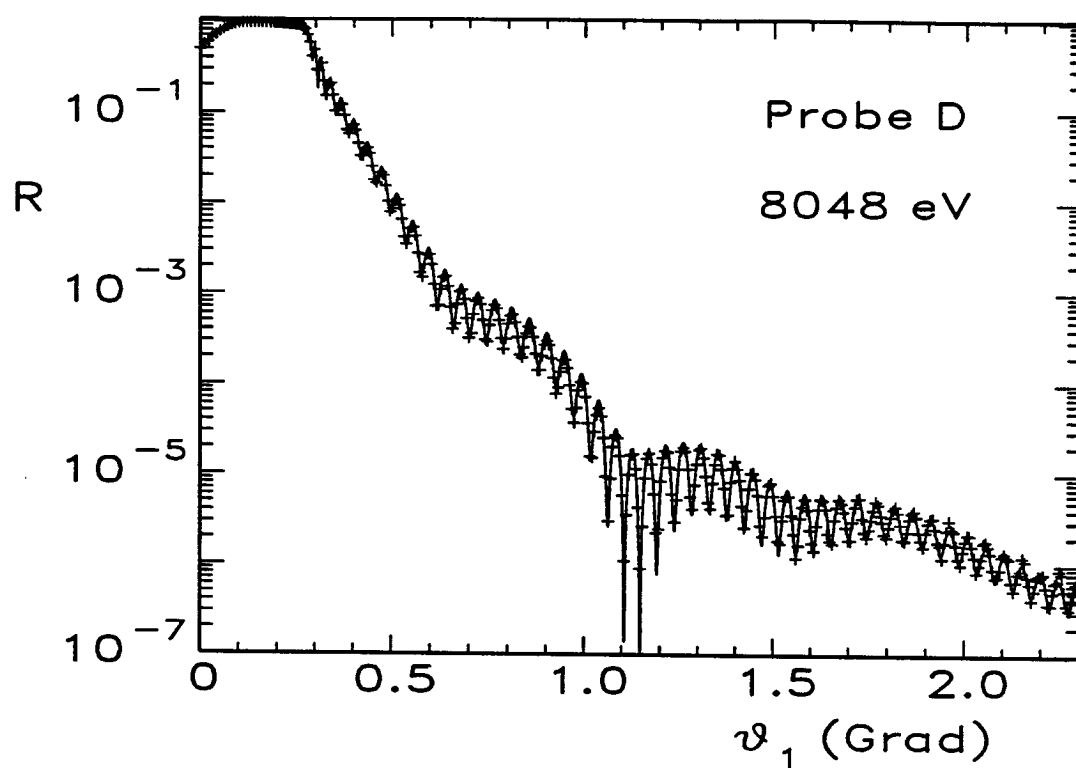


Abbildung 6.20: Wie Abb. 6.18, jedoch für Probe D.

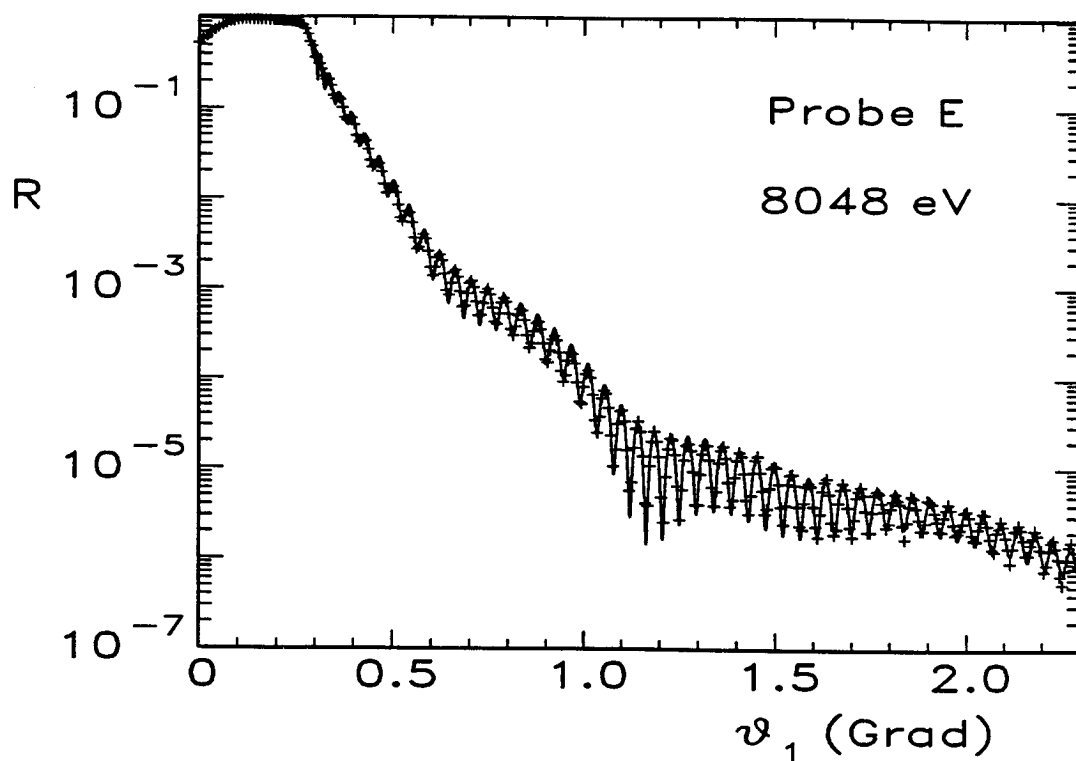


Abbildung 6.21: Wie Abb. 6.18, jedoch für Probe E.

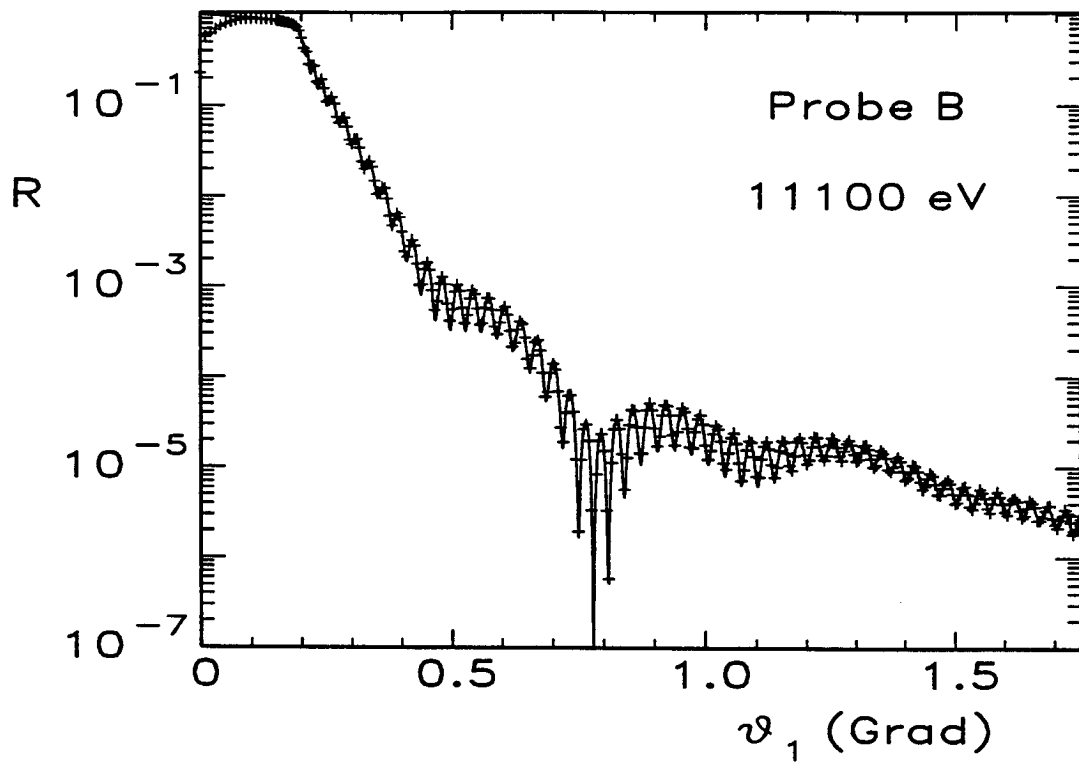


Abbildung 6.22: Um den Untergrund korrigierte Reflektivität $R(\vartheta_1)$ von Probe B für 11100 eV-Photonen (+) und Fit (—).

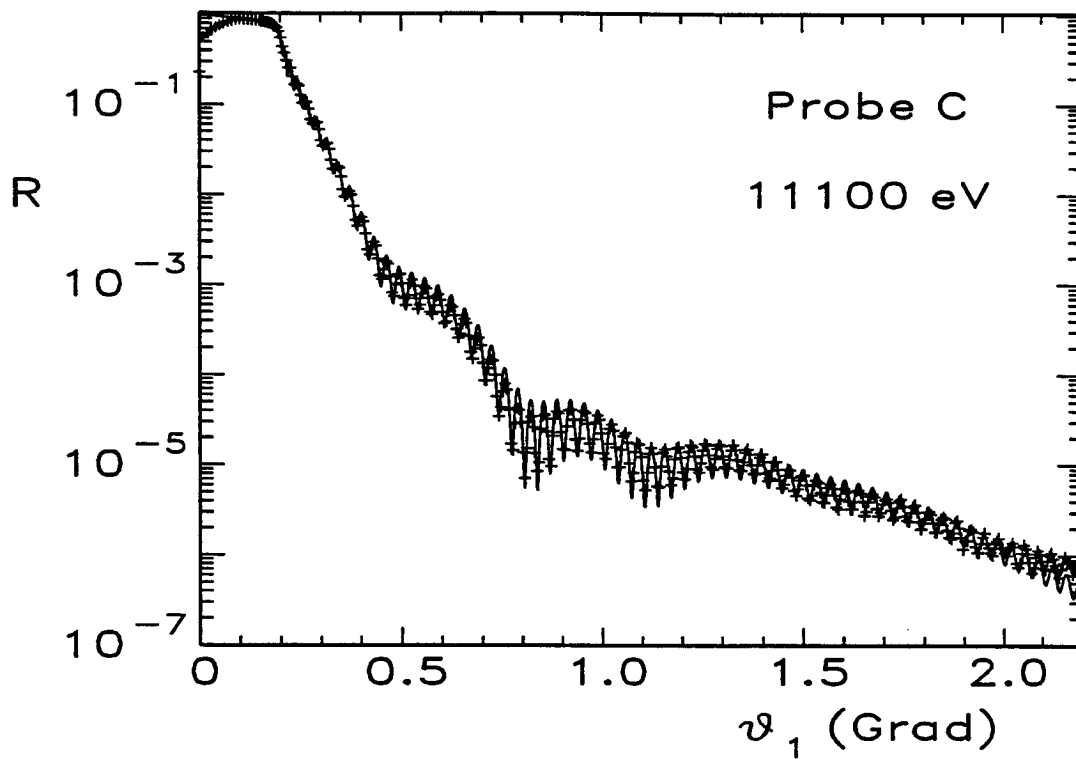


Abbildung 6.23: Wie Abb. 6.22, jedoch für Probe C.

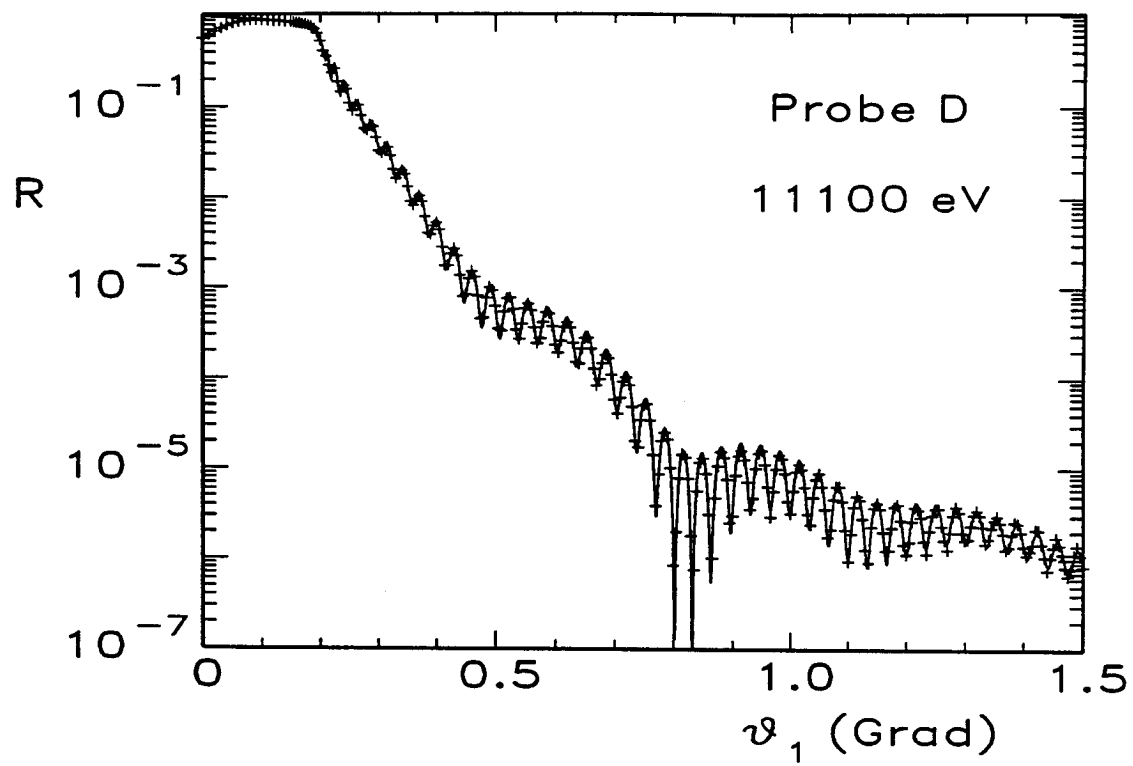


Abbildung 6.24: Wie Abb. 6.22, jedoch für Probe D.

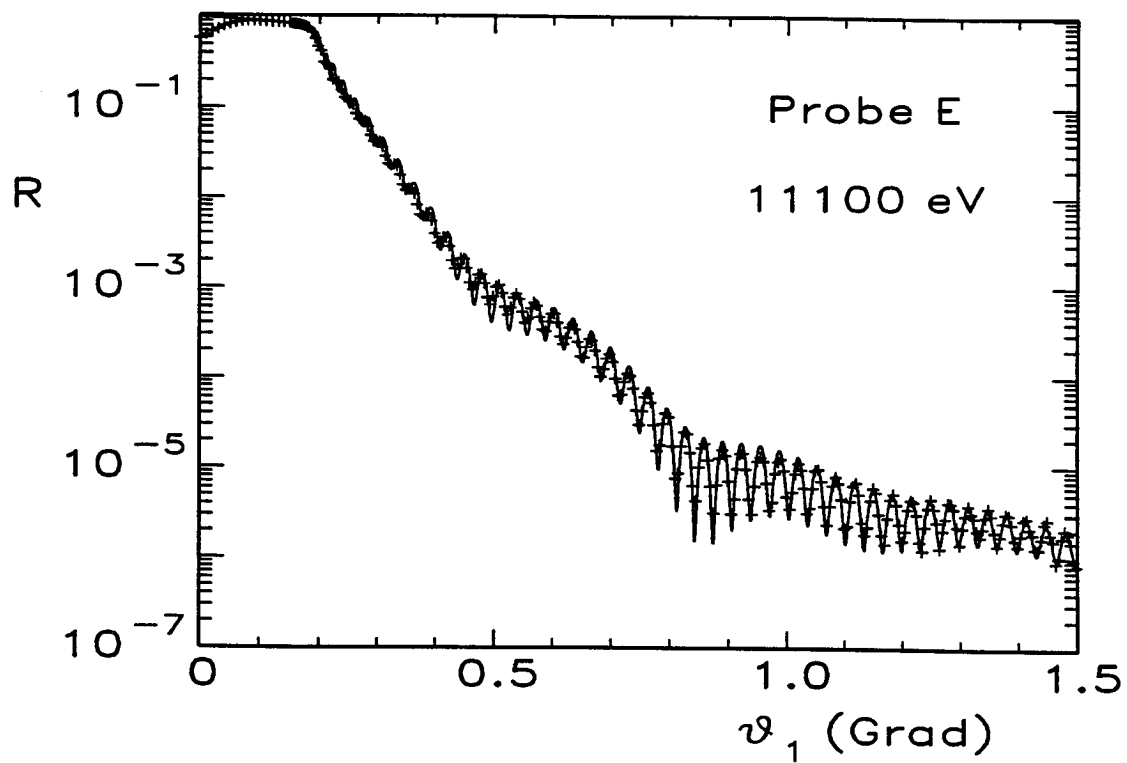


Abbildung 6.25: Wie Abb. 6.22, jedoch für Probe E.

	Oxid			GaAs		AlGaAs	
E (eV)	σ_0 (Å)	d_0 (Å)	ρ_0 ($\frac{\text{g}}{\text{cm}^3}$)	d_1 (Å)	σ_1 (Å)	d_2 (Å)	σ_2 (Å)
8048	5.4	22	3.79	65	6.2	871	5.1
11100	5.5	21	3.67	65	6.4	871	5.2

Tabelle 6.4: Ergebnisse der Anpassungen für Probe B.

	Oxid			GaAs		AlGaAs	
E (eV)	σ_0 (Å)	d_0 (Å)	ρ_0 ($\frac{\text{g}}{\text{cm}^3}$)	d_1 (Å)	σ_1 (Å)	d_2 (Å)	σ_2 (Å)
8048	4.7	19	3.83	66	6.9	842	3.9
11100	4.7	18	3.84	66	7.3	841	4.3

Tabelle 6.5: Ergebnisse der Anpassungen für Probe C.

Massenabsorptionskoeffizienten von Ga und As wird von Kruzinski [1993] mit $\pm 3\%$ angegeben; dieser Fehler wird auch für die Werte von $\mu_\rho(E)$ der anderen Elemente angenommen. Da nicht in unmittelbarer Nähe einer Absorptionskante gemessen wurde, sollte $f'(E)$ auf ± 0.5 Elektronen zuverlässig sein. Der mittels Beugung bestimmte Al-Gehalt x der $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -Schichten ist nach Abschnitt 6.2 mit einem systematischen Fehler von ± 0.02 behaftet. Die Fortpflanzung dieser Fehler wurde numerisch ermittelt, indem bei der Anpassung von Reflexionskurven entsprechend abgeänderte Eingangsgrößen verwendet wurden. Dies führte auf einen systematischen Fehler der Schichtdicken von ± 5 Å und der Rauigkeiten von ± 0.5 Å. Der systematische Fehler der Oxid-Dichte ist relativ groß, da diese Größe mit der Rauigkeit der Grenzfläche Oxid/GaAs gekoppelt ist, die bei der Fitprozedur zu Null gesetzt wurde. Simulationen zeigen, daß eine Rauigkeit dieser Grenzfläche von $\sigma = 5$ Å ca. 20 % geringere Dichten ergibt.

	Oxid			GaAs		AlGaAs	
E (eV)	σ_0 (Å)	d_0 (Å)	ρ_0 ($\frac{\text{g}}{\text{cm}^3}$)	d_1 (Å)	σ_1 (Å)	d_2 (Å)	σ_2 (Å)
8048	8.4	22	4.34	60	8.5	848	6.2
11100	8.5	20	4.27	62	8.3	848	6.4

Tabelle 6.6: Ergebnisse der Anpassungen für Probe D.

	Oxid			GaAs		AlGaAs	
E (eV)	σ_0 (Å)	d_0 (Å)	ρ_0 ($\frac{\text{g}}{\text{cm}^3}$)	d_1 (Å)	σ_1 (Å)	d_2 (Å)	σ_2 (Å)
8048	7.1	19	4.23	61	9.5	877	5.6
11100	7.8	19	4.27	60	9.6	879	6.0

Tabelle 6.7: Ergebnisse der Anpassungen für Probe E.

Korrigiert man die Reflektivität nicht um den in spekularer Richtung gestreuten Untergrund, tritt ein weiterer systematischer Fehler auf. Die Auswertung nicht korrigierter Meßdaten der Proben B bis E ergab um ungefähr 10 % reduzierte Oxid-Dichten bei praktisch unveränderten Schichtdicken. Der Einfluß auf die Rauigkeitsparameter ist am größten. Die Oberflächenrauigkeiten σ_0 fielen 1-2 Å geringer aus, weil die nicht korrigierten Meßkurven mit steigendem Einfallswinkel langsamer abfallen. Für die inneren Grenzflächen ergaben sich dagegen tendenziell größere Rauigkeiten (s. Tabelle 6.8); dies gilt insbesondere für die normale Grenzfläche, weil deren Rauigkeit unmittelbar mit der Amplitude der kurzperiodigen Oszillation zusammenhängt.

Probe	B		C		D		E	
	GaAs	AlGaAs	GaAs	AlGaAs	GaAs	AlGaAs	GaAs	AlGaAs
E (eV)	σ_1 (Å)	σ_2 (Å)	σ_1 (Å)	σ_2 (Å)	σ_1 (Å)	σ_2 (Å)	σ_1 (Å)	σ_2 (Å)
8048	6.3	5.1	7.9	4.0	8.6	6.3	9.9	5.8
11100	6.4	5.7	7.6	5.1	8.7	7.3	9.8	7.2

Tabelle 6.8: Rauigkeit der invertierten und normalen Grenzfläche aus einer Anpassung der Meßdaten *ohne* Untergrundkorrektur.

Bei der Auswertung der Reflexionskurven von Probe A wurde wie bei den anderen Proben vorgegangen. Da hier auch bei einer Photonenenergie von 12150 eV gemessen wurde, bei der nach Abb. 6.16 ebenfalls die As-Fluoreszenz zum Untergrund beiträgt, war die Korrektur um den in spekularer Richtung gestreuten Untergrund besonders wichtig. Alle in den Abb. 6.26-6.29 dargestellten Meßkurven sind bereits korrigiert worden. An dieser Probe läßt sich der Einfluß der Oxidschicht besonders deutlich zeigen, da mittels Röntgenbeugung die sehr gute Übereinstimmung von realer und nomineller Probenstruktur nachgewiesen wurde (vgl. Abb. 6.8). Die Annahme einer Oxidschicht ist essentiell, um die experimentellen Daten vollständig anpassen zu können.

Abb. 6.26 zeigt die bestmögliche Anpassung der Schichtdicken und Rauigkeiten für den nominellen Aufbau der Probe. Die stark strukturierte Reflexionskurve wird ab ca. 2° sehr gut angepaßt, jedoch kann der Einbruch der Reflektivität bei 1° ohne eine Erweiterung des Strukturmodells nicht simuliert werden. Abb. 6.27 zeigt dagegen, daß die Annahme einer Oxidschicht eine sehr gute Anpassung der gesamten Meßkurve ermöglicht. Für das Oxid wurde eine Mischung aus Ga₂O₃ und As₂O₅ angenommen (s.o.). Nimmt man ein nur aus Ga₂O₃ bestehendes Oxid an, ändert sich lediglich die Dichte des Oxids von 3.54 g/cm³ auf 3.57 g/cm³; die zugehörigen Fits unterscheiden sich praktisch nicht. Die von der Oxidschicht bewirkte Dickenoszillation tritt in den Abb. 6.28 und 6.29 sehr deutlich hervor (vgl. mit Abb. 6.17). Tabelle 6.9 faßt die Ergebnisse der Fits zusammen.

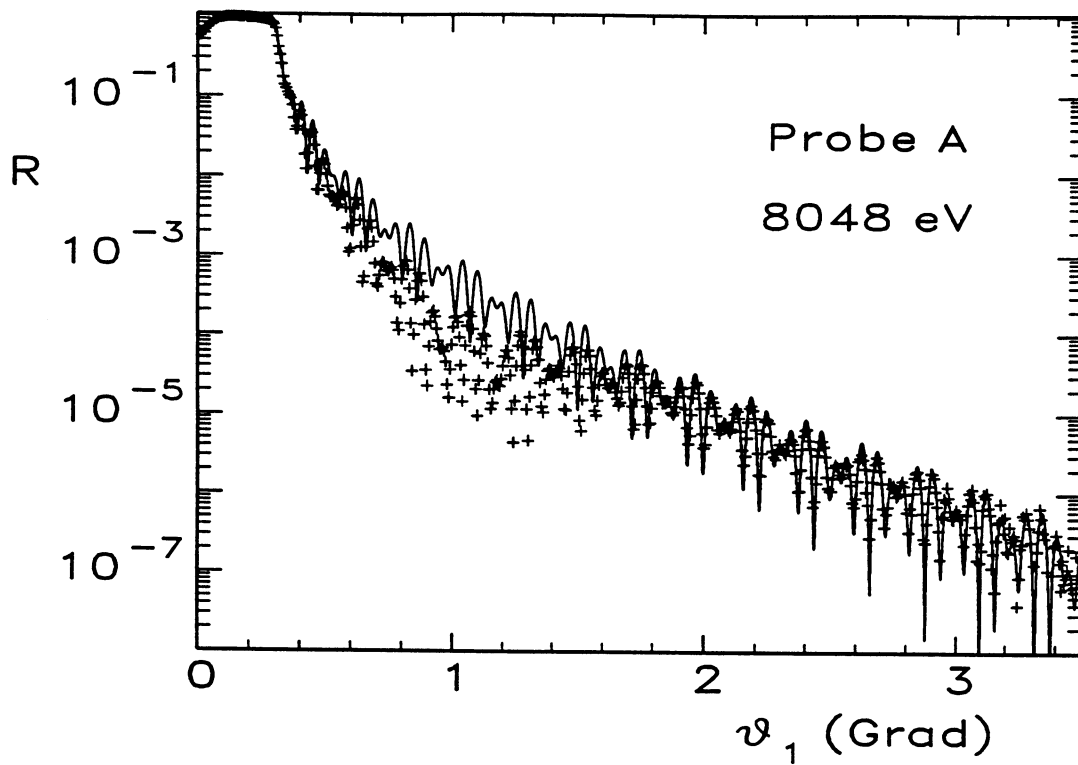


Abbildung 6.26: Um den Untergrund korrigierte Reflektivität $R(\vartheta_1)$ von Probe A für 8048 eV-Photonen (+) und Fit (—) auf der Basis der nominellen Probenstruktur ohne Oxidschicht. Der Rückgang der Reflektivität bei $\vartheta_1 = 1^\circ$ kann mit keiner Parameterkombination simuliert werden.

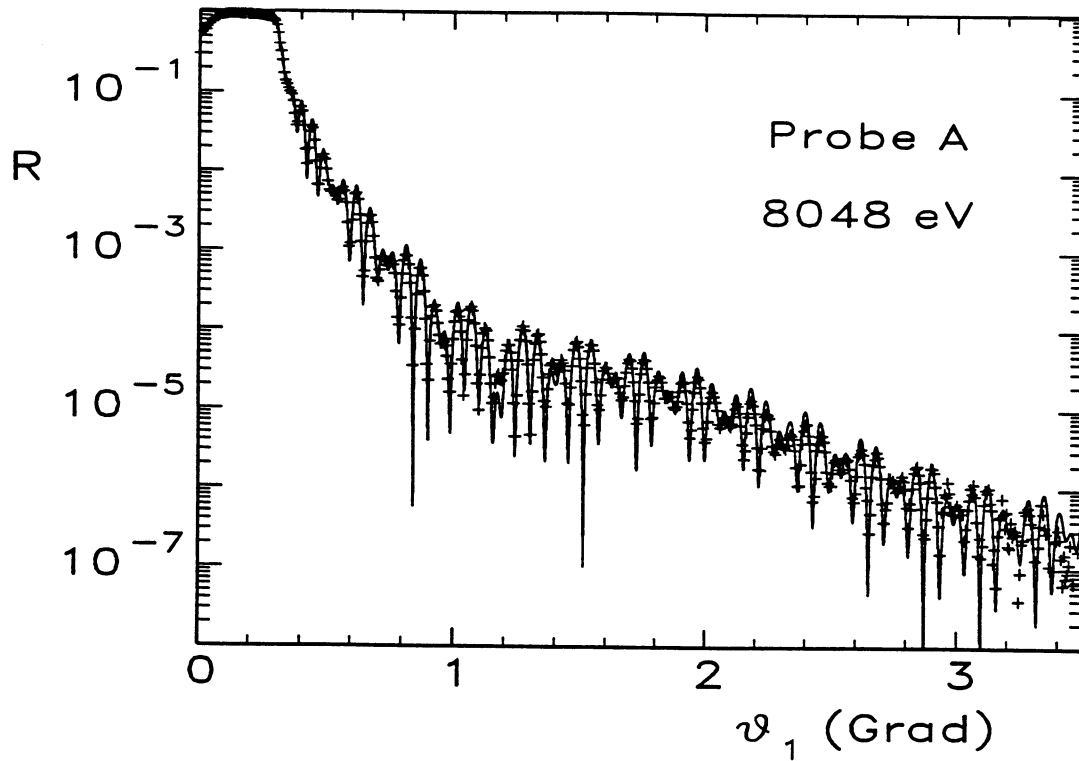


Abbildung 6.27: Wie Abb. 6.26, jedoch Erweiterung des Strukturmodells um eine Oxidschicht.

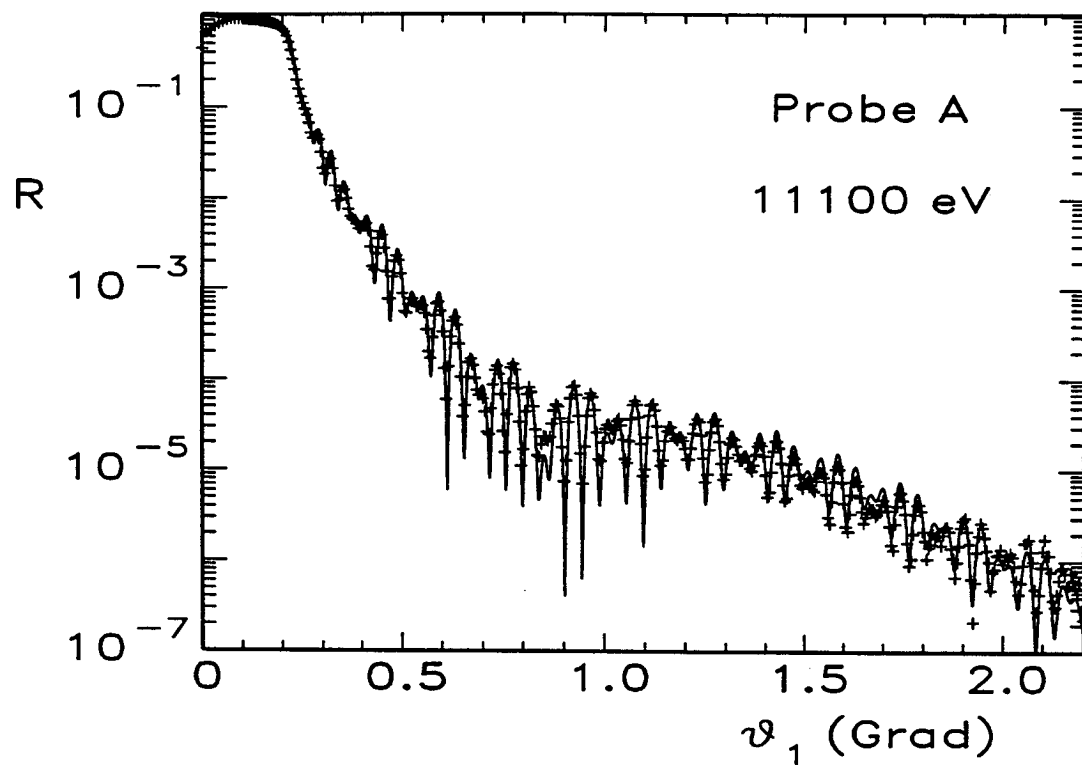


Abbildung 6.28: Um den Untergrund korrigierte Reflektivität $R(\vartheta_1)$ von Probe A für 11100 eV-Photonen (+) und Fit (—) unter Berücksichtigung der Oxidschicht.

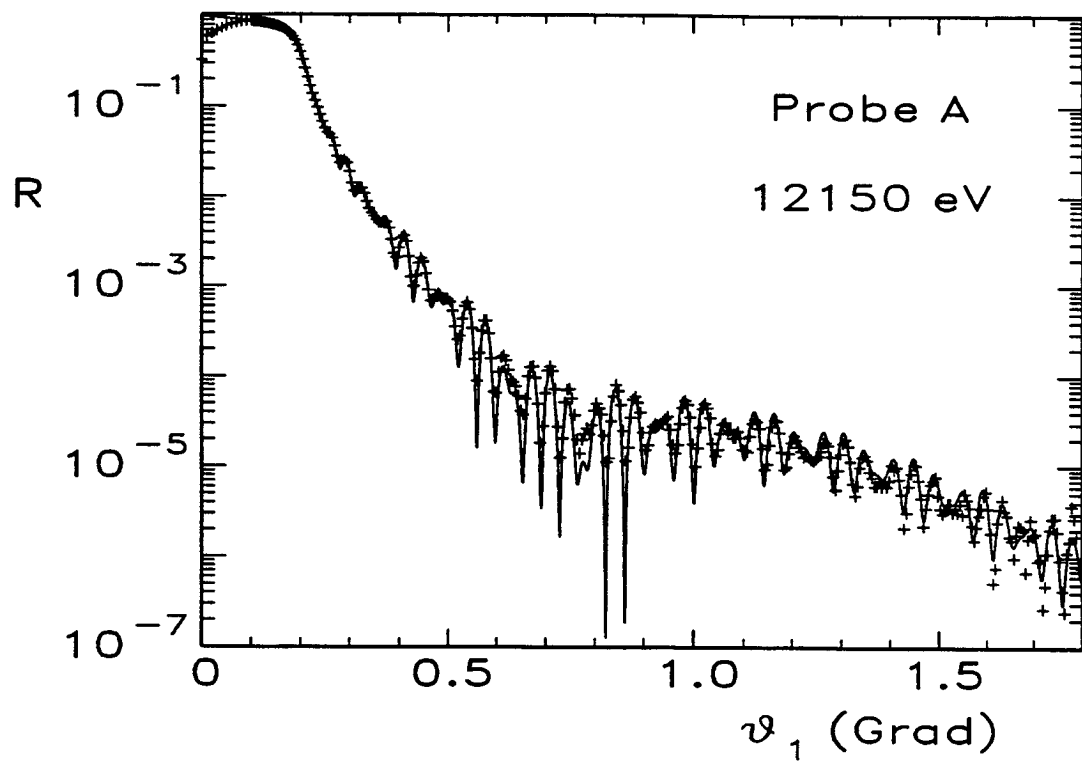


Abbildung 6.29: Wie Abb. 6.28, jedoch für 12150 eV-Photonen.

	Oxid			GaAs		AlAs	
E (eV)	σ_0 (Å)	d_0 (Å)	ρ_0 ($\frac{\text{g}}{\text{cm}^3}$)	d_1 (Å)	σ_1 (Å)	d_2 (Å)	σ_2 (Å)
8048	4.8	21	3.54	602	3.0	193	3.0
11100	4.6	21	3.47	602	3.8	192	3.9
12150	4.9	22	3.45	601	3.8	193	4.7

Tabelle 6.9: Ergebnisse der Anpassungen für Probe A.

Auffällig ist, daß die einzelnen Schichtdicken für unterschiedliche Photonenenergien sehr gut übereinstimmen, während die Rauigkeit der inneren Grenzflächen – verglichen mit den Ergebnisse für die Proben B bis E – relativ stark variiert. Dies liegt an der Struktur des Schichtsystems von Probe A, dessen GaAs- und AlAs-Schicht sich nur um einen Faktor 3 in der Dicke unterscheiden, wohingegen bei den übrigen Proben dieses Verhältnis bei 13 liegt. In diesem Fall konnte zumindest im Rahmen der beobachtbaren Reflektivität der Einfluß der einzelnen Rauigkeiten σ_1 und σ_2 nicht mehr separiert werden. Dies gilt nicht für die Oberflächenrauigkeit σ_0 , die sehr empfindlich auf den Abfall der mittleren Reflektivität reagiert. Für die Rauigkeit der inneren Grenzflächen ist daher ein systematischer Fehler von $\pm 2\text{Å}$ anzusetzen; Rauigkeiten außerhalb dieser Fehlergrenzen machen sich in den Simulationen durch zu stark oder zu schwach gedämpfte Oszillationen bemerkbar.

6.4 Diffuse Streuung unter streifendem Einfall

Diffuse Streuung wurde an allen Proben bei einer Photonenenergie von 8048 eV gemessen. Dabei wurde ein Schlitzdetektor mit einer vertikalen Öffnung von $75\text{ }\mu\text{m}$ verwendet, der sich in einem Abstand von 408 mm vom Drehzentrum des Goniometers befand. Als diffus gestreute Intensität I_{diff} wird im folgenden das auf die einfallende Intensität normierte Streusignal bezeichnet (vgl. Abschnitt 4.3.2). I_{diff} hängt über die Auflösungs-gleichung (4.11) mit der nicht-spekularen Reflektivität R_{diff} zusammen (s. Abschnitt 3.3).

Abb. 6.30 zeigt in einer vergleichenden Darstellung diffuse Streuung der Proben B bis E. Die im Meßmodus mit konstantem Einfallswinkel $\vartheta_1 = 0.5^\circ$ aufgenommenen Streuintensitäten sind als Funktion des Winkels θ'_1 zwischen Detektor und Probenoberfläche dargestellt⁷. Zunächst soll eine qualitative Beschreibung vorgenommen werden. Alle Streukurven zeigen einen ausgeprägten Yoneda-Peak bei $\theta'_1 \approx 0.3^\circ$. Die genaue Winkellage des Yoneda-Peaks ist schwer zu bestimmen, da dem mittleren Kurvenverlauf ab dieser Position ausgeprägte Oszillationen überlagert sind. Im Bereich zwischen 0.3° und 0.4° sind sowohl der Winkelabstand der Oszillationsminima als auch der Amplitudenhub (definiert als Verhältnis von maximaler zu minimaler Intensität) deutlich reduziert im Vergleich zum Bereich $\theta'_1 > 0.6^\circ$. Bei $\theta'_1 = 0.5^\circ$ überlagert der spekulare Reflex die diffuse Streuung.

Die experimentellen Kurven weisen signifikante Unterschiede in der Höhe der diffusen Streuung auf sowie einen unterschiedlich schnellen Abfall der Intensität mit steigendem Winkel θ'_1 . In dieser Hinsicht lassen sich die Proben in zwei Kategorien einteilen, die jeweils die Proben B und C bzw. D und E umfassen. Die Proben D und E zeigen das insgesamt höhere Streuniveau. Zeichnet man die zugehörigen Meßkurven übereinander, so ergeben sich für $\theta'_1 > 0.7^\circ$ vergleichbare mittlere Streukurven (die Oszillationen sind allerdings phasenverschoben); der Yoneda-Peak ist für Probe D jedoch höher als für Probe E. Die stärker verrauschten Messungen an den Proben B und C dokumentieren das geringere Streuniveau. Während der Yoneda-Peak für Probe B nur geringfügig höher liegt als für Probe C und auch bei $\theta'_1 \approx 0.6^\circ$ noch eine vergleichbare Intensität vorliegt, fällt die mittlere Streukurve von Probe C mit steigendem Winkel θ'_1 so schnell ab, daß sie ab $\theta'_1 = 1.1^\circ$ im Rauschen verschwindet. Auch hier sind die Oszillationen beider Meßkurven nicht in Phase. Die mittleren Streukurven der Proben B, D und E fallen (obschon auf unterschiedlichem Streuniveau) in vergleichbarer Weise mit steigendem Winkel ab.

Die Oszillationen der diffusen Streuung sind bei allen Proben eng mit den Oszillationen der (spekularen) Reflektivität verbunden, wie die Abb. 6.31 und 6.32 anhand der Proben B und D (stellvertretend für die beiden zuvor erwähnten Kategorien) belegen. Abb. 6.33 zeigt den entsprechenden Zusammenhang für Probe A. In diesen Abbildungen ist die Reflektivität bzw. die diffus gestreute Intensität in Abhängigkeit von der zur Oberfläche senkrechten Streuvektor-Komponente Q_z aufgetragen. Während dies für die Reflektivität nur eine andere Skalierung der Abszisse darstellt, handelt es sich für die diffuse Streuung um eine Projektion der Meßkurve auf die Q_z -Achse (vgl. Abb. 4.5 hinsichtlich der gekrümmten Linie, welche bei diesem Scanmodus im reziproken Raum

⁷Der Winkel θ'_1 hängt über die Beziehung $\theta'_1 = \vartheta'_1 - \vartheta_1$ mit dem Einfallswinkel ϑ_1 und dem Streuwinkel ϑ'_1 zusammen (vgl. Abschnitte 4.2 und 4.3).

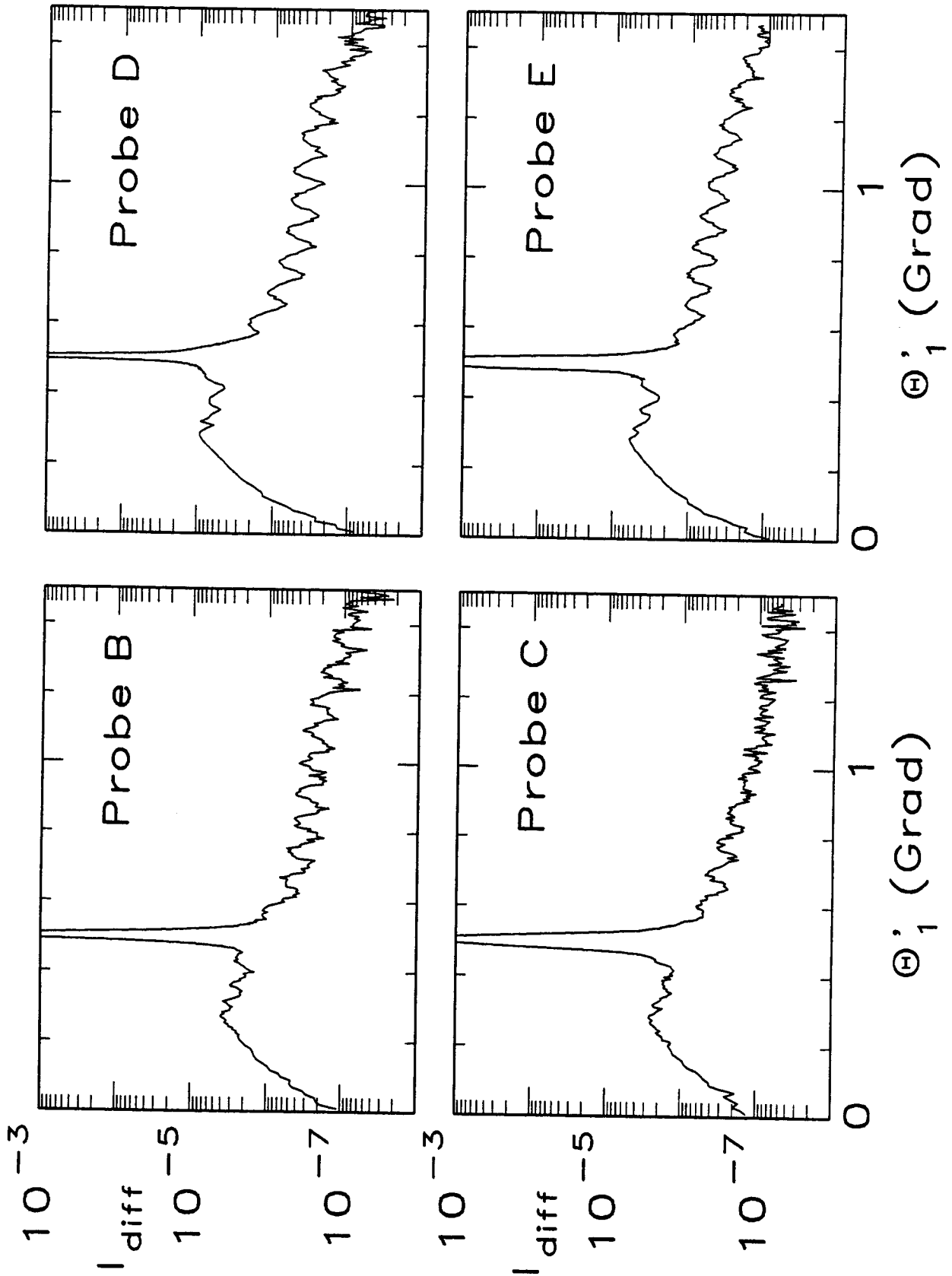


Abbildung 6.30: Bei konstantem Einfallswinkel $\vartheta_1 = 0.5^\circ$ gemessene diffus gestreute Intensität der Proben B bis E. θ'_1 bezeichnet den Winkel zwischen Detektor und Probenoberfläche.

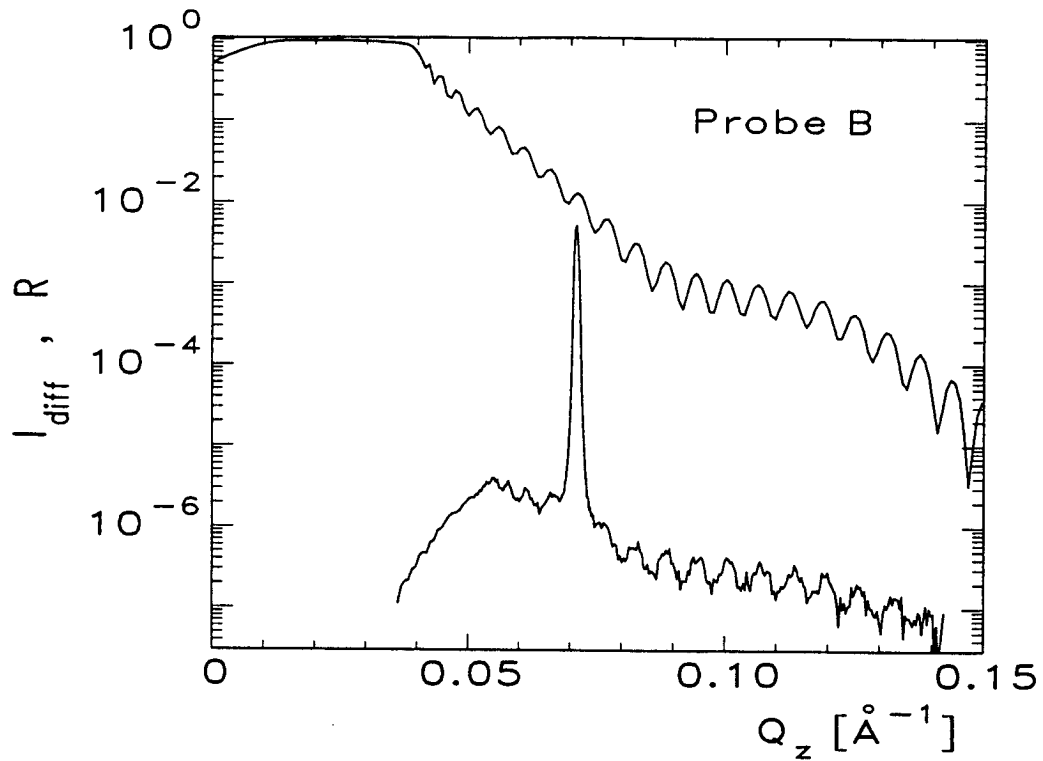


Abbildung 6.31: Spekulare Reflektivität und diffuse Streuung der Probe B als Funktion der (zur Oberfläche senkrechten) Streuvektor-Komponente Q_z . Die Oszillationen der diffusen Streuung entsprechen für größere Q_z den Oszillationen der Reflektivität.

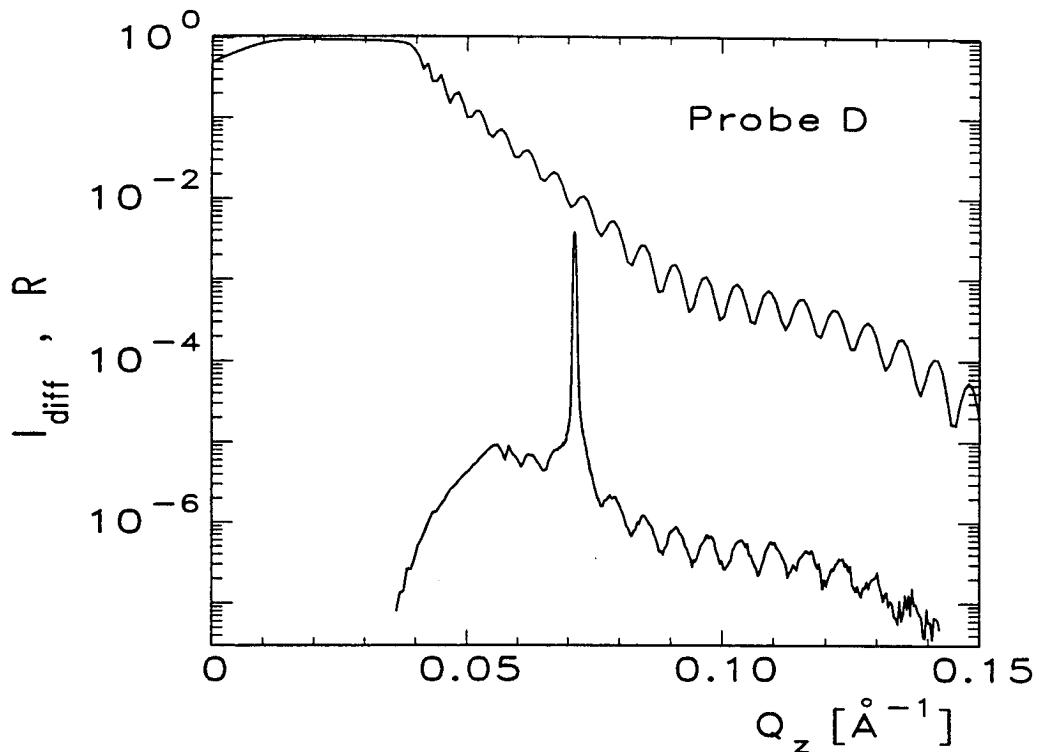


Abbildung 6.32: Spekulare Reflektivität und diffuse Streuung der Probe D als Funktion der Streuvektor-Komponente Q_z . Auch hier entsprechen für größere Q_z die Oszillationen der diffusen Streuung den Oszillationen der Reflektivität.

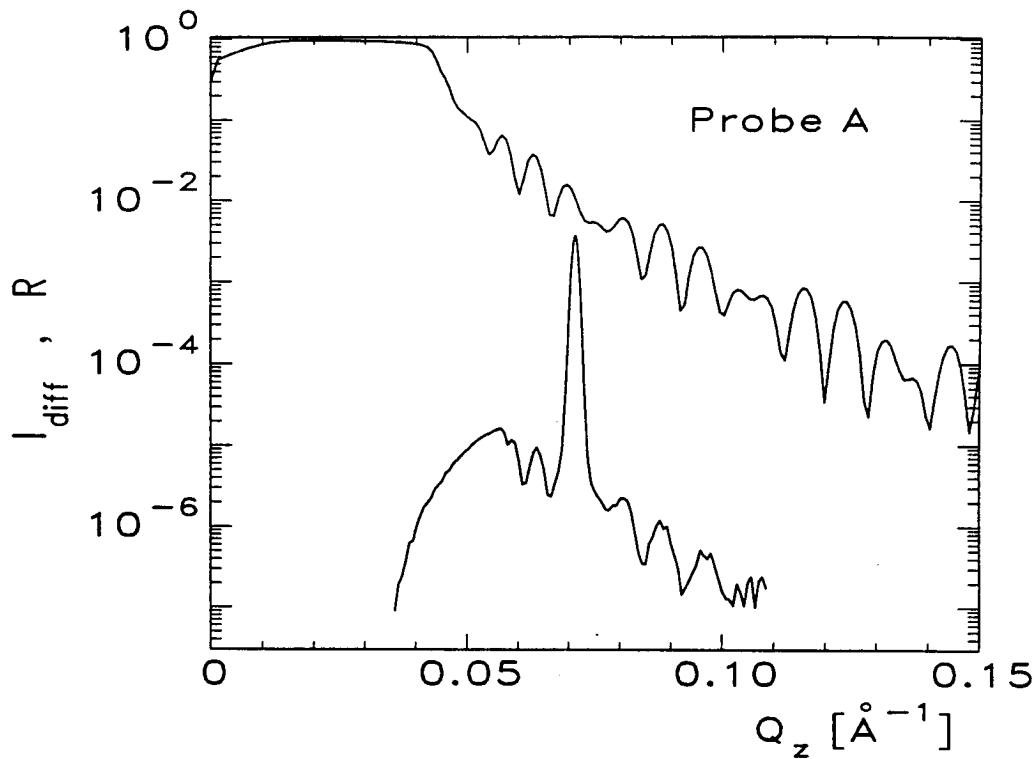


Abbildung 6.33: Spekulare Reflektivität und diffuse Streuung der Probe A als Funktion der Streuvektor-Komponente Q_z . Auch hier läßt sich eine Korrespondenz der Oszillationen feststellen.

beschrieben wird). Aufgrund der kleineren Detektorblende liegt der spekulare Reflex in der diffusen Streuung stets unterhalb der Reflektivitätskurve.

In den Abb. 6.31-6.33 können ab $Q_z = 0.065 \text{ \AA}^{-1}$ die Oszillationen der diffusen Streuung eindeutig den Dickenoszillationen der Reflektivitätskurve zugeordnet werden. Die Positionen der Oszillationsmaxima und -minima stimmen – soweit nicht in der diffusen Streuung vom spekularen Reflex überdeckt – sehr gut überein, und für $Q_z > 0.08 \text{ \AA}^{-1}$ sind der Amplitudenhub von Reflektivitäts- und Streukurve identisch. Daß die Oszillationen in den Streukurven verschiedener Proben phasenverschoben erscheinen, spiegelt daher nur die unterschiedlichen Dickenoszillationen der zugehörigen Reflektivitätskurven wider. Diese unterscheiden sich, weil im wesentlichen die AlGaAs-Schichtdicke der einzelnen Proben variiert (s. Abschnitt 6.3). Da diese Variation unterhalb von 5 % liegt, erwecken die wenigen in der Streukurve erscheinenden Oszillationen zunächst den Eindruck einer phasenverschobenen Oszillation gleicher Periode. Für diese Erklärung spricht auch, daß die Oszillationen der Streukurven von Probe B und E bzw. von Probe C und D gut übereinstimmen (auf die Darstellung der übereinander gezeichneten Meßkurven wird hier verzichtet). Bei diesen Probenpaaren liegen gemäß Abschnitt 6.3 vergleichbare AlGaAs-Schichtdicken vor.

Da die Oszillationen der diffusen Streuung die Dickenoszillationen des Schichtsystems abbilden, müssen sie auch Information über die Struktur der GaAs/AlGaAs-Grenzflächen enthalten. Ein vereinfachendes Modell zur diesbezüglichen Auswertung der Streumessungen wird weiter unten diskutiert.

Der Einfluß der Brechung auf die Struktur der Streukurve ist groß. Aufgrund der

Umkehrbarkeit des Lichtweges kann ein Detektor nur Signale aus einer Streutiefe von einigen 10 Å registrieren, falls der mit der Oberfläche eingeschlossene Winkel kleiner als der kritische Winkel ist (in dieser Hinsicht ist die Diskussion völlig analog zur Diskussion der Eindringtiefe in Kapitel 3). Im vorliegenden Fall ist ein kritischer Winkel nicht nur wegen der Absorption, sondern auch aufgrund der Präsenz einer Oxidschicht nicht gut definiert. Da jedoch nach Abschnitt 6.3 diese Schicht sehr dünn (ca. 20 Å) und deutlich weniger dicht als die folgende GaAs-Schicht ist, sollte im wesentlichen der kritische Winkel von GaAs zu beobachten sein (vgl. Abb. 6.17). Dies wird durch die Messungen bestätigt. Unterhalb des Yoneda-Peaks stammt daher in Abb. 6.30 das Streusignal von den Oxid-Grenzflächen; am Yoneda-Peak wächst die Streutiefe jedoch rasch an, so daß im weiteren Verlauf der Streukurve Oszillationen auftauchen. Oberhalb des Yoneda-Peaks wird das Erscheinungsbild der Oszillationen noch erheblich von der Brechung des ausfallenden Strahls bestimmt, die mit steigendem Detektorwinkel immer schwächer wird: Zwischen dem Yoneda-Peak und dem spekularen Reflex erscheint die Periode der Oszillationen stark reduziert, und bei genauer Betrachtung macht sich die Brechung auch in den Abb. 6.31 und 6.32 bemerkbar. Dort scheinen für $Q_z > 0.12 \text{ Å}^{-1}$ die Oszillationen von Reflektivitätskurve und Streukurve leicht außer Phase zu geraten. Dies ist eine Folge der unterschiedlichen Brechungsverhältnisse, unter denen die Kurven in diesem Bereich gemessen wurden. In der Nähe des spekularen Reflexes liegen fast identische Brechungsverhältnisse vor; dort stimmen die Positionen der Maxima und Minima sehr gut überein.

Da zur diffus gestreuten Intensität angesichts des Oxides auf den epitaktischen Schichten letztlich vier Grenzflächen beitragen, erfolgt die quantitative Auswertung der Streukurven im Rahmen eines vereinfachenden Modells, das die diffuse Streuung unterhalb des Yoneda-Peaks den Oxid-Grenzflächen und weit oberhalb den Grenzflächen der Heteroübergänge zuordnet. Dieses Modell basiert auf der Vorstellung, daß unabhängige Grenzflächen (im Sinne unkorrelierter Rauhigkeit) inkohärent streuen, während Grenzflächen mit korrelierter Rauhigkeit zu Interferenzen in der diffusen Streuung führen. Diese Interferenzen sollten für kleine Q_x die Oszillationen der Reflektivität mit derselben Q_z -Abhängigkeit nachzeichnen [Garoff et al. 1989]. Vollständig korrelierte Rauhigkeit liegt vor, wenn die Höhenkonturen benachbarter Grenzflächen identisch sind. Da die Oxidschicht erst nach Beendigung der Epitaxie durch Diffusion anwächst, sind deren Grenzflächen vermutlich nicht korreliert mit den Grenzflächen der Heteroübergänge. Andererseits ist es aufgrund des Lagenwachstums bei der Molekularstrahl-Epitaxie gut vorstellbar, daß die Rauhigkeiten von normaler und invertierter Grenzfläche korreliert sind.

Im folgenden wird daher die Annahme gemacht, daß sich die diffuse Streuung der Oxid-Grenzflächen und der GaAs/AlGaAs-Grenzflächen inkohärent überlagert. Die Oszillationen werden der diffusen Streuung von normaler *und* invertierter Grenzfläche zugerechnet. Da unterhalb des Yoneda-Peaks das Streusignal – unabhängig von speziellen Modellannahmen – nur von den Oxid-Grenzflächen stammt, erklärt sich der verringerte Amplitudenhub der ersten Oszillationen aus der inkohärenten Überlagerung mit der diffus gestreuten Intensität der Oxid-Grenzflächen. Der ab $Q_z = 0.08 \text{ Å}^{-1}$ identische Amplitudenhub von Reflektivitäts- und Streukurve wird folglich durch einen raschen Abfall der diffusen Streuung der Oxid-Grenzflächen gedeutet, so daß die weitere Streukurve von der diffusen Streuung der normalen und invertierten Grenzfläche dominiert

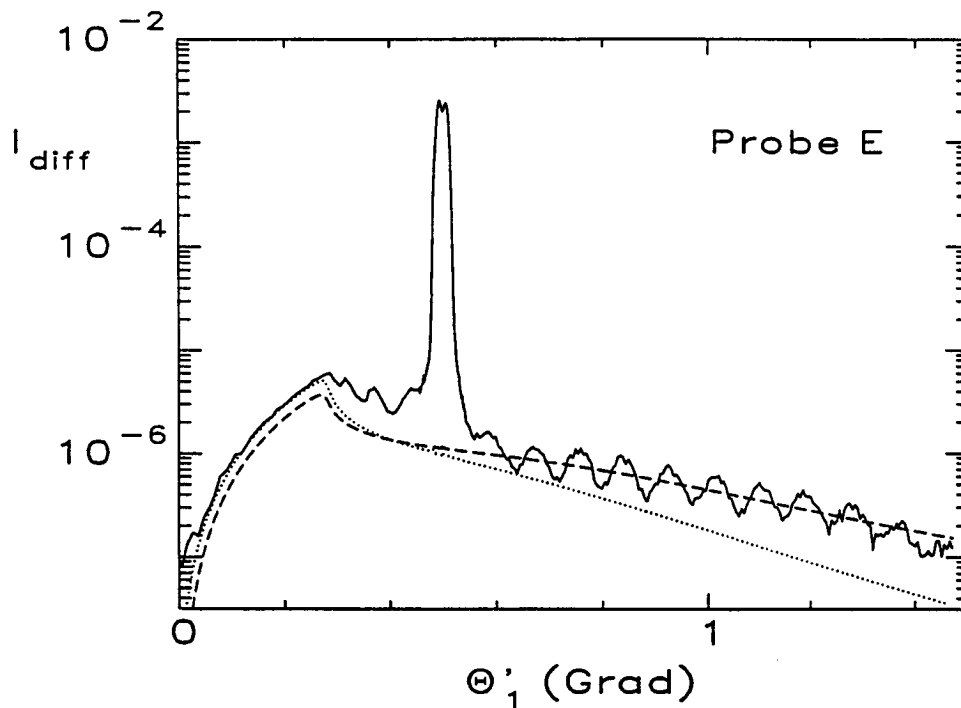


Abbildung 6.34: Modellvorstellung zur Auswertung der diffusen Streuung : Die gesamte Streuintensität ist gegeben durch die inkohärente Überlagerung der diffusen Streuung von Oxid- und GaAs/AlGaAs-Grenzflächen. Unterhalb von $\theta'_1 \approx 0.3^\circ$ ist nur die diffuse Streuung der Oxid-Grenzflächen beobachtbar (.....), ab $\theta'_1 \approx 0.7^\circ$ dominiert das Signal der Heteroübergänge (approximiert durch eine mittlere Streukurve (- - -)).

wird. Zur quantitativen Auswertung wurde in diesem Bereich eine mittlere Streukurve durch die Oszillationen gelegt. Die Parameter der Streukurve sind also gemittelte Werte für die normale und invertierte Grenzfläche. Angepaßt wurden die Korrelationslänge ξ und der Rauigkeitsexponent h bei fester vertikaler Rauigkeit σ . Da keine Vorschrift existiert, wie die vorzugebenden Parameter aus einer Mittelung über beide Grenzflächen hervorgehen, wurden mittlere Streukurven für die nachfolgend beschriebenen Grenzfälle angepaßt, um so ξ und h abzuschätzen. Die vertikalen Rauigkeiten von normaler und invertierter Grenzfläche sind aus der spekularen Reflektivität (Abschnitt 6.3) bekannt. Als effektive vertikale Rauigkeit der mittleren Streukurve wurden sowohl die einzelnen Rauigkeiten als auch deren Summe angesetzt. Diese konservative Abschätzung berücksichtigt die Möglichkeit einer Kumulation der Einzelrauigkeiten (z.B. eine quadratische Addition der(RMS-) Rauigkeiten) zu einer effektiven vertikalen Rauigkeit. Unabhängig davon wurden ebenfalls die optischen Konstanten variiert (GaAs bzw. $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$). In allen Fällen ließ sich eine mittlere Streukurve durch die Oszillationen legen; in der Nähe des Yoneda-Peaks- dort wurde nicht angepaßt (s.o.) – blieben die simulierten Streukurven stets unterhalb der experimentellen Daten, wie es die Konsistenz mit den der Auswertung zugrunde gelegten Annahmen auch erfordert. Abb. 6.34 zeigt eine typische an die Meßdaten angepaßte mittlere Streukurve

(der Einfachheit halber nicht oberhalb des Yoneda-Peaks, sondern ab $\theta'_1 = 0^\circ$ eingezeichnet). Die Abschätzung durch Grenzfälle bewirkt eine große Schwankungsbreite der Ergebnisse, die Tabelle 6.10 in Form des Mittelwertes und der Standardabweichung zusammenfaßt. Diese Resultate weisen Parallelen mit der qualitativen Beschreibung der

Probe	B	C	D	E
ξ [Å]	400 ± 300	80 ± 60	600 ± 300	600 ± 200
h	0.24 ± 0.05	0.15 ± 0.02	0.30 ± 0.08	0.44 ± 0.13

Tabelle 6.10: Mittlere Korrelationslängen und Rauigkeitsexponenten für die normale und invertierte Grenzfläche.

Meßdaten (für $\theta'_1 > 0.7^\circ$) auf : Korrelationslänge und Rauigkeitsexponent der Proben D und E sind innerhalb der (allerdings weit gesteckten) Fehlergrenzen identisch, und Probe B scheint eher mit diesen als mit Probe C vergleichbar zu sein. Das geringere Streuniveau von Probe B und C scheint eine Folge der geringeren vertikalen Rauigkeiten und insbesondere bei Probe C der kleineren Korrelationslänge zu sein. Diese Probe weist auch den kleinsten Rauigkeitsexponenten mit der geringsten Streuung auf, was am steilen Abfall der Meßkurve mit steigendem Winkel θ'_1 liegt.

Mit obiger Tabelle kann die mittlere Terrassengröße beim Schichtwachstum unter Verwendung von Gl. (A.17) abgeschätzt werden. Dabei dominiert die Korrelationslänge das Ergebnis, da die Herleitung von (A.17) einen Vorfaktor der Größenordnung 1 offen läßt, welcher sich im wesentlichen mit dem Nenner kompensiert, weil die einzusetzende Rauigkeit in Einheiten der Gitterkonstanten anzugeben ist. Diese Rechnung erlaubt selbstverständlich nur Rückschlüsse auf die Größenordnung der Terrassengröße, die aufgrund des kleinen Exponenten h für Probe C einige 10 Å beträgt, während sich für die anderen Proben einige 100 Å ergibt.

Für die Grenzflächen der Oxidschicht ist eine entsprechende Diskussion nicht möglich, weil die quantitative Auswertung der Streukurven unterhalb des Yoneda-Peaks aufgrund zu vieler freier Parameter nicht sinnvoll erschien : Zu den bereits für die GaAs/AlGaAs-Grenzflächen diskutierten Problemen kommt hinzu, daß aus den Messungen der spekularen Reflektivität keine vergleichbar präzise Aussage über die vertikale Rauigkeit *beider* Oxid-Grenzflächen folgt (s. Abschnitt 6.3). Es ist jedoch für die gesamte Auswertung wichtig zu überprüfen, ob es überhaupt sinnvolle Parameter gibt, die die diffuse Streuung dieser Grenzflächen *konsistent* mit den Modellannahmen beschreiben. Simulationen ergaben, daß solche Parameter existieren; bei einer unterhalb von 20 Å angesetzten vertikalen Rauigkeit (Begrenzung durch die Schichtdicke) liegen derartige Korrelationslängen bei einigen 100 Å. Der vorausgesetzte relativ steile Abfall der Streukurven oberhalb des Yoneda-Peaks impliziert einen Rauigkeitsexpo-

nenten von höchstens 0.5 . Abb. 6.34 verdeutlicht die Relation der diffusen Streuung von Oxid- und GaAs/AlGaAs-Grenzflächen im Rahmen des verwendeten Modells.

Angesichts der Abb. 6.30-6.33 stellt sich die Frage nach der Struktur des reziproken Raumes dieser Proben und nach der Selektivität der verschiedenen Meßmodi für dessen Details. In Abb. 6.35 wird dazu die spekulare Reflektivität von Probe E sowie die diffuse Streuung für verschiedene Scantypen als Funktion des Streuvektors dargestellt (dabei ist zu beachten, daß wegen der Verwendung eines Schlitzdetektors eine Q_y -integrierte Streuintensität vorliegt). Die Angabe von Winkeln mag den Bezug zum Experiment erleichtern :

Die Abbildung umfaßt neben der Reflektivitätskurve ($\vartheta_1 < 1.4^\circ$) einen Offset-Scan ($\vartheta'_1 = 2\vartheta_1 + 0.2^\circ$, $\vartheta_1 < 0.8^\circ$), eine Messung mit festem Einfallswinkel ($\vartheta_1 = 0.5^\circ$, $0.5^\circ < \vartheta'_1 < 2^\circ$) und drei Messungen mit ortsfestem Detektor ($\vartheta'_1 = 1.2^\circ, 1.7^\circ, 2.6^\circ$). Zum Vergleich sei auf die Projektion der diversen Scantypen in die Q_x - Q_z -Ebene in Abb. 4.5 hingewiesen

Abb. 6.35 läßt auf einen stark strukturierten reziproken Raum schließen. Die im Meßmodus $\vartheta'_1 = \text{const.}$ gut zu erkennenden Yoneda-Peaks sind offenbar Schnitte durch einen "Yoneda- Kamm" (um einen geographischen Ausdruck zu gebrauchen) entlang der punktierten Linie, welche den zugänglichen Teil der Q_x - Q_z - Ebene begrenzt. Diese Struktur ist unmittelbar geometrisch bedingt, da die Begrenzungslinie der Abschattung des ein- bzw. ausfallenden Strahls entspricht. Yoneda-Peaks sollten in der Nähe dieser Linie auftauchen, weil die Transmission maximal wird, wenn der ein- oder ausfallende Strahl den (relativ kleinen) kritischen Winkel mit der Probenoberfläche einschließt. Ob in der diffusen Streuung ein Yoneda-Peak auftaucht, hängt von dem Winkel ab, unter dem im zugehörigen Meßmodus der "Yoneda-Kamm" geschnitten wird. Der Offset-Scan in Abb. 6.35 zeigt beispielsweise nur eine Schulter. Dieser Scantyp ist jedoch geeignet zum Nachweis von Oszillationen in der diffusen Streuung; dies gilt ebenso für den Meßmodus mit festem Einfallswinkel. Die Projektion (Abb. 6.32) belegt – ebenso wie die entsprechende Projektion des Offset-Scans (hier nicht gezeigt) –, daß die Oszillationen der diffusen Streuung dieselbe Q_z -Abhängigkeit aufweisen wie die Oszillationen der spekularen Reflektivität. Abb. 6.35 legt daher die Vorstellung eines ausgedehnten Wellenmusters aus parallelen Furchen und Erhebungen nahe, die senkrecht zur Reflektivitätskurve liegen und in Q_z -Richtung deren Oszillationen nachzeichnen. Dies erklärt auch, warum im Meßmodus mit ortsfestem Detektor diese Struktur verborgen bleibt.

Die Vor- und Nachteile der einzelnen Scantypen für diffuse Streuung stellen sich daher folgendermaßen dar ⁸ : Offset-Scans (mit kleinem Offset) können die Oszillationen der diffusen Streuung unter sehr ähnlichen Brechungsbedingungen wie für die spekulare Reflektivitätskurve nachweisen. Der Yoneda-Peak kann dabei zu einer Schulter entarten (vermutlich ist dies sogar charakteristisch für diesen Meßmodus). Der maximal erreichbare laterale Impulsübertrag Q_x bleibt relativ klein.

Messungen mit ortsfestem Detektor zeigen ausgeprägte Yoneda-Peaks; aufgrund der Bedingung $Q_z = \text{const.}$ sind die bei diesen Proben auftauchenden Oszillationen zumindest mit einer einzigen Messung nicht nachweisbar. Der maximal erreichbare laterale Impulsübertrag wird durch die Detektorposition festgelegt und kann stark variieren. Dieser Meßmodus ist außerdem sehr gut dazu geeignet, die Verfälschung der "wahren"

⁸Dabei ist zu beachten, daß Messungen mit großen lateralen Impulsüberträgen Q_x die genaue Bestimmung der lateralen Rauigkeitsparameter ξ und h erleichtern [Weber 1992].

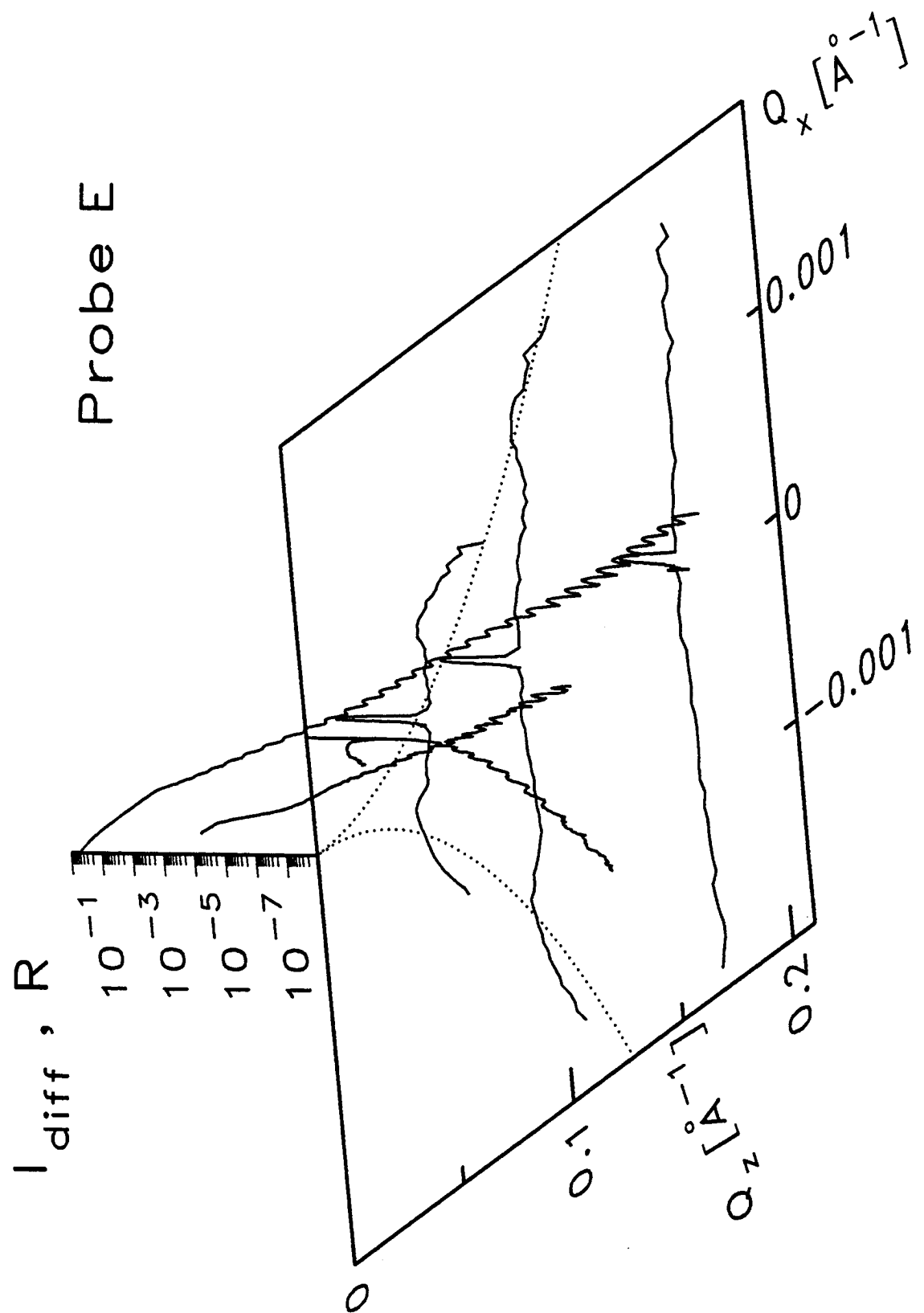


Abbildung 6.35: Verschiedene Meßmodi der diffusen Streuung und spekulare Reflektivität von Probe E. Die experimentellen Daten sind als Funktion des Impulsübertrags dargestellt. Die punktierten Linien begrenzen den zugänglichen Bereich der Q_z - Q_x -Ebene.

spekularen Reflektivität durch einen Untergrund abzuschätzen sowie die Gültigkeit des Reziprozitätstheorems zu überprüfen.

Messungen mit festem Einfallswinkel weisen ausgeprägte Yoneda-Peaks auf und eignen sich zum Nachweis von Oszillationen in der diffusen Streuung, da Meßdaten sowohl für kleine als auch für große Q_z (und Q_x) vorliegen. Bei starker Brechung kann ein Vergleich mit der Q_z -Abhängigkeit der Reflektivitätskurve schwierig werden. Der maximal erreichbare laterale Impulsübertrag wird praktisch nicht vom Meßmodus, sondern vom Signal/Rausch-Verhältnis der diffusen Streuung begrenzt.

6.5 Diskussion der Ergebnisse

6.5.1 Oxid

Die Untersuchung der in Luft bei Raumtemperatur oxidierten Probenoberflächen mittels Absorptionsspektroskopie (Abschnitt 6.1) weist bei allen Proben auf die Bildung von Ga_2O_3 hin. Signifikante Hinweise auf ein As-Oxid existieren hingegen nur für Probe A (und zwei weitere direkt nach A hergestellte Proben); vermutlich handelt es sich hierbei um As_2O_5 . As-Oxid in Form von As_2O_3 war mit dieser Methode auf keiner Probe nachweisbar.

Im Vergleich dazu ergibt die Charakterisierung der Oberfläche von Probe D durch Photoemissionsspektroskopie (Abschnitt 5.2.6) eine nur zu 80 % aus Ga-Oxid bestehende Oxidschicht. Die chemische Zusammensetzung des Ga-Oxids konnte nicht ermittelt werden. Das As-Oxid besteht hiernach wahrscheinlich zu gleichen Teilen aus As_2O_3 und As_2O_5 .

Die mangelnde Empfindlichkeit der Absorptionsspektroskopie unter Totalreflexionsbedingungen für den 20 %igen Anteil des As-Oxids liegt vermutlich an der relativ geringen Dichte und Dicke der Oxidschicht (21 Å), welche außerdem die Eindringtiefe der Röntgenstrahlen (ca. 50-60 Å) deutlich unterschreitet, so daß das Absorptionssignal eine entsprechend gewichtete Überlagerung der Kantenstruktur des GaAs und der Oxide enthält.

Vergleicht man die Kantenstrukturen verschiedener Proben, sind für die As-K-Kante wesentlich stärkere Variationen als für die Ga-K-Kante festzustellen (Abb. 6.4 und 6.5). Direkt nacheinander hergestellte Proben zeigen jedoch ähnlich verlaufende Strukturen der As-K-Kante. Dies kann als ausgeprägte Tendenz zur Bildung strukturell und chemisch ähnlicher Ga-Oxide (hauptsächlich Ga_2O_3) gedeutet werden, während die Entstehung von As-Oxid offenbar von den detaillierten, hier nicht kontrollierten Oxidationsbedingungen abhängt. Aus der Literatur ist bekannt, daß bei der thermischen Oxidation von GaAs hauptsächlich Ga_2O_3 entsteht [Wang et al. 1982]. Die thermodynamische Begünstigung der Ga-Oxide zeigen u.a. ihre (Volumen-) Schmelzpunkte unter Normaldruck: Ga_2O_3 schmilzt oberhalb von 1800°C, Ga_2O oberhalb von 660°C, As_2O_3 bei 312°C und As_2O_5 bei 315°C [CRC 1991]. Die Oxidation der GaAs(001)-Oberfläche bei Raumtemperatur hängt aber auch von der Probenpräparation ab. Flamm et al. [1981] haben in diesem Zusammenhang auf die Rolle der bei den polaren Oberflächen nicht festgelegten Oberflächenstöchiometrie hingewiesen. Ingreys et al. [1986] fanden sogar eine Abhängigkeit des Oxidationsverhaltens an Luft von der vorhergehenden Rei-

nigungsprozedur der Oberfläche, die auf As/Ga-Mengenverhältnisse zwischen 26 und 92 % führte.

Da sich die Oxidschicht nur in der spekularen Reflektivität und nicht in der Beugung bemerkbar macht, ist ein amorphes Oxid anzunehmen. Abb. 5.4 weist den amorphen Zustand der Oxidschicht von Probe C direkt elektronenmikroskopisch nach. Gleichzeitig kann dieser Aufnahme eine Dicke der Oxidschicht von ca. 20 Å entnommen werden, die sehr gut mit den aus der Reflektivität folgenden 19 bzw. 18 Å übereinstimmt (Tabelle 6.5). Die Ellipsometrie führt auf Oxidschichtdicken, welche 7-10 Å (40-50 %) über den Werten aus der Reflektivität liegen (vgl. die Tabellen 5.3 und 6.4-6.7), was auf einen systematischen Fehler in den optischen Konstanten hindeutet. Die mittels Photoemission abgeschätzte Dicke der Oxidschicht von Probe D fällt hingegen mit 10 Å zu klein aus (Reflektivität : 20 bzw. 22 Å), wobei jedoch die der Auswertung zugrunde liegende Annahme glatter Grenzflächen nicht erfüllt ist, da sowohl aus der Reflektivität als auch aus der Rasterkraftmikroskopie eine relativ große Oberflächenrauigkeit dieser Probe folgt. Die hier gefundenen Oxidschichtdicken stimmen gut mit den von Harada et al. [1989] angegebenen Werten von 20-50 Å für natürliche Oxide auf GaAs(001)-Oberflächen überein.

Die aus der Anpassung der Reflexionskurven folgenden Oberflächenrauigkeiten können qualitativ mit den Oberflächentopographien aus der Rasterkraftmikroskopie (Abschnitt 5.2.2) korreliert werden. Diese Aufnahmen erlauben eine Einteilung der Oberflächenstrukturen in zwei Kategorien, zu denen jeweils die Proben B und C bzw. D und E gehören. Die Oberflächen der ersten Kategorie sind vergleichsweise glatt mit Hügeln einer Höhe unterhalb von 10 Å, während die Oberflächen der zweiten Kategorie deutlich rauher sind und tiefe Löcher aufweisen, die bis in die GaAs-Schicht hineinreichen. Aus der Reflektivität ergeben sich ebenfalls für die Proben B und C signifikant kleinere Oberflächenrauigkeiten σ_0 als für die Proben D und E. Die entsprechenden Mittelwerte der in den Tabellen 6.4-6.7 angegebenen Daten lauten in dieser Reihenfolge $\sigma_0 = 5.5, 4.7, 8.5$ und 7.5 Å, wobei der maximale Wert für die Oberfläche mit der größten Anzahl Löcher pro Flächeneinheit auftritt, die auch visuell am stärksten aufgerauht wirkt (vgl. Abb. 5.5-5.8). Es sei darauf hingewiesen, daß in Abb. 6.30 die relativen Höhen der Yoneda-Peaks, die im wesentlichen mit der diffusen Streuung an den Oxidgrenzflächen in Verbindung gebracht wurden, ebenfalls obiger Kategorisierung entsprechen. Die Ursache der unterschiedlichen Oberflächentopographien blieb ungeklärt.

Aus der Reflektivität folgt eine Massendichte der Oxide von 3.5 g/cm^3 (Probe A), $3.7\text{-}3.8 \text{ g/cm}^3$ (Proben B und C) und $4.2\text{-}4.3 \text{ g/cm}^3$ (Proben D und E). Literaturwerte [CRC 1991] für die Dichten diverser Ga- und As-Oxide sind 6.44 g/cm^3 ($\alpha\text{-Ga}_2\text{O}_3$), 5.88 g/cm^3 ($\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$), 5.2 g/cm^3 ($\text{Ga}_2\text{O}_3 \cdot \text{H}_2\text{O}$), 4.77 g/cm^3 (Ga_2O), 3.74 g/cm^3 (As_2O_3) und 4.32 g/cm^3 (As_2O_5). Geht man von der mittels Photoemission bestimmten Zusammensetzung der Oxidschicht auf Probe D aus, sind die aus der Reflektivität folgenden Dichten mindestens 10 bzw. 20 % kleiner als aufgrund der Literaturdaten zu erwarten gewesen wäre. Berücksichtigt man ferner, daß bei der Anpassung der Reflexionskurven die Dichte des Oxids mit der Rauigkeit der Grenzfläche Oxid/GaAs gekoppelt ist und letztere bei der Auswertung zu Null gesetzt wurde, ist der Unterschied noch wesentlich größer, da eine Anpassung bei vorgegebener endlicher Rauigkeit obige Dichten weiter verringert (s. Abschnitt 6.3). Abb. 5.4 zeigt für Probe C eine *rauhe* Grenzfläche

Oxid/GaAs. Dies ist vermutlich auch bei den anderen Proben der Fall; insbesondere könnte die scheinbar größere Dichte des Oxids auf den Proben D und E fiktiv sein und lediglich eine größere Rauigkeit dieser Grenzfläche widerspiegeln. In jedem Fall weisen die Ergebnisse auf eine stark reduzierte Dichte der Oxidschicht hin. Es ist bekannt, daß bei der thermischen Oxidation von GaAs sogar poröse Oxidschichten entstehen können [John et al. 1985].

6.5.2 GaAs/AlGaAs

Die hervorragende kristalline Qualität der epitaktischen Schichten zeigt sich übereinstimmend in der Röntgenbeugung, der hochauflösenden Elektronenmikroskopie (s. die TEM-Aufnahme Abb. 5.2) und der Ionen-Gitterführung ($\chi_{Min} = 4-5\%$, s. Abschnitt 5.2.3); außerdem wäre bei schlechter Kristallinität eine Simulation der Beugungsprofile über mehr als fünf Größenordnungen nicht möglich gewesen.

Die ermittelten Gitterfehlpassungen lassen keine Abweichungen vom pseudomorphen Wachstum erkennen. Chu et al. [1985] sowie Noya et al. [1986] führen die Durchbiegung von Schichtstrukturen auf Spannungen zurück, die aus der elastischen Verzerrung des Kristallgitters der epitaktischen Schichten resultieren (s. Abb. 2.2). Unter der Voraussetzung pseudomorphen Wachstums ergibt sich nach diesen Referenzen für Probe A ein Krümmungsradius von 1000 m und für die Proben B bis E ein Krümmungsradius von 330 m. Die Werte aus Tabelle 5.5 sind damit kaum zu vereinbaren, da sie die theoretischen Krümmungsradien fast immer deutlich unterschreiten und von Probe zu Probe trotz z.T. gleicher Gitterfehlpassungen stark variieren. Die ausgeprägte Anisotropie (Wechsel von konkaver zu konvexer Krümmung) kommt als Problem hinzu. Es liegt daher nahe, die Probenkrümmungen vor allem mit den Substratwafern in Verbindung zu bringen (denkbar wäre z.B. eine Verformung während des industriellen Herstellungsprozesses). Dies wird unterstützt durch Messungen von Kruzinski [1993], der bei einem reinen 2"-GaAs-Substratwafer Krümmungsradien von 125 m in [110]- und -104 m in $[1\bar{1}0]$ -Richtung findet, die mit den Krümmungsradien der hier untersuchten Proben vergleichbar sind.

In Abschnitt 6.2 wurde bereits darauf hingewiesen, daß die aus den Satelliten 0. Ordnung kinematisch ermittelten vertikalen Gitterfehlpassungen mit einem systematischen Fehler behaftet sind, der sie zu einer präzisen Bestimmung des Al-Gehaltes dieser Proben ungeeignet macht ("Fewster-Curling-Effekt"). Erst eine Simulation auf der Basis der dynamischen Streutheorie berücksichtigt die durch Interferenz verschobene Winkellage dieses Satelliten und ergibt einen Al-Gehalt der $Al_xGa_{1-x}As$ -Schichten von $x = 0.70 \pm 0.01$ (statt 0.61 ± 0.01).

Abb. 6.36 zeigt neben den aus der Röntgenbeugung stammenden Al-Gehalten auch mittels Ellipsometrie (Abschnitt 5.2.4) und Ramanspektroskopie (Abschnitt 5.2.5) bestimmte Werte, die sehr stark voneinander abweichen. Die Unterschiede überschreiten die angegebenen statistischen Fehler erheblich und müssen daher systematischer Natur sein. Der systematische Fehler der mittels Beugung bestimmten Werte liegt nach Abschnitt 6.2 bei $\delta x = \pm 0.02$; für die anderen Methoden liegen keine Abschätzungen vor. Alle Werte übersteigen die Herstellerangaben deutlich. Rutherford-Rückstreuung ergibt für diese Proben einen Al-Gehalt von $x = 0.70$, der aufgrund des angegebenen relativen Fehlers von 10 % nicht in Abb. 6.36 miteingezeichnet worden ist.

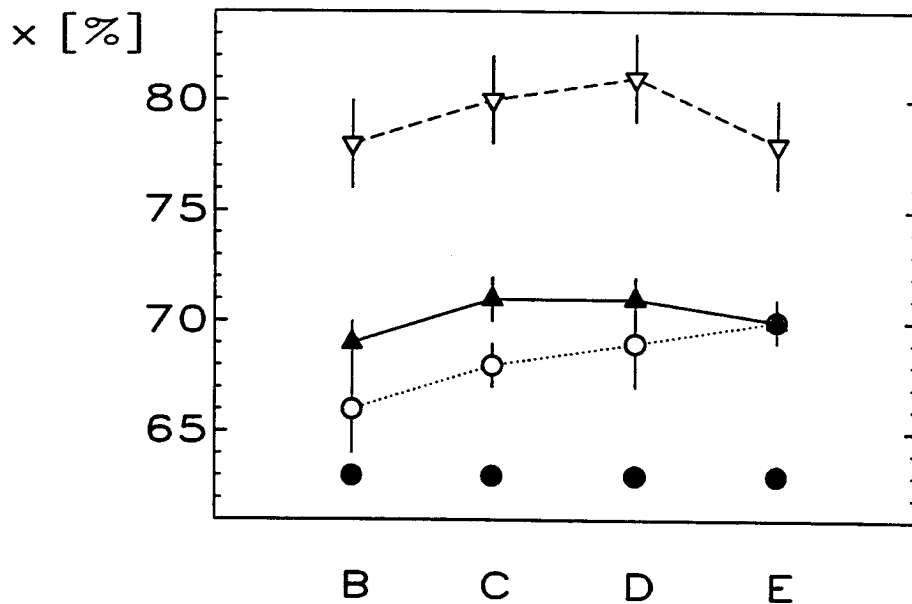


Abbildung 6.36: Al-Gehalt der $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -Schicht für die Proben B bis E gemäß Ramanspektroskopie (---), Röntgenbeugung (—) und Ellipsometrie (·····). Volle Kreise kennzeichnen die nominellen Werte.

Auf unterschiedliche Al-Gehalte der Proben kann wegen des großen Überlapps der Fehlergrenzen nicht eindeutig geschlossen werden; die potentielle Variation des Al-Gehaltes ist aber in jedem Fall gering. Dies ist erstaunlich, weil bei Substrattemperaturen über 650°C eine erhöhte Ga-Desorption (bei noch vernachlässigbarer Al-Desorption) zu erwarten ist. Nach Joyce [1985] beträgt der effektive Ga-Verlust bei 650°C etwa 0.06 Monolagen pro Sekunde. Er nimmt mit steigender Temperatur stark zu, so daß beim GaAs-Wachstum die effektive Wachstumsrate ab einer Substrattemperatur von ca. 700°C gegen Null geht ⁹ [Däweritz u. Hey 1990].

Die Auswirkungen eines Ga-Verlustes von 0.06 Monolagen/s können wie folgt abgeschätzt werden: Bei einer Wachstumsrate der AlGaAs-Schichten von zunächst $0.64 \mu\text{m/h} = 0.63 \text{ Monolagen/s}$ (s. Abschnitt 5.1) bewirkt ein solcher Ga-Verlust eine ca. 10 % niedrigere Wachstumsrate, die mit einem größeren Al-Gehalt einhergeht. Unter diesen Bedingungen wäre eine Verschiebung der Zusammensetzung von $\text{Al}_{0.63}\text{Ga}_{0.37}\text{As}$ nach $\text{Al}_{0.70}\text{Ga}_{0.30}\text{As}$ zu erwarten. Da bei der Herstellung der Proben B bis E die Wachstumszeit aller AlGaAs-Schichten gleich war, muß sich eine niedrigere Wachstumsrate in einer kleineren Schichtdicke niederschlagen. Daß der reale Aufbau von Probe D (Substrattemperatur 660°C) tendenziell mit diesen Abschätzungen übereinstimmt (die gemessene AlGaAs-Schichtdicke liegt 9 % unter der nominellen), kann jedoch nicht

⁹Es sei daran erinnert, daß unter den in Abschnitt 2.3 beschriebenen Depositionsbedingungen die Gruppe III-Elemente das Wachstum kontrollieren.

als Bestätigung der Ga-Desorption gewertet werden, weil eine konsistente Erklärung der experimentellen Schichtdicken und Al-Gehalte damit nicht möglich ist. Einerseits ist der Al-Gehalt der Proben kaum von der Substrattemperatur abhängig, andererseits steigt die Dicke der AlGaAs-Schicht bei einer Substrattemperatur von 685°C wieder an. Es blieb ungeklärt, warum die nominellen Schichtdicken bei den Proben B bis E in keinem Fall erreicht wurden, während dies bei Probe A offenbar wesentlich besser gelang.

Mittels Röntgenbeugung ergibt sich eine sehr gute laterale Homogenität der Schichtdicken (Fluktuationen unterhalb von 1 %), die auch von Kubon [1991] für epitaxiierte 2"-Wafer gefunden wird. Diese Homogenität ist Voraussetzung für die sehr gute Übereinstimmung der mittels Beugung und spiegelnder Reflektivität unter streifendem Einfall bestimmten Schichtdicken. Für Probe A sind die einzelnen Schichtdicken innerhalb der Fehlergrenzen von $\pm 5 \text{ \AA}$ identisch, und bei den Proben B bis E betragen die Abweichungen der unabhängig voneinander ermittelten Gesamtschichtdicken zwischen 1 und 6 $\text{\AA}$ (relativer Fehler $< 0.7 \%$).

Da bei allen auf Interferenz beruhenden Dickenbestimmungen letztlich der optische Wegunterschied eingeht, bieten Röntgenstrahlen den Vorteil eines um weniger als 10^{-4} von 1 abweichenden Brechungsindex, so daß die Schichtdicken praktisch unabhängig vom Brechungsindex bestimmt werden können. Im optischen Bereich ist man dagegen auf die genaue Kenntnis der optischen Konstanten angewiesen. Diese sind offenbar für $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ gut bekannt, da die ellipsometrisch bestimmten Schichtdicken (Tabelle 5.3) nur zwischen 2 und 15 $\text{\AA}$ (relativer Fehler $< 1.8 \%$) von den Werten aus der Reflektivität abweichen. Für GaAs betragen die Abweichungen zwischen 3 und 13 $\text{\AA}$ (bei einer Schichtdicke von ungefähr 60 $\text{\AA}$). Tendenziell liefert die Ellipsometrie für beide Materialien *kleinere* Schichtdicken; beim Oxid verhält es sich umgekehrt.

Angeichts der guten Übereinstimmung der Schichtdicken ist es möglich, die mittels Rutherford-Rückstreuung bestimmten Dicken zu bewerten (Tabelle 5.2), deren Genauigkeit u.a. von der Verwendung korrekter Bremsquerschnitte abhängt. Da die AlGaAs-Schichtdicken sich typischerweise nur um 1-2 % von den Werten aus der Reflektivität unterscheiden, ist die angegebene Abschätzung des Gesamtfehlers mit 10 % in diesen Fällen wahrscheinlich zu konservativ. Ganz anders verhält es sich bei den GaAs- und AlAs-Schichtdicken von Probe A, die ca. 10 % zu groß ausfallen. Da die Bremsquerschnitte auch von der chemischen Umgebung der betreffenden Elemente abhängen, ist es nicht ausgeschlossen, daß die der Auswertung zugrunde gelegten reduzierten Bremsquerschnitte (s. Abschnitt 5.2.3) dem ternären System $\text{Al}_{0.7}\text{Ga}_{0.3}\text{As}$ gut angepaßt sind, während die binären Systeme GaAs und AlAs durch größere Werte beschrieben werden. Hier wäre eine systematische Untersuchung sinnvoll.

Der Aufbau der Proben B bis E ermöglicht es, mittels Röntgenreflexion die Breite der beiden Heteroübergänge getrennt zu bestimmen (Abschnitt 6.3). Die entsprechenden Rauigkeiten der normalen (AlGaAs auf GaAs) und invertierten Grenzfläche (GaAs auf AlGaAs) aus den Tabellen 6.4-6.7 sind in Abb. 6.37 dargestellt. Die Differenz zwischen den Werten für verschiedene Photonenenergien ist ein Maß für den (statistischen) Auswertefehler. Dank der Korrektur um die Streustrahlung in spekularer Richtung ist die Übereinstimmung recht gut (s.u.).

Die Erhöhung der Substrattemperatur wirkt sich offenbar auf die invertierte Grenzfläche viel stärker aus als auf die normale Grenzfläche. Während zwischen 605°C und

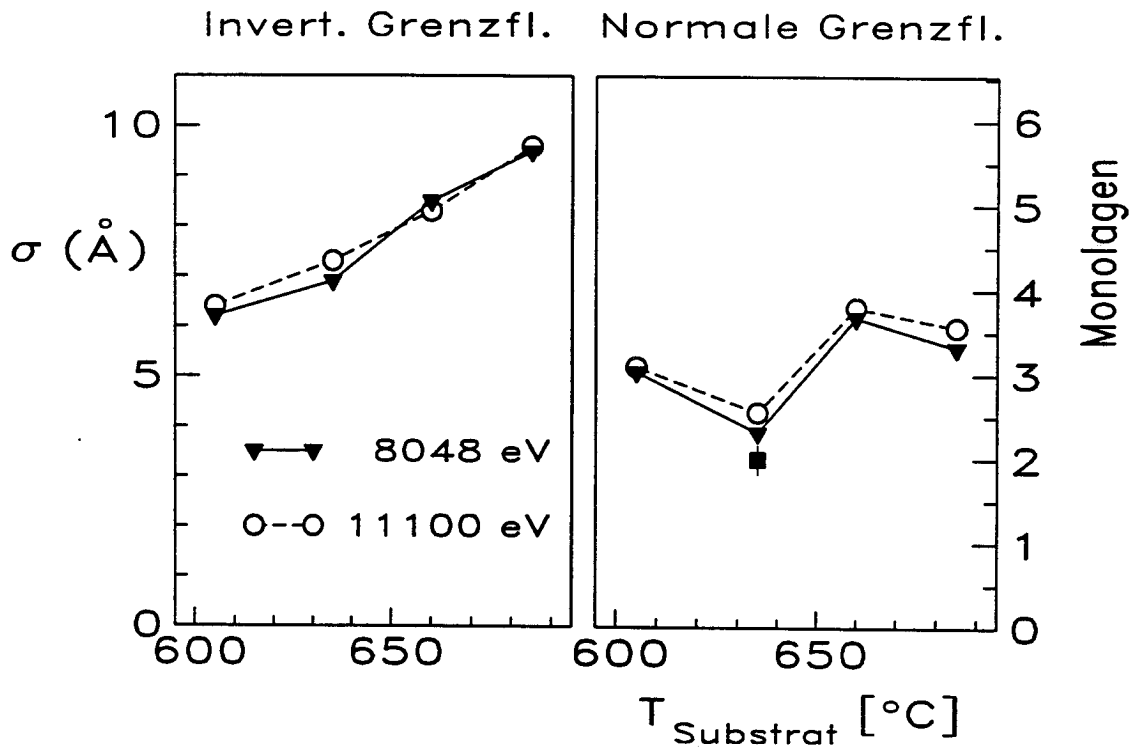


Abbildung 6.37: Vertikale Rauigkeiten der invertierten und normalen Grenzfläche in Abhängigkeit von der Substrattemperatur (Proben B bis E) aus Röntgenreflexionsmessungen bei 8048 und 11100 eV Photonenenergie. Die Skalierung ist jeweils dieselbe, jedoch der Einfachheit halber auch in Monolagen angegeben (s. Text). Das Quadrat stellt die mittels TEM bestimmte Übergangsbreite dar.

685°C die Rauigkeit der invertierten Grenzfläche fast linear um 50 % zunimmt, weist die normale Grenzfläche für die niedrigste und höchste Substrattemperatur nahezu identische Rauigkeiten auf, wobei die zwei dazwischen liegenden Werte auf der Basis der vorliegenden Daten nur als Fluktuationen gewertet werden können.

Die in Abb. 6.37 dargestellten Rauigkeiten stehen in Einklang mit den Ergebnissen unabhängiger Methoden.

Aus RHEED-Messungen ist qualitativ bekannt, daß die normale und invertierte Grenzfläche nicht äquivalent sind (vgl. Abschnitt 2.3.2) und insbesondere letztere die größere Rauigkeit aufweist (s. Abb. 2.6). Dieses Verhalten kann auch hier bei allen Substrattemperaturen beobachtet werden.

Für Probe C wurde die Übergangsbreite der normalen Grenzfläche mittels hochauflösender Transmissionselektronenmikroskopie bestimmt (s. Abschnitt 5.2.1). Dieser Vergleichswert ist (einschließlich des statistischen Fehlers) in Abb. 6.37 miteingezeichnet und stimmt mit den Werten aus der Röntgenreflexion sehr gut überein. Dabei ist jedoch zu beachten, daß die TEM-Aufnahme einen *lokalen* Ausschnitt auf einer Längenskala von 100 Å repräsentiert, während aus der Röntgenreflexion unter streifendem Einfall notwendigerweise ein Mittelwert für die *gesamte* Probe resultiert.

Die in Abb. 6.37 vorgenommene Skalierung der Übergangsbreiten in Monolagen

(2.83 Å) ist eine Frage der Konvention. Zugrunde gelegt wurden gaußverteilte Abweichungen von der mittleren Grenzflächenlage (Standardabweichung σ) im Sinne von Abschnitt 3.2.2. Die hier gewählte Übergangsbreite Δz entspricht einem Anstieg von 20 auf 80 % im zugehörigen erf-Profil ($\Delta z = 1.68\sigma$, s. Tabelle 3.1). Diese Konvention orientiert sich an der Empfindlichkeit von TEM-Aufnahmen, mit denen bisher die Breite solcher Übergänge bestimmt wurde (die Untersuchung an Probe C wurde für einen Anstieg von 16.7 auf 83.3 % durchgeführt, in der Arbeit von Bimberg et al. [1992] wird ein Anstieg von 25 auf 75 % betrachtet).

Aufgrund des hohen präparativen Aufwands für die Elektronenmikroskopie konnte nur bei einer Probe ein Vergleichswert für die absoluten Übergangsbreiten ermittelt werden. Die Abbildung der invertierten Grenzfläche von Probe C war wegen ihres geringen Abstandes zur Oberfläche für eine quantitative Auswertung zu verrauscht ¹⁰.

Die Längenskala, auf der die mittels Röntgenstrahlen bestimmten vertikalen Rauigkeiten auftreten, ist maximal durch die Kohärenzlänge ($\sim \mu\text{m}$) gegeben; sie wird hier jedoch durch die *Korrelationslänge* der Grenzflächenrauigkeiten (< 1000 Å) festgelegt. Die durch TEM und Röntgenreflexion ermittelten Werte beziehen sich daher auf nahe beieinander liegende bzw. identische Längenskalen, was die Vergleichbarkeit der Resultate begünstigt. Sie unterscheiden sich jedoch wesentlich im Probenausschnitt, über den gemittelt wird. Beide Methoden können sich durchaus ergänzen, zumal nur ein lokales Verfahren in der Lage ist, zwischen einer interdiffundierten und einer chemisch abrupten aber welligen Grenzfläche zu unterscheiden.

Übergangsbreiten von wenigen Monolagen für GaAs/AlGaAs- bzw. GaAs/AlAs-Grenzflächen sind aus der Literatur bekannt [Ourmazd et al. 1989, Ourmazd et al. 1990, Bimberg et al. 1992, Bode und Ourmazd 1992, Walther 1993]; diese Ergebnisse beruhen auf hochauflösender Elektronenmikroskopie.

Der Einfluß der Untergrund-Korrektur auf die Breiten der Hetero-Übergänge ist in Abb. 6.38 zu sehen (vgl. Tabelle 6.8). Tendenziell täuschen die nicht korrigierten Meßkurven zu große Rauigkeiten vor, wobei jedoch der starke Untergrund bei 11100 eV vor allem die Rauigkeit der normalen Grenzfläche verfälscht, da diese direkt mit der Amplitude der kurzperiodigen Oszillation zusammenhängt (s. Abschnitt 6.3). Bei einer Photonenenergie von 8048 eV ergibt dagegen nach Tabelle 6.8 der Abzug des Untergrundes nur wenig veränderte Rauigkeiten.

Die Korrektur experimenteller Reflexionskurven durch die Subtraktion eines für $Q_x = 0$ interpolierten Untergrunds kann problematisch sein, falls dieser von diffuser Streuung an Grenzflächenrauigkeiten stammt. Simulationen zeigen, daß für sehr große Korrelationslängen ($\xi > 1\mu\text{m}$) bzw. sehr kleine Rauigkeitsexponenten ($h < 0.1$) bei $Q_x = 0$ scharfe Maxima der diffusen Streuung auftreten können. Die Abschätzung dieser Größen in Abschnitt 6.4 läßt aber für die hier untersuchten Proben solche Schwierigkeiten nicht erwarten.

Mit Hilfe der diffusen Streuung wird in Abschnitt 6.4 die Größenordnung der mittleren Terrassenweite während der Epitaxie auf einige 100 Å (Proben B, D und E) bzw. einige 10 Å (Probe C) abgeschätzt. Diesen auf indirektem Wege gewonnenen Aussagen können direkte Beobachtungen mittels Rastertunnelmikroskopie von Sudijono et al. [1993] gegenübergestellt werden, die das MBE-Wachstum der GaAs(001)-

¹⁰C. Dieker, persönliche Mitteilung.

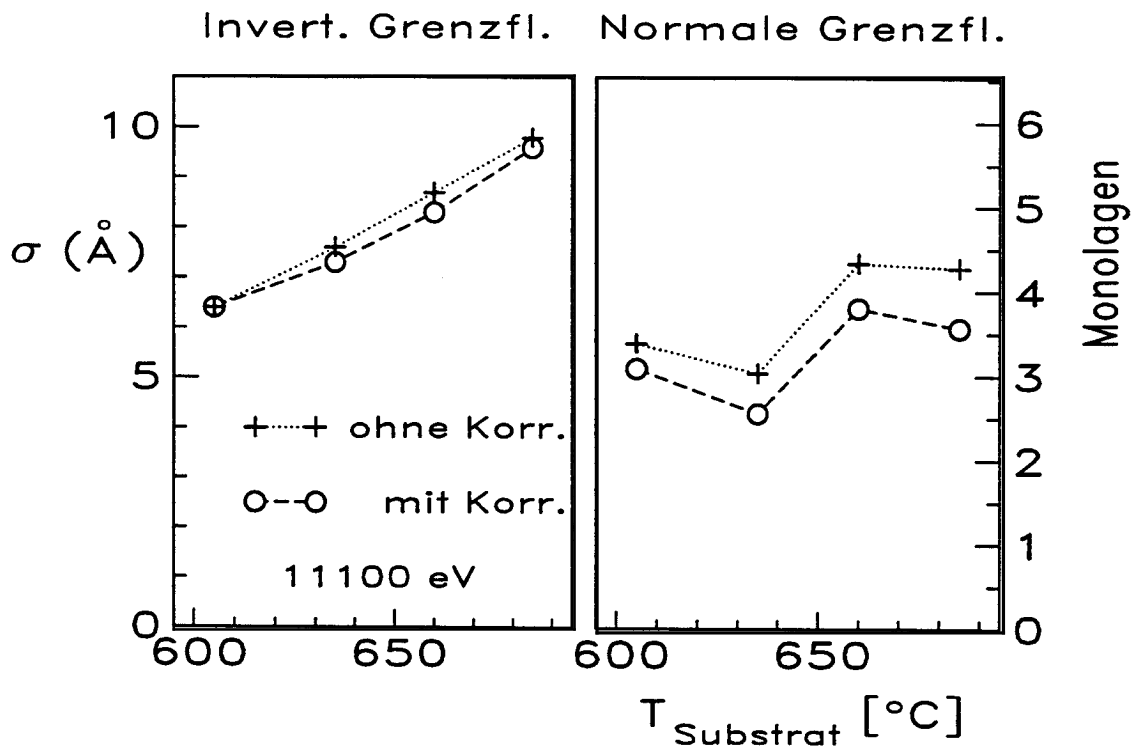


Abbildung 6.38: Einfluß der Korrektur um die Streustrahlung in spekularer Richtung auf die Ergebnisse aus Abb. 6.37.

Oberfläche untersucht haben. Ein vollständiger Vergleich ist wegen der unterschiedlichen Wachstumsbedingungen nicht möglich (Substrattemperatur von 555°C bei einem V/III-Verhältnis von 15 und einer Wachstumsrate von 0.17 $\mu\text{m/h}$). Die Autoren fanden nach Abscheidung von ungefähr einer Viertel Monolage typischerweise Inseln von 80 Å Durchmesser, die im Mittel 300 Å voneinander entfernt waren. Im weiteren Verlauf des Wachstums, das insgesamt die Deposition von über 1450 Monolagen umfaßte, wurde eine variierende, doch stets größere Inseldichte bei wechselnden Terrassenweiten zwischen 100 und 1000 Å beobachtet.

Damit scheint die Anwendung von Gl. (A.17) auf eine sinnvolle Größenordnung zu führen. Dagegen kann jedoch eingewendet werden, daß die zugrunde liegende Theorie der statistischen Skaleninvarianz von Grenzflächen für mesoskopische Längenskalen formuliert wurde, während die in Gl. (A.17) einzusetzende vertikale Rauigkeit σ hier nur wenige Monolagen beträgt. Die Verwendung von Gl. (A.17) kann also nur phänomenologisch gerechtfertigt werden.

Sanyal et al. [1992] geben für ein GaAs/AlAs-Übergitter mit nicht näher spezifizierten Wachstumsbedingungen eine mittlere Korrelationslänge von 7000 Å und einen Rauigkeitsexponenten von 0.4 bei vertikalen Rauigkeiten im Monolagenbereich an. Diese Korrelationslänge liegt eine Größenordnung über den Werten für die Proben B,D und E (und sogar zwei Größenordnungen über dem Wert für Probe C). Im Rahmen der vorliegenden Untersuchungen kann nicht geklärt werden, ob derartige Unterschiede infolge des etwas anderen Materialsystems und/oder anderer Wachstumsbedingungen

auftreten können oder ob systematische Fehler eine Rolle spielen. Für relativ geringe Korrelationslängen spricht die enge Verknüpfung mit den weiter oben diskutierten Terrassenweiten (s. Abschnitt 6.4). Der von Sanyal et al. angeführte Rauigkeitsexponent ist vermutlich mit einem Fehler von ± 0.1 behaftet, weil nicht mehr Dezimalstellen angegeben werden. Er ist daher mit den Werten für die Proben D ($h = 0.30 \pm 0.08$) und E ($h = 0.44 \pm 0.13$) vergleichbar. Wiederum scheint Probe C mit $h = 0.15 \pm 0.02$ eine Sonderrolle einzunehmen, während Probe B mit $h = 0.24 \pm 0.05$ zwischen diesen Werten liegt.

Es ist bemerkenswert, daß typischerweise *kleine* Rauigkeitsexponenten zwischen 0.2 und 0.5 für Proben aus der Molekularstrahl-Epitaxie gefunden werden, während das Skalenverhalten vieler natürlicher Phänomene durch $h \approx 0.7$ charakterisiert wird [Feder 1988, Hurst 1951]. Ein solcher Exponent ist von Weber und Lengeler [1992] auch für die Oberfläche gesputterter AlSi (1 at.% Si)- bzw. AlCu (1.8 at.% Cu)-Schichten nachgewiesen worden. Interessanterweise deuten die experimentellen Untersuchungen der GaAs-Homoepitaxie von Sudijono et al. (s. obige Diskussion der Terrassenweite) indirekt auf einen kleinen Rauigkeitsexponenten hin, da zwar einerseits während der Abscheidung von über 1000 Monolagen GaAs eine Aufrauhung der Oberfläche beobachtet wurde, andererseits aber die vertikale Rauigkeit nicht stark zunahm. Im Rahmen der Theorie der kinetischen Aufrauhung (s. Anhang A) kann dies durch einen geringen Rauigkeitsexponenten erklärt werden (Gl. (A.16) und Abb. A.3).

Theoretische Vorhersagen von Rauigkeitsexponenten unterscheiden zwischen Wachstumsprozessen mit sogenannter konservativer und nicht-konservativer Dynamik. Bei einer konservativen Dynamik dominiert die Oberflächendiffusion den Anlagerungsprozeß der auftreffenden Teilchen; der Einfluß der Desorption und etwaiger anderer Relaxationsmechanismen auf die Struktur der Wachstumsfront wird vernachlässigt. Für Prozesse dieser Art erwartet man (im physikalisch interessierenden Fall einer zweidimensionalen Oberfläche) einen Rauigkeitsexponenten von $h = \frac{2}{3}$ [Villain 1991]. Die sogenannte KPZ-Gleichung [Kardar et al. 1986] beschreibt eine nicht-konservative Dynamik, die z.B. bei nicht zu vernachlässigender Desorption vorliegt [Krug und Spohn 1991, Villain 1991]. Bereits für eine zweidimensionale Oberfläche liegen keine exakten Resultate mehr vor, aber es existieren numerische Bestimmungen des Rauigkeitsexponenten h . Die Werte liegen überwiegend zwischen 0.33 und 0.40 ; der kleinste Wert beträgt 0.18 und der größte 0.41 (dem Übersichtsartikel von Krug und Spohn entnommen).

Trotz der experimentellen und theoretischen Unsicherheiten in der Bestimmung des Rauigkeitsexponenten wird deutlich, daß die GaAs/AlGaAs-Grenzflächen der hier diskutierten Proben eher mit Wachstumsmodellen mit nicht-konservativer Dynamik in Einklang stehen. Das ist zunächst überraschend, da in früheren Arbeiten gerade der Molekularstrahl-Epitaxie die konservative Dynamik zugeordnet wurde [Wolf und Villain 1990, Villain 1991]. In jüngster Zeit werden jedoch Modelle für die Molekularstrahl-Epitaxie diskutiert, die auch ohne Desorption für lange Zeiten das Skalenverhalten der KPZ-Gleichung zeigen [Yan 1992, Kessler et al. 1992]. Der nicht-konservative Charakter des Wachstums hängt dann mit Defekten (z.B. Leerstellen-Agglomeration) in der epitaxierten Schicht zusammen, die bei den hier untersuchten Proben allerdings auszuschließen sind.

Die Grundannahme der konservativen Dynamik impliziert für die Proben B bis E,

daß sich die Steigerung der Substrattemperatur bei gleichbleibendem V/III-Flußverhältnis lediglich in einer erhöhten Oberflächendiffusion niederschlägt, die somit zu immer glatteren Grenzflächen führen sollte. Ein Vergleich mit den weiter oben diskutierten Reflektivitäts- und Beugungsmessungen zeigt aber, daß wesentlich komplexere Prozesse auftreten :

1. Mit steigender Temperatur nimmt die vertikale Rauigkeit der invertierten Grenzfläche stark zu, die der normalen Grenzfläche bleibt im wesentlichen konstant.
2. Mit steigender Temperatur nimmt die AlGaAs-Wachstumsrate erst ab (Proben C und D), um bei der Epitaxie mit der höchsten Substrattemperatur (Probe E) wieder anzusteigen.

Angesichts dieser Umstände erscheint das Auftreten eines Rauigkeitsexponenten für nicht-konservative Dynamik plausibel, zumal das Skalenverhalten der (phänomenologischen) KPZ-Gleichung offenbar nicht an eine bestimmte mikroskopische Interpretation gebunden ist. Das Ausmaß der Ga-Desorption bei der Herstellung der hier untersuchten Proben blieb ungeklärt.

In der Q_x - Q_z -Ebene ausgedehnte Oszillationen der diffusen Streuung sind nach dem Wissen des Autors bisher nur für Übergitter publiziert worden (z.B. [Sinha 1991]). Korrelierte Grenzflächenrauigkeiten (auch "konforme Rauigkeit" genannt) werden dabei durch die mehr oder weniger starke Replikation der Höhenkontur der zuerst entstandenen Grenzfläche veranschaulicht. Wie in Abschnitt 6.4 dargelegt wurde, scheinen die normale und invertierte Grenzfläche der untersuchten Proben stark korrelierte Rauigkeiten aufzuweisen.

Dieser Ansicht widersprechen Ergebnisse von Walther [1993], der GaAs/AlAs-Quantentopfstrukturen mittels hochauflösender Transmissionselektronenmikroskopie untersuchte. Da sich die teilweise starken Fluktuationen der zuerst gewachsenen Grenzfläche nicht in derselben Form in der oberen Grenzfläche wiederfanden, folgert er die Unabhängigkeit der Grenzflächen beim MBE-Wachstum, sofern sie mehr als sieben Monolagen voneinander entfernt sind und solange keine Stufen von mehr als zwei Monolagen Höhe an der zuerst gewachsenen Grenzfläche auftreten¹¹. Da dies ungefähr den Wachstumsbedingungen der hier untersuchten Proben entspricht und insbesondere die letztgenannten Bedingungen für Probe C erfüllt sind (mit derselben experimentellen Methode ermittelt), besteht hier ein Widerspruch. Er konnte im Rahmen dieser Arbeit nicht aufgeklärt werden, doch weist möglicherweise eine theoretische Arbeit von Stearns [1992] einen Weg aus diesem Problem : Dort werden Übergitter mit Grenzflächenrauigkeiten betrachtet, deren Korrelation nicht im Ortsraum, sondern im Fourierraum vorliegt. In dieser Theorie muß die nachfolgend gewachsenen Grenzfläche nicht die Formfluktuationen der zuerst gewachsenen im Sinne einer (nahezu) identischen Höhenkontur wiederholen, um als korreliert zu gelten. Vielmehr wird jeder Grenzfläche ein Fourierspektrum zugeordnet; die Korrelation der Grenzflächenrauigkeiten wird dann durch einen (Raum-)frequenzabhängigen Replikationsfaktor charakterisiert.

Dieses abstraktere Konzept führt bei korrelierten Grenzflächenrauigkeiten ebenfalls zu Oszillationen in der diffusen Streuung; im Falle vollständiger Korrelation sollte dann im reziproken Raum eine resonanzartig erhöhte Intensität auf Ebenen senk-

¹¹Die Wachstumsbedingungen der untersuchten Proben waren : Substrattemperatur 650°C, V/III-Verhältnis 28 bzw. 14 für As/Ga und 230 bzw. 115 für As/Al sowie Epitaxie mit und ohne Wachstumsunterbrechung.

recht zu den (spekularen) Bragg-Maxima der Übergitter vorliegen. Partielle Korrelation äußert sich nach dieser Theorie in einer um so unschärferen Resonanzbedingung, je größer die laterale Komponente des Impulsübertrages ist. Übertragen auf die hier gegebenen Verhältnisse bei der diffusen Streuung (Schlitzdetektor, Schichtsystem mit nur einer Periode) bedeutet dies, daß die Oszillationen der diffusen Streuung die Gesamtdickenoszillationen der (spekularen) Reflektivität mit derselben Q_z -Abhängigkeit nachzeichnen sollten. Das entspricht den experimentellen Beobachtungen, die (im Rahmen der realisierten lateralen Impulsüberträge) keinerlei Hinweise auf eine Verschmierung der Oszillationen geben.

Kapitel 7

Zusammenfassung und Ausblick

In dieser Arbeit wurden mittels Molekularstrahlepitaxie hergestellte GaAs/AlAs- bzw. $\text{Al}_{0.7}\text{Ga}_{0.3}\text{As}$ -Schichtsysteme sowie das darauf befindliche Oxid durch den teilweise kombinierten Einsatz verschiedener Röntgenstreuverfahren zerstörungsfrei charakterisiert. Dabei handelte es sich um spiegelnde Reflexion und diffuse Streuung unter streifenförmigem Einfall sowie Röntgenbeugung und Absorptionsspektroskopie. Es wurden Schichtdicken, chemische Zusammensetzungen, vertikale und laterale Grenzflächenrauigkeiten sowie die Dichten der Oxide und die kristalline Qualität der epitaktischen Schichten bestimmt bzw. abgeschätzt.

Um den Einfluß systematischer Fehler zu überprüfen, wurden die Proben darüber hinaus mit einer Reihe unabhängiger Methoden charakterisiert; dabei wurde im wesentlichen eine gute Übereinstimmung bzw. Korrelation der Ergebnisse festgestellt.

Im einzelnen ergaben sich folgende **methodische Aspekte** :

Es wurde gezeigt, daß die spiegelnde Reflektivität unter streifendem Einfall sehr empfindlich auf die vertikale Rauigkeit äußerer und innerer Grenzflächen ist. Insbesondere konnte die Rauigkeit *innerer* Grenzflächen *getrennt* bestimmt werden, sofern sehr unterschiedliche Schichtdicken vorhanden waren.

Dies wurde erfolgreich benutzt, um die Übergangsbreiten normaler und invertierter Grenzflächen in Abhängigkeit von der Substrattemperatur quantitativ zu ermitteln. Dabei erwies sich das Rauigkeitsmodell von Névot und Croce als geeignet zur Beschreibung von Meßkurven über mehr als 6 Größenordnungen.

Es stellte sich heraus, daß eine dünne Oxidschicht auf den Proben die Reflektivität unterhalb von 10^{-3} beeinflusste und bei der Auswertung zu berücksichtigen war.

Die Information über die Rauigkeit der inneren Grenzflächen lag bei Reflektivitäten unterhalb von 10^{-4} . Dort kann Streustrahlung stark zur spiegelnd reflektierten Intensität beitragen und die Dynamik der Messung entscheidend begrenzen. Dieser die Reflexionskurve verfälschende Untergrund wurde hier je nach Energie der einfallenden Röntgenphotonen von Fluoreszenzstrahlung oder diffuser Streuung an Grenzflächenrauigkeiten dominiert. Es wurde gezeigt, daß eine separate Bestimmung des Untergrundes die Korrektur der Meßkurven mit vertretbarem Aufwand erlaubt. Die Auswertung nicht korrigierter Reflexionskurven täuscht eine zu große Rauigkeit der inneren und eine zu kleine Rauigkeit der äußeren Grenzfläche vor.

Die Verfälschung der Reflexionskurven durch diffuse Streuung stellte sich bei den hier untersuchten, relativ glatten Proben als gering heraus. Bei rauen Proben ist dies anders und erfordert zwingend eine solche Korrektur der Meßkurven, da mittels eines energieauflösenden Detektors oder eines Analysator-Kristalls nur inelastisch gestreuter Untergrund abgetrennt werden kann. Hierbei können jedoch neue Probleme auftreten (geringe Dynamik des Detektors bzw. verfälschter Abfall der Reflektivität bei stark gekrümmten Proben).

Durch Beugung und Reflektivität ermittelte Schichtdicken stimmten sehr gut überein. Aufgrund der großen Probenausleuchtung unter streifendem Einfall war dies allerdings nur wegen der hervorragenden lateralen Homogenität der Proben möglich.

Die Bestimmung des Al-Gehaltes der $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -Schichten aus der Lage des Satelliten-0. Ordnung mittels rein kinematischer Beziehungen führte auch bei Schichtdicken von nahezu 1000 Å zu relativen Fehlern von über 12 %. Hier war eine Simulation der Beugungsprofile auf der Basis der dynamischen Streutheorie unerlässlich.

Laterale Grenzflächenrauigkeiten wurden mit Hilfe der diffusen Streuung unter streifendem Einfall untersucht. Insbesondere wurden ausgeprägte Oszillationen der diffus gestreuten Intensität beobachtet, die die Oszillationen der spekularen Reflexionskurve mit derselben Q_z -Abhängigkeit (Impulsübertrag senkrecht zur Oberfläche) nachzeichneten. Im Rahmen der Messungen konnte keine Abhängigkeit dieser Oszillationen vom lateralen Impulsübertrag festgestellt werden. Eine solche Struktur des reziproken Raumes für kleine Streuvektoren weist vermutlich auf stark korrelierte Grenzflächenrauigkeiten hin; es wurde anhand experimenteller Daten die Eignung verschiedener Meßmodi der diffusen Streuung zur Erfassung dieser Strukturen diskutiert.

Zur Auswertung der Messungen unter streifendem Einfall wurden Simulationsprogramme erstellt, bei denen besonders auf numerische Stabilität geachtet wurde. Dies stellte sich als besonders wichtig für die Simulation der diffusen Streuung bei Rauigkeitsexponenten $h < 0.25$ heraus.

Es konnte analytisch gezeigt werden, unter welcher Bedingung die diffus gestreute Intensität proportional zur Korrelationslänge ist. Des weiteren wurde das Streuintegral für den vollen Strukturfaktor der rauen Grenzfläche in zwei Sonderfällen explizit berechnet.

Für die materialspezifischen Aspekte ergab sich :

Die untersuchten Schichtsysteme waren von hervorragender kristalliner Qualität und lateraler Homogenität. Abweichungen vom pseudomorphen Wachstum wurden nicht gefunden. Die Proben waren z.T. erheblich stärker gekrümmt als aufgrund der dadurch hervorgerufenen Verspannung zu erwarten gewesen wäre.

Es wurde nur eine geringe Variation des Al-Gehaltes bei den zwischen 605°C und 685°C Substrattemperatur hergestellten Proben beobachtet. Hinweise auf eine ab 650°C stark erhöhte Ga-Desorption wurden ebenso wenig gefunden wie ein damit korrelierter Rückgang der AlGaAs-Wachstumsrate.

Die Breite der Heteroübergänge als Funktion der Wachstumstemperatur zeigte sehr unterschiedliches Verhalten. Während die Übergangsbreite der invertierten Grenzfläche von 3.7 auf 5.7 Monolagen anstieg, fluktuierte die Breite der normalen Grenzfläche um 3 Monolagen. Stets war die normale Grenzfläche schärfer als die invertierte. Damit wurde erstmals mittels Röntgenstreuung nachgewiesen, daß auch sehr gute Proben aus der

Molekularstrahlepitaxie auf einer lateralen Längenskala von ca. 1000 Å keine idealen abrupten Grenzflächen besitzen.

Für die laterale Rauigkeit dieser Grenzflächen wurden Korrelationslängen zwischen 100 und 1000 Å abgeschätzt. Die Rauigkeitsexponenten nahmen typischerweise Werte zwischen 0.2 und 0.5 an. Dies weist auf Wachstumsprozesse mit nicht-konservativer Dynamik hin; signifikante Ga-Desorption konnte jedoch in keinem Fall nachgewiesen werden.

Obige Größen erlaubten eine Abschätzung der mittleren Terrassenweiten während der Epitaxie zu einigen 10 bzw. 100 Å. Dazu wurde eine Beziehung aus der statistischen Mechanik von Wachstumsprozessen verwendet.

Das natürliche Oxid auf den Proben (GaAs(001)-Oberfläche) lag in amorpher Form vor und bildete eine ca. 20 Å dicke Oxidschicht, die eine stark reduzierte Dichte sowie z.T. Löcher aufwies. Es bestand vor allem aus Ga_2O_3 (auf allen Proben nachweisbar); der Anteil an As_2O_3 bzw. As_2O_5 variierte.

Die Korrelation mit den Ergebnissen anderer Untersuchungsmethoden zeigte in den meisten Fällen gute Übereinstimmung; es wurden jedoch auch systematische Abweichungen gefunden. Folgende Aussagen können hinsichtlich der einzelnen Methoden getroffen werden :

- 1) Anders als bei der Photoemissionsspektroskopie konnte mittels Absorptionsspektroskopie unter Totalreflexion ein Anteil des As-Oxids von ca. 20 % an der (im Vergleich zur Eindringtiefe der Röntgenstrahlen dünnen) Oxidschicht nicht mehr nachgewiesen werden. Der überwiegende Oxidationszustand des Ga war jedoch mit Absorptionsspektroskopie leichter zu identifizieren.
- 2) Ellipsometrisch bestimmte Schichtdicken stimmten für GaAs und $\text{Al}_{0.7}\text{Ga}_{0.3}\text{As}$ bis auf ca. 10 Å mit den stets größeren Werten aus der Röntgenstreuung überein. Für die Oxidschicht ergaben sich ausnahmslos zu große Dicken.
- 3) Die Bestimmung des Al-Gehaltes mittels Ramanspektroskopie, Ellipsometrie und Röntgenbeugung lieferte stark voneinander abweichende Werte. Dies betrifft sowohl den absoluten Gehalt als auch relative Veränderungen beim Vergleich verschiedener Proben.
- 4) Mittels Rutherford-Rückstreuung bestimmte Schichtdicken stimmten wesentlich besser für $\text{Al}_{0.7}\text{Ga}_{0.3}\text{As}$ mit den Ergebnissen der anderen Methoden überein als für GaAs oder AlAs.
- 5) Durch Rasterkraftmikroskopie erstellte Oberflächentopographien und aus der Röntgenreflexion folgende Oberflächenrauigkeiten konnten miteinander korreliert werden.
- 6) Die elektronenmikroskopisch ermittelte Übergangsbreite der normalen Grenzfläche stimmte sehr gut mit den Werten aus der Röntgenreflexion überein.

Die Ergebnisse zeigen, daß neben der Röntgenbeugung die Röntgenreflexion unter streifendem Einfall wichtige Beiträge zur Charakterisierung epitaktischer Schichtsysteme liefern kann. Herausragender Beitrag ist die Bestimmung absoluter Breiten von Heteroübergängen sowie die Bestimmung lateraler Rauigkeitsparameter. Bei Proben mit stark gestörter Kristallinität erlaubt die Röntgenreflexion darüber hinaus noch eine einfache Ermittlung von Schichtdicken; hier sind Beugungsmessungen sehr viel

schwieriger in der Interpretation. Nachteilig ist zweifellos die im Vergleich zur Beugung aufwendigere Probenjustage sowie die Notwendigkeit relativ großer und homogener Proben.

Da die Röntgenbeugung als Standardverfahren zur Charakterisierung epitaktischer Schichtsysteme sehr gut geeignet ist, wird daher die Streuung unter streifendem Einfall eher speziellen Fragestellungen vorbehalten sein. Hier ist in Zukunft vor allem an die Untersuchung der Korrelation von Grenzflächenrauigkeiten in Vielschichtsystemen bzw. Übergittern zu denken sowie an eine präzise Bestimmung von Rauigkeitsexponenten unter verschiedenen Depositionsbedingungen.

Anhang A

Statistische Skaleninvarianz von Grenzflächen

Im folgenden wird das Rauigkeitskonzept skizziert, das sowohl der Beschreibung der diffusen Streuung nach Sinha et al. [1988] als auch dem theoretischen Verständnis der kinetischen Aufrauung beim Wachstum dünner Schichten zugrunde liegt. Es entstammt der statistischen Mechanik, mit der Wachstumsprozesse in jüngerer Zeit intensiv untersucht wurden (siehe z. B. [Vicsek 1989]). Von besonderem Interesse ist die Statistik der Formfluktuationen auf räumlichen und zeitlichen Skalen, die groß sind gegenüber atomaren Abständen und Anlagerungszeiten. Das Postulat einer invarianten Statistik unter geeigneter Reskalierung von Längen und Zeit hat weitreichende physikalische Konsequenzen, die experimentell überprüfbar sind. Die Eigenschaft der statistischen Skaleninvarianz besagt, daß es für Fluktuationen keine ausgezeichnete Längen- oder Zeitskala gibt. Das erlaubt eine Charakterisierung von Wachstumsprozessen durch ihr Verhalten unter Skalentransformationen und somit eine Klassifizierung, die weitgehend unabhängig von den Details der mikroskopischen Kinetik ist.

A.1 Statischer Fall : Grenzflächen-Morphologie

Grundlegend ist die Vorstellung, daß statistische Fluktuationen von rauen Grenzflächen von der Skala abhängen, auf der sie bestimmt werden. Dabei ist es unerheblich, ob die raue Grenzfläche durch Hinzufügen (z. B. Kristallwachstum) oder Entfernen von Material (z. B. Korrosion) bzw. durch einen anderen Prozeß erzeugt worden ist [Family 1990]. Die Beschreibung der Fluktuationen geschieht durch typische Längen parallel und senkrecht zur Grenzfläche. Eine Messung auf der horizontalen Skala L (beispielsweise eine Scanlänge im Rastertunnelmikroskop) wird dann beschrieben durch eine mittlere Amplitude σ der vertikalen Fluktuationen¹. Im Falle statistischer Skaleninvarianz gilt :

$$\sigma(L) \sim L^h \quad 0 < h < 1. \quad (\text{A.1})$$

¹In der Literatur werden für σ und die in Abschnitt A.2 eingeführte Größe ξ auch $\xi_{\perp}$ bzw. $\xi_{\parallel}$ verwendet [Krug u. Spohn 1991]. Statt σ benutzen He et al. [1992] auch die Variable w ("interface width").

Ein solche raue Grenzfläche wird durch den Rauigkeitsexponenten h eindeutig charakterisiert ². Die Bedingung $h < 1$ sichert die Existenz einer wohldefinierten makroskopischen Oberfläche, da dann die relativen Höhenfluktuationen $\frac{\sigma(L)}{L}$ für $L \rightarrow \infty$ verschwinden. Gl. (A.1) ist invariant unter einer Reskalierung des parallelen Maßstabes, $L \rightarrow bL$ ($b > 0$), wenn gleichzeitig die transversale Richtung um den Faktor b^h reskaliert wird (anisotropes Skalenverhalten).

Die Anwendbarkeit dieses Konzeptes auf reale Oberflächen wird von Krim et al. [1993] u. a. durch Messungen der Oberflächenrauigkeit einer Gold-Elektrode unterstrichen. Mit Hilfe eines Rastertunnelmikroskops wurden für Scanlängen zwischen 100 Å und 1 µm mittlere Rauigkeiten bestimmt (Abb. A.1). Gl. (A.1) ist über 3 Größenordnungen mit einem Rauigkeitsexponenten $h = 0.96 \pm 0.02$ erfüllt.

Eine Veranschaulichung des Einflusses des Rauigkeitsexponenten h auf die Struktur einer Grenzfläche gibt Abb. A.2. Die Kurven (a) - (c) zeigen Grenzflächen mit skaleninvarianter Rauigkeit, die durch $h = 0.7, h = 0.5$ und $h = 0.3$ beschrieben werden. Je kleiner h wird, desto schroffer gezackt erscheint die Grenzfläche. Es kann gezeigt werden, daß mit $h > 0.5$ korrelierte Gradienten und mit $h < 0.5$ antikorrelierte Gradienten einhergehen. Für $h = 0.7$ bedeutet dies beispielsweise, daß die Wahrscheinlichkeit groß ist, in der Nähe eines Punktes mit einem gewissen Gradienten einen vergleichbaren Gradienten zu finden, so daß eine relativ schwach strukturierte Oberfläche mit "sanft" geschwungenen Tälern und Hügeln resultiert. Kurve (d) zeigt eine Rauigkeit, welche lediglich auf einer einzigen Längenskala auftritt. Es ist kein Zufall, daß die Kurven (a) - (c) fraktal anmuten, während Kurve (d) euklidisch ist. In der Tat ist es möglich, Profilen mit skaleninvarianter Rauigkeit unter gewissen Voraussetzungen eine fraktale Dimension d_f zuzuordnen (s. Abschnitt A.3). Für ein zweidimensionales Substrat gilt dann

$$d_f = 3 - h. \quad (\text{A.2})$$

A.2 Dynamischer Fall : Wachsende Oberflächen

Betrachtet man das Wachstums von Oberflächen, kommt eine Reskalierung der Zeitachse hinzu. Eine Oberflächenkontur werde durch eine Höhenfunktion $H(\mathbf{x}, t)$ beschrieben, wobei $\mathbf{x}$ ein Vektor in der Substratebene sei und t die Zeit darstelle. Die Höhenfunktion sei auf mesoskopischer Skala definiert, so daß einerseits die "Auflösung" ausreicht, um die stochastische Natur des Wachstumsprozesses zu erfassen, aber andererseits mikroskopische Details wie die Gitterstruktur nicht erfaßt werden. $H(\mathbf{x}, t)$ sei eine Zufallsfunktion, die relativ zur mittleren Höhe gemessen wird :

$$\langle H(\mathbf{x}, t) \rangle = 0. \quad (\text{A.3})$$

$\langle \rangle$ symbolisiert die Mittelung über alle $\mathbf{x}$ auf einer vorgegebenen Skala L . Dann definiert die Varianz

$$[\sigma(t)]^2 := \langle [H(\mathbf{x}, t)]^2 \rangle \quad (\text{A.4})$$

die mittlere vertikale Fluktuation auf dieser Skala.

²Vielfach werden auch die Symbole ζ [Lipowsky 1988, Krug u. Spohn 1991] und χ [Villain 1991] benutzt.

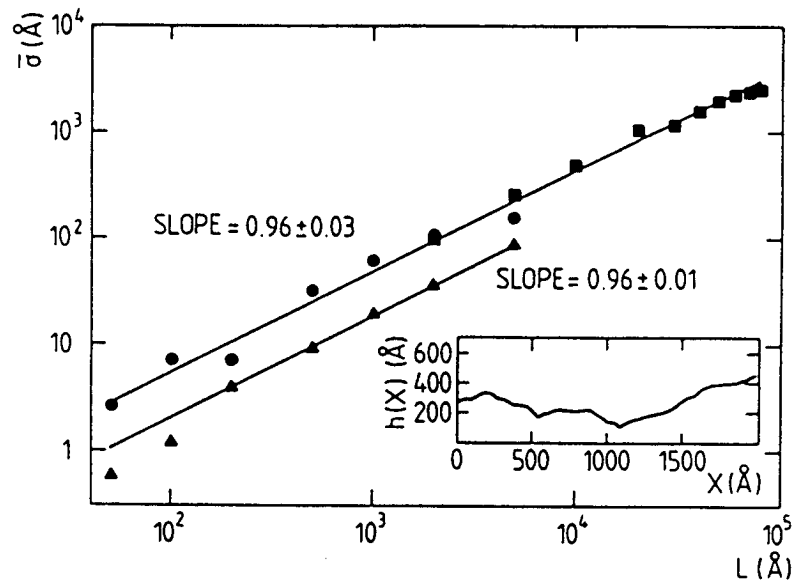


Abbildung A.1: Mittlere Rauigkeit einer Gold-Elektrode f. verschiedene Scanlängen eines Rastertunnelmikroskops. Die unteren Datenpunkte wurden im Vakuum gemessen, die oberen in Luft mit zwei verschiedenen Abtastköpfen. Nach Krim et al. [1993].

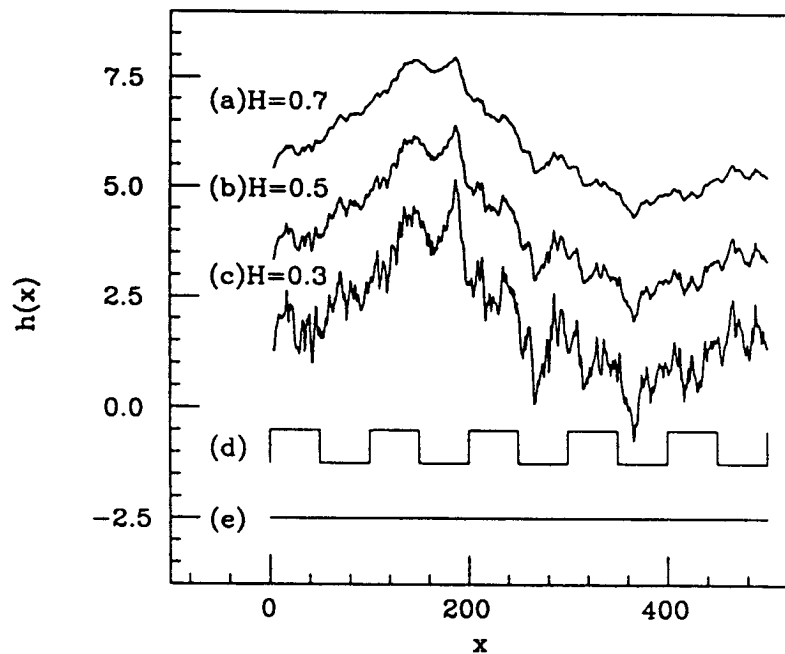


Abbildung A.2: Veranschaulichung dreier charakteristischer Oberflächenprofile : (a)-(c) skaleninvariant rauh, (d) auf einer ausgezeichneten Längenskala rauh und (e) planar. Nach Chiarello et al. [1991].

Die laterale Struktur der Rauigkeit kann durch mehrere Funktionen beschrieben werden : Die Höhendifferenz-Korrelationsfunktion

$$G(\mathbf{r}, t) := \langle [H(\mathbf{x}, t) - H(\mathbf{x} + \mathbf{r}, t)]^2 \rangle \quad (\text{A.5})$$

hat die Bedeutung einer mittleren quadratischen Höhenfluktuation *auf einer lateralen Entfernung* $\mathbf{r}$. Die Höhen-Höhen-Korrelationsfunktion

$$C(\mathbf{r}, t) := \langle H(\mathbf{x}, t) H(\mathbf{x} + \mathbf{r}, t) \rangle \quad (\text{A.6})$$

ist proportional zur Wahrscheinlichkeit, bei $\mathbf{x} + \mathbf{r}$ dieselbe Höhe zu finden wie am Orte $\mathbf{x}$. Falls die Höhen an beiden Orten statistisch unabhängig sind, zerfällt $C(\mathbf{r}, t)$ bis auf eine Normierungskonstante in ein Produkt unabhängiger Wahrscheinlichkeiten. Physikalisch sinnvolle $C(\mathbf{r}, t)$ verschwinden für $|\mathbf{r}| \rightarrow \infty$. Beide Korrelationsfunktionen sind verbunden durch

$$G(\mathbf{r}, t) = 2[\sigma(t)]^2 - 2C(\mathbf{r}, t). \quad (\text{A.7})$$

Das Postulat der Skaleninvarianz besagt, daß die Statistik der Kontur $H(\mathbf{x}, t)$ für jeden Skalenfaktor $b > 0$ identisch ist mit der Statistik der transformierten Kontur

$$H'(\mathbf{x}, t) = b^{-h} H(b\mathbf{x}, b^z t). \quad (\text{A.8})$$

Das Zeitverhalten wird durch den dynamischen Skalenexponenten z charakterisiert. Gl. (A.8) legt als Invarianzforderung die Exponenten h und z fest (Eigenwerte der Skalentransformation), die durch Skalenrelationen miteinander verknüpft sind [Krug u. Spohn 1991]. Aus Gl. (A.8) und (A.4) folgt direkt (A.1). Weiterhin impliziert das Skalenverhalten eine Homogenitätsrelation für $G(\mathbf{r}, t)$:

$$G(\mathbf{r}, t) = b^{-2h} G(b\mathbf{r}, b^z t). \quad (\text{A.9})$$

Im folgenden werden isotrope Grenzflächen betrachtet. Mit der Wahl $b = t^{-1/z}$ ergibt sich ³ :

$$G(r, t) = t^{2h/z} G\left(\frac{r}{t^{1/z}}, 1\right) =: t^{2h/z} g\left(\frac{r}{t^{1/z}}\right) \quad (\text{A.10})$$

Durch physikalische Überlegungen kann der asymptotische Verlauf der Skalenfunktion $g(x)$ ermittelt werden. Gemäß der Beschreibung des MBE-Wachstumsprozesses in Kapitel 2 existiert für $t = 0$ eine glatte Oberfläche :

$$G(r, t = 0) = 0. \quad (\text{A.11})$$

Für Zeiten $t > 0$ ist die Oberfläche aufgeraut. Die räumliche Ausbreitung der durch den Wachstumsprozeß erzeugten Rauigkeit ist zur Zeit t bis zu einer Längenskala $\xi(t)$ fortgeschritten; auf Abständen $r < \xi$ ist die Oberfläche gemäß (A.1) aufgeraut (und somit korreliert), während sich auf größeren Abständen noch der flache Anfangszustand in der Beibehaltung der Rauigkeit der Längenskala ξ widerspiegelt. Gibt man eine beliebige Längenskala vor, so erwartet man, daß typische Höhenfluktuationen im Laufe

³Abstände sollen in Einheiten der Gitterkonstanten, Zeiten in Einheiten einer typischen Anlagezeit gemessen werden. Die Wachstumsgeschwindigkeit der Oberfläche ist dann von der Größenordnung 1.

der Zeit anwachsen und dann konstant werden, sobald die Aufrauung auf größeren Längenskalen stattfindet. Diese Vorstellung impliziert, daß $G(r, t)$ zeitunabhängig wird für $t \rightarrow \infty$. Daraus folgt für das asymptotische Verhalten von $g(x)$ für kleine x :

$$g(x) \sim x^{2h} \quad (x \rightarrow 0). \quad (\text{A.12})$$

Die Bedingung (A.11) wird erfüllt durch :

$$g(x) = \text{const} \quad (x \rightarrow \infty). \quad (\text{A.13})$$

Der Verlauf von $g(x)$ hängt also nur für $x \approx 1$ von den Details des Wachstumsprozesses ab. Der Umschlag zwischen den beiden asymptotischen Verhaltensweisen findet bei $x \approx 1$ statt, d. h. wenn r gleich der Korrelationslänge $\xi(t)$ ist :

$$\xi(t) \sim t^{1/z}. \quad (\text{A.14})$$

Es gilt also :

$$G(r, t) \sim \begin{cases} r^{2h} & (r \ll \xi(t)) \\ (\xi(t))^{2h} \sim (\sigma(t))^2 & (r \gg \xi(t)) \end{cases} \quad (\text{A.15})$$

mit Hilfe der Beziehung (A.7).

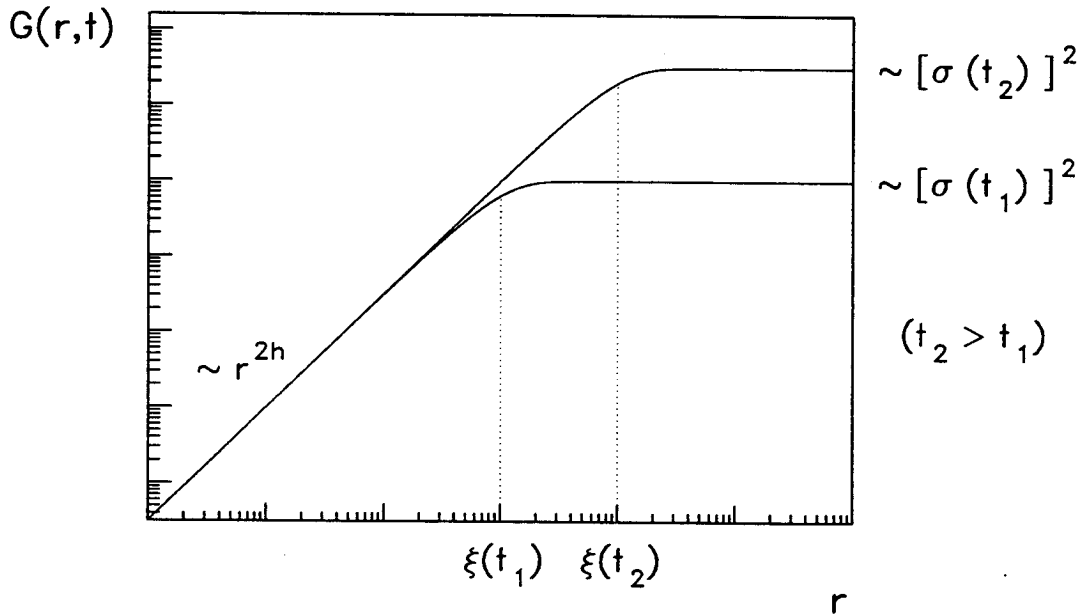


Abbildung A.3: Kinetische Aufrauung : Die zur Zeit t maximale Rauigkeit wird auf der Längenskala $\xi(t)$ erreicht und nimmt dort einen Sättigungswert an.

Somit gilt für die Schichtdicken-Abhängigkeit der kinetischen Aufrauung

$$\sigma(t) \sim t^{h/z} \sim d^{h/z}, \quad (\text{A.16})$$

wobei d die Dicke der aufgewachsenen Schicht ist ⁴. Aus (A.14) und (A.16) kann die zeitunabhängige Größe

$$w = \frac{\xi}{\sigma^{1/h}} \quad (\text{A.17})$$

gebildet werden. He et al. [1992] interpretieren sie (bis auf einen Vorfaktor der Größenordnung 1) als mittlere Terrassenweite während des Wachstums. Für praktische Rechnungen ist wiederum die Dimensionslosigkeit der Größen in obiger Gleichung zu beachten.

Für $t \rightarrow \infty$ divergiert die Korrelationslänge. In Analogie zu Phasenübergängen zweiter Ordnung wird dieses Verhalten durch die endliche Systemgröße unterdrückt (die kinetische Aufrauung ist spätestens dann zu Ende, wenn ξ in die Größenordnung der Linearabmessungen des Systems erreicht. Bei weiterer Vergrößerung der Schichtdicke tritt keine zusätzliche Aufrauung mehr auf).

Zum Schluß soll gezeigt werden, daß die in Kapitel 3 verwendete Höhen-Höhen-Korrelationsfunktion

$$C(r) = \sigma^2 \exp\left(-(r/\xi)^{2h}\right) \quad (\text{A.18})$$

in Einklang mit den hier dargelegten Vorstellungen steht. Es werden statische Verhältnisse angenommen, wie sie z. B. nach Beendigung des Schichtwachstums gegeben sind. Dann hat σ die Bedeutung der auf der Längenskala ξ erreichten (maximalen) Rauigkeit :

Der Gl. (A.7) entspricht die Beziehung

$$G(r) = 2\sigma^2 \left(1 - \exp\left(-(r/\xi)^{2h}\right)\right). \quad (\text{A.19})$$

Für den asymptotischen Bereich gilt in Übereinstimmung mit (A.15) :

$$G(r) = \begin{cases} 2\sigma^2 \left(\frac{r}{\xi}\right)^{2h} & (r \ll \xi) \\ 2\sigma^2 & (r \gg \xi) \end{cases}. \quad (\text{A.20})$$

In obiger Gleichung tritt die Terrassengröße w in natürlicher Weise auf :

$$G(r) = 2\sigma^2 \left(\frac{r}{\xi}\right)^{2h} = 2 \left(\frac{r}{w}\right)^{2h} \quad (r \ll \xi). \quad (\text{A.21})$$

⁴Jeweils in Einheiten der Gitterkonstanten.

A.3 Fraktale Dimension von Grenzflächen

Die (Hausdorff-)Dimension d_f von fraktalen Gebilden bestimmt sich aus der Potenz, mit der die Masse M mit dem Radius R anwächst [Mandelbrot 1982]

$$M \sim R^{d_f}. \quad (\text{A.22})$$

Grenzflächen, welche durch die Proportionalität (A.1) bzw. das anisotrope Skalierungsverhalten (A.8) beschrieben werden, kann eine begrenzte Fraktalität zugeschrieben werden. Es handelt sich hierbei um sogenannte selbstaffine Fraktale [Mandelbrot 1986], die von den selbstähnlichen Fraktalen zu unterscheiden sind. Entscheidend ist dabei das Auftreten einer Längenskala a , oberhalb derer die Grenzflächen glatt aussehen, während sie unterhalb fraktales Aussehen aufweisen. Diese Länge hängt mit dem Proportionalitätsfaktor in (A.1) zusammen :

$$\sigma(L) = a \left(\frac{L}{a} \right)^h. \quad (\text{A.23})$$

Es kann gezeigt werden , daß nach der Definition (A.22) die fraktale Dimensionalität von der betrachteten Längenskala abhängt :

$$d_f = \begin{cases} d_s + 1 - h & (L < a) \\ d_s & (L > a) \end{cases}. \quad (\text{A.24})$$

(d_s ist die Dimension des Substrates.) Ein fraktales Verhalten gibt es also nur "lokal" unterhalb einer Längenskala a . Bei physikalischen Problemen kann es vorkommen , daß a von der Größenordnung der Gitterkonstanten ist. Da in diesen Fällen das betrachtete physikalische Objekt stets nur die gewöhnliche Dimension des Substrats aufweist, ist der Parameter h zur Beschreibung der Rauigkeit wesentlich besser geeignet als die fraktale Dimension d_f [Krug u. Spohn 1991].

Anhang B

Materialparameter

Die folgende Tabelle enthält die in dieser Arbeit verwendeten Materialparameter. Die Werte wurden nach einem kritischen Vergleich verschiedener Quellen ausgewählt. Besonderer Wert wurde auf die Konsistenz von Gitterkonstante und Massendichte gelegt, um Daten aus der Röntgenbeugung bzw. Reflektivität unter streifendem Einfall mit vergleichbaren Parametern auszuwerten.

	a [Å]	ρ [g/cm ³]	c_{11} [10 ¹⁰ Pa]	c_{12} [10 ¹⁰ Pa]
GaAs	5.65325 (a)	5.3176 (a)	11.88 (b)	5.38 (b)
AlAs	5.6616 (c)	3.730 (d)	12.02 (b)	5.70 (b)
Al _x Ga _{1-x} As (0 < x ≤ 1)	5.6533 + 0.0083 · x (e)	5.318 - 1.588 · x (e)	11.88 + 0.14 · x (b)	5.38 + 0.32 · x (b)

Tabelle B.1: Gitterkonstante a, Massendichte ρ und die elastischen Konstanten c_{11} und c_{12} bei Raumtemperatur (300 K). Referenzen : (a) [Landolt-Börnstein 1987], (b) [Adachi 1985], (c) [Philips 1990], (d) berechneter Wert, (e) Interpolation analog zu [Adachi 1985].

Literaturverzeichnis

- [Adachi 1985] S. Adachi, J. Appl. Phys. **58** (3), R1.
- [Aspnes et al. 1981] D.E. Aspnes, G.P. Schwartz, G.J. Gualtieri, A.A. Studna und B. Schwartz, J. Electrochem. Soc. **128**, 590.
- [Aspnes et al. 1986] D.E. Aspnes, S.M. Kelso, R.A. Logan und R. Bhat, J. Appl. Phys. **60** (2), 754.
- [Bartels et al. 1986] W.J. Bartels, J. Hornstra und D.J.W. Lobeek, Acta Cryst. **A42**, 539.
- [Bimberg et al. 1992] D. Bimberg, F. Heinrichsdorff, R.K. Bauer, D. Gerthsen, D. Stenkamp, D.E. Mars und J.N. Miller, J. Vac. Sci. Technol. B **10** (4), 1793.
- [Bode u. Ourmazd 1992] M.H. Bode und A. Ourmazd, J. Vac. Sci. Technol. B **10** (4), 1787.
- [Born 1985] M. Born, "Optik", Kap. 1, Springer-Verlag, Berlin, Nachdruck der 3. Auflage.
- [Chevrier et al. 1991] J. Chevrier, V. Le Thanh, R. Buys und J. Derrien, Europhys. Lett. **16** (8), 737.
- [Chiarello et al. 1991] R. Chiarello, V. Panella, und J. Krim, C. Thompson, Phys. Rev. Lett. **67**, 3408.
- [CRC 1991] CRC Handbook of Chemistry and Physics, Hrsg. D.R. Lide, CRC Press, Boca Raton, 72. Auflage.
- [Cromer u. Liberman 1970] D.T. Cromer u. D. Liberman, J. Chem. Phys. **53**, 1891.
- [Cromer 1983] D.T. Cromer, J. Appl. Cryst. **16**, 437.
- [Däweritz u. Hey 1990] L. Däweritz und R. Hey, Surface Science **236**, 15.
- [Doolittle 1985] L.R. Doolittle, Nucl. Instr. and Meth. B **9**, 344.
- [Drummond 1984] J.E. Drummond, J. Comput. Appl. Math. **11**, 145.
- [Family 1990] F. Family, Physica A **168**, 561.

- [Feder 1988] J. Feder, "Fractals", Plenum, New York.
- [Fewster u. Curling 1987] P.F. Fewster und C.J. Curling, J. Appl. Phys. **62** , 4154.
- [Feynman 1977] R.P. Feynman, R.B. Leighton und M. Sands, "The Feynman Lectures on Physics", Band I, Kap. 31, Addison-Wesley Publishing Company, Reading, 6. Auflage.
- [Flamm et al. 1981] D. Flamm, E.-H. Weber, L. Däweritz und G. Leonhardt, Phys. d. Halbleiteroberfl. **12** , 59.
- [Förster et al. 1994] A. Förster, J. Lange, D. Gerthsen, C. Dieker und H. Lüth, J. Phys. D **27** , 175.
- [Foxon u. Joyce 1975] C.T. Foxon und B.A. Joyce, Surface Science **50**, 434.
- [Foxon 1978] C.T. Foxon, Acta Electronica **21**, 139.
- [Garoff et al. 1989] S. Garoff, E.B. Sirota, S.K. Sinha und H.B. Stanley, J. Chem. Phys. **90**, 7505.
- [Halliwell et al. 1989] M.A.G. Halliwell, M.H. Lyons, S.T. Davey, M. Hockley, C.G. Tuppen und C.J. Gibbings, Semicond. Sci. Technol. **4** , 10.
- [Harada et al. 1989] J. Harada, M. Takata, H. Miyatake und H. Koyama, J. Appl. Cryst. **22**, 592.
- [He et al. 1992] Y.-L. He, H.-N. Yang, T.-M. Lu, und G.-C. Wang, Phys. Rev. Lett. **69** , 3770.
- [Hornstra u. Bartels 1978] J. Hornstra und W.J. Bartels, J. Cryst. Growth **44** , 513.
- [Hüppauff 1993] M. Hüppauff, "Charakterisierung von dünnen Schichten und von Gläsern mit Röntgenreflexion und Röntgenfluoreszenzanalyse bei streifendem Einfall", JÜL-Report, JÜL-2730 und Dissertation RWTH Aachen.
- [Hurst 1951] H.F. Hurst, Trans. Am. Soc. Civ. Eng. **116** , 770.
- [Ibach u. Lüth 1990] H. Ibach und H. Lüth, "Festkörperphysik : Einführung in die Grundlagen", Springer-Verlag, Berlin, 3. Auflage.
- [Ingrey et al. 1986] S. Ingrey, W.M. Lau und N.S. McIntyre, J. Vac. Sci. Technol. A **4** (3), 984.
- [James 1967] R.W. James, "The Optical Principles of the Diffraction of X-Rays", Cornell University Press.
- [John et al. 1985] W. John, H. Sommer und A. Meisel, Phys. d. Halbleiters oberfl. **16** , 315.

- [Joyce 1985] B.A. Joyce, NATO ASI Series E **87**, 37, Kluwer Academic, Dordrecht.
- [Kardar et al. 1986] M. Kardar, G. Parisi und Y. Zhang, Phys. Rev. Lett. **56**, 889.
- [Kervarec et al. 1984] J. Kervarec, M. Baudet, J. Caulet, P. Auvray, J.Y. Emery und A. Regreny, J. Appl. Cryst. **17**, 196.
- [Kessler et al. 1992] D.A. Kessler, H. Levine und L. Sander, Phys. Rev. Lett. **69**, 100.
- [Kiessig 1931] H. Kiessig, Ann. Physik **10**, 769.
- [Kissel u. Pratt 1990] L. Kissel u. R.H. Pratt, Acta Cryst. **A46**, 175.
- [Krim et al. 1993] J. Krim, I. Heyvaert, C. Van Haesendonck, und Y. Bruynseraede, Phys. Rev. Lett. **70**, 57.
- [Krug u. Spohn 1991] J. Krug und H. Spohn in "Solids Far From Equilibrium : Growth, Morphology and Defects", Kap. 6, Hrsg. C. Godrèche , Cambridge University Press.
- [Kubon 1991] M. Kubon, Diplomarbeit RWTH Aachen.
- [Landolt-Börnstein 1987] Landolt-Börnstein, Zahlenwerte und Funktionen aus Naturwissenschaft und Technik, Neue Serie, Gruppe III : Kristall- und Festkörperphysik, Hrsg. O. Madelung, Springer-Verlag, Berlin.
- [Lekner 1987] J. Lekner, "Theory of Reflection", Martinus Nijhoff Publishers, Dordrecht.
- [Lengeler 1987] B. Lengeler in "Synchrotronstrahlung in der Festkörperforschung ", 18. IFF-Ferienkurs der Kernforschungsanlage Jülich (16.-27.3.1987), Vorlesungsmanuskripte.
- [Lengeler 1990] B. Lengeler in "Photoemission and Absorption Spectroscopy of Solids and Interfaces with Synchrotron Radiation", Hrsg. M. Campagna und R. Rosei, North Holland.
- [Lipowsky 1988] R. Lipowsky in "Random Fluctuations and Pattern Growth", Hrsg. H.E. Stanley und N. Ostrowsky, NATO ASI Series E **157**, Kluwer Academic, Dordrecht.
- [Littmark u. Ziegler 1980] U. Littmark u. J.F. Ziegler in "Range Distributions for Energetic Ions in All Elements, Vol.6, Stopping and Ranges of Ions in Matter", Hrsg. J.F. Ziegler, Pergamon Press, New York.

- [Macrander et al. 1988] A.T. Macrander, G.P. Schwartz und G.J. Gualtieri, J. Appl. Phys. **64** , 6733.
- [Madhukar 1988] A. Madhukar, Mat. Res. Soc. Symp. Proc. **102**, 3.
- [Madhukar 1990] A. Madhukar in "Physics of Quantum Electron Devices", Kap. 2, Hrsg. F. Capasso, Springer Verlag, Berlin.
- [Mandelbrot 1982] B.B. Mandelbrot , "The Fractal Geometry of Nature", Freeman, New York.
- [Mandelbrot 1986] B.B. Mandelbrot in "Fractals in Physics", Hrsg. L. Pietronero und E. Tosatti, North-Holland, Amsterdam.
- [Matthews u. Blakeslee 1974] J.W. Matthews und A.E. Blakeslee, J. Cryst. Growth **27**, 118.
- [Müllender 1992] S. Müllender, Diplomarbeit RWTH Aachen.
- [Nagai 1981] H. Nagai , Jap. J. Appl. Phys. **20**, 793.
- [Nénot u. Croce 1980] L. Nénot und P. Croce, Rev. Phys. Appl. **15**, 761.
- [Oshiyama u. Saito 1987] A. Oshiyama und M. Saito, J. Phys. Soc. Jap. **56** (6), 2104.
- [Ourmazd et al. 1989] A. Ourmazd, D.W. Taylor, J. Cunningham und C.W. Tu, Phys. Rev. Lett. **62**, 933.
- [Ourmazd et al. 1990] A. Ourmazd, F.H. Baumann, M. Bode und Y. Kim, Ultramicroscopy **34**, 237.
- [Parratt 1954] L.G. Parratt, Phys. Rev. **95**, 359.
- [People u. Bean 1985] R. People und J.C. Bean , Appl. Phys. Lett. **47**, 322; Erratum **49**, 229 (1986).
- [Philips 1990] "Substrate Tables for High Resolution X-Ray Diffraction", Handbuch zum MPD1880/HR-Röntgendiffraktometer der Firma Philips.
- [Saint-Cricq et al. 1987] N. Saint-Cricq, G. Landa, J.B. Renucci, I. Hardy und A. Munoz-Yague, J. Appl. Phys. **61** (3), 1206.
- [Sanyal et al. 1992] M.K. Sanyal, S.K. Sinha, A. Gibaud, S.K. Satija, C.F. Majkrzak und H. Homma, Mat. Res. Soc. Symp. Proc. **237**, 393.
- [Schneider 1992] M. Schneider, Diplomarbeit Universität zu Köln.
- [Segmüller et al. 1977] A. Segmüller, P. Krishna und L. Esaki, J. Appl. Cryst. **10**, 1.

- [Sinha et al. 1988] S.K. Sinha, E.B. Sirota, und S. Garoff, H.B. Stanley, Phys. Rev. B **38**, 2297.
- [Sinha 1991] S.K. Sinha, Physica B **173**, 25.
- [Stanglmeier 1990] F. Stanglmeier, "Bestimmung der dispersiven Korrektur $f'(E)$ zum Atomformfaktor aus der Totalreflexion von Röntgenstrahlen", JÜL-Report, JÜL-2346 und Dissertation RWTH Aachen.
- [Stanglmeier et al. 1992] F. Stanglmeier, B. Lengeler, W. Weber, H. Göbel und M. Schuster, Acta Cryst. A **48**, 626.
- [Stearns 1992] D.G. Stearns, J. Appl. Phys. **71** (9), 4286.
- [Storb 1990] C. Storb, Diplomarbeit RWTH Aachen.
- [Storb 1991] C. Storb, U. Dedek, W. Weber, B. Lengeler und M. Schuster, Nucl. Instr. and Meth. A **306**, 544.
- [Sudijono et al. 1992] J. Sudijono, M.D. Johnson, C.W. Snyder, M.B. Elowitz und B.G. Orr, Phys. Rev. Lett. **69**, 2811.
- [Sudijono et al. 1993] J. Sudijono, M.D. Johnson, M.B. Elowitz, C.W. Snyder und B.G. Orr, Surface Science **280**, 247.
- [Takagi 1962] S. Takagi, Acta Cryst. **15**, 1311.
- [Takagi 1969] S. Takagi, J. Phys. Soc. Jap. **26**, 1239.
- [Tanaka u. Sakaki 1987] M. Tanaka und H. Sakaki, J. Cryst. Growth **81**, 153.
- [Taupin 1964] D. Taupin, Bull. Soc. Fr. Mineral. Cristallogr. **87**, 469.
- [Vegard 1921] L. Vegard, Zeit. f. Physik **5**, 17.
- [Veigele 1974] W.J. Veigele in "Handbook of Spectroscopy", Vol. I, Hrsg. J.W. Robinson, CRC Press, Cleveland.
- [Vicsek 1989] T. Vicsek, "Fractal Growth Phenomena", World Scientific, Singapore.
- [Vidal u. Vincent 1984] B. Vidal und P. Vincent, Appl. Optics **23**, 1794.
- [Villain 1991] J. Villain, J. Phys. I **1**, 19.
- [Walther 1993] T. Walther, Diplomarbeit RWTH Aachen.
- [Wang et al. 1982] X. Wang, A. Reyes-Mena und D. Lichtman, J. Electrochem. Soc. Solid State **4**, 851.

- [Weber 1992] W. Weber, "Untersuchung der Oberflächenrauigkeit dünner Schichten durch Messung der diffusen Streuung und der Reflektivität von harten Röntgenstrahlen", JÜL-Report, JÜL-2603 und Dissertation RWTH Aachen.
- [Weber u. Lengeler 1992] W. Weber und B. Lengeler, Phys. Rev. B **46**, 7953.
- [Wolf u. Villain 1990] D.E. Wolf und J. Villain, Europhys. Lett. **13**, 389.
- [Xiong et al. 1988] F. Xiong, T.A. Tombrello, H.Z. Chen, H. Morkoc und A. Yariv, J. Vac. Sci. Technol. B **6** (2), 758.
- [Yan 1992] H. Yan, Phys. Rev. Lett. **68**, 3048.
- [Zaus 1992] R. Zaus, Dissertation LMU München.
- [Zettler et al. 1992] J.Th. Zettler, H. Mikkelsen, K. Leo, H. Kurz, R. Carius und A. Förster, Phys. Rev. B **46**, 15955.

Danksagung

Mein besonderer Dank gilt Herrn Prof. Dr. B. Lengeler für die Anregung zu dieser Arbeit und für seine hervorragende Betreuung in der gesamten Zeit, während der er stets zu fruchtbaren Diskussionen bereit war und immer wieder wichtige Impulse gab. Außerdem möchte ich ihm für das angenehme Arbeitsklima in unserer Gruppe danken.

Bei Herrn Prof. Dr. W. Schilling bedanke ich mich für die Möglichkeit, diese Arbeit am Institut Gitterfehlordnung des Instituts für Festkörperforschung durchführen zu können.

Herrn Prof. Dr. H. Lüth danke ich für sein förderndes Interesse an dieser Arbeit.

Herrn Dr. M. Hüppauff sei in besonderer Weise für die freundschaftliche Zusammenarbeit in Jülich und während der Meßzeiten sowie für viele interessante Diskussionen nicht nur über Physik gedankt.

Herrn U. Dedek danke ich für seine geduldige und freundschaftliche Hilfe bei der Überwindung vieler technischer Schwierigkeiten.

Bei Herrn Dr. A. Förster bedanke ich mich für die Herstellung der Proben und die Diskussionen zum MBE-Wachstum.

Herrn Dr. J. Krug danke ich für die Diskussionen zur Theorie der kinetischen Aufrauhung.

Herrn Dr. R. Zeller danke ich für seine Hilfe bei der Erstellung numerisch stabiler Algorithmen.

Bei Frau C. Dieker bedanke ich mich für die Anfertigung der elektronenmikroskopischen Aufnahmen.

Frau C. Domke danke ich für die Erstellung von Rasterkraftmikroskopie-Aufnahmen.

Bei Herrn Dr. R. Kohleick bedanke ich mich für die Photoemissions-Messungen.

Herrn Dr. H. Mänder danke ich für die Untersuchungen mittels Ramanspektroskopie.

Bei Herrn K. Schmidt bedanke ich mich für die RBS-Analyse der Proben.

Herrn Dr. J. Zettler danke ich für die ellipsometrische Proben-Charakterisierung.

Den Mitarbeitern der Werkstatt danke ich für die zuverlässige Durchführung der Aufträge.

Bei Herrn Prof. Dr. G. Materlik bedanke ich mich für die Möglichkeit, am Hamburger Synchrotronstrahlungslabor experimentieren zu können, sowie bei den Herren Dr. T. Gog, Dr. T. Kracht und G. Meyer für ihre Hilfe während der Meßzeiten.

Schließlich danke ich meinen Eltern und ganz besonders herzlich Nicole für ihre stetige Unterstützung.

JÜL-2894

April 1994

ISSN 0944-2952