

**Wachstum von ultradünnen Oxid-
(Ga₂O₃) und Metallschichten (Fe, Ga) auf
GaAs und CoGa**

Inaugural – Dissertation

zur
Erlangung des Doktorgrades der
Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät
der Heinrich-Heine-Universität Düsseldorf

vorgelegt von

Domocos Adolf Kovács

aus Dumbrăveni (RUMÄNIEN)

Mai 2003

Gedruckt mit der Genehmigung der Mathematisch-Naturwissenschaftlichen
Fakultät der Heinrich-Heine-Universität Düsseldorf

Referent: Prof. Dr. René Franchy

Koreferent: Prof. Dr. Klaus Schierbaum

Tag der mündlichen Prüfung: 20 Mai 2003

Inhaltsverzeichnis

Einleitung	1
1 Wachstumsprozesse	5
1.1 Thermodynamik des Wachstums	5
1.2 Kinetik des Wachstums	7
2 Grundlagen der Untersuchungsmethoden	11
2.1 Streuung thermischer Heliumatome	12
2.1.1 Wechselwirkung mit Oberflächen	13
2.1.2 Beugung an lateralen Strukturen	14
2.1.3 Diffuse Streuung	18
2.1.4 Beugung an gestuften Oberflächen	19
2.1.5 Der Debye-Waller-Effekt	23
2.2 Augerelektronenspektroskopie	26
2.3 Beugung niederenergetischer Elektronen	31
3 Experimentelles	35
3.1 Versuchsaufbau	35
3.1.1 Die hochauflösende Helium-Streuapparatur I.....	35
3.1.2 UHV-Apparatur II	38
3.2 Charakterisierung der verwendeten Materialien	41
3.2.1 Der GaAs-Kristall	41
3.2.2 Die intermetallische Verbindung CoGa	42
3.2.3 Eisen (Fe)	43
3.2.4 Gallium (Ga)	44
3.2.5 Eisenoxide	45
3.2.6 Galliumoxide	45
3.2.7 Thermodynamische Eigenschaften	46

4 Wachstum von Fe und Fe/Ga₂O₃/Fe₃Ga_{2-x}As_x- Multischichten auf GaAs(100)	49
4.1 Die reine GaAs(100)-Oberfläche	50
4.2 Wachstum von Fe auf GaAs(100)	52
4.2.1 AES-Untersuchungen des Fe-Wachstums bei 300 K	53
4.2.2 Thermische Stabilität der Fe-Filme	54
4.2.3 Wachstum und Struktur von Fe auf GaAs(100).....	57
4.3 Präparation von Fe/ Ga ₂ O ₃ / Fe ₃ Ga _{2-x} As _x - Multischichten	62
4.3.1 Wachstum und Charakterisierung einer Fe ₃ Ga _{2-x} As _x - Legierung	62
4.3.2 Herstellung des Schichtsystems Ga ₂ O ₃ / Fe ₃ Ga _{2-x} As _x / GaAs(100)	66
4.3.3 Fe-Wachstum auf Ga ₂ O ₃ /Fe ₃ Ga _{2-x} As _x /GaAs(100).....	71
4.4 Zusammenfassung und Diskussion	73
5 Wachstum von Fe auf CoGa(100)	75
5.1 Die reine CoGa(100)-Oberfläche	77
5.1.1 Herstellung der reinen CoGa(100) – Oberfläche	77
5.1.2 Einfluss der Präparation auf die Oberflächenstruktur	79
5.2 Wachstum von Fe auf CoGa(100) bei 300 K	83
5.2.1 Untersuchung des Wachstumsverhalten.....	84
5.2.2 Struktur und Morphologie des Schichtsystems Fe/CoGa(100)...	86
5.2.3 Diskussion und Zusammenfassung	90
5.3 Thermische Stabilität des Schichtsystems Fe/CoGa(100)	94
5.4 Wachstum von Fe auf CoGa(100) bei 550 K	95
5.4.1 Wachstumsprozess von Fe auf CoGa(100) bei 550 K	96
5.4.2 Struktur und Morphologie der Eisenfilme	97
5.4.3 Chemische Zusammensetzung der Eisenfilme	100
5.4.4 Ga-Überstruktur oder Fe-Rekonstruktion?	103
5.4.5 Oberflächendiffusion in den Fe-Schichten	105
5.4.6 Magnetische Eigenschaften	109
5.4.7. Diskussion und Zusammenfassung	112

6 Wachstum von Ga auf CoGa(100)	115
6.1 Wachstum von Ga auf der CoGa(100)-Fläche bei 160 K.....	116
6.1.1 Wachstumsverhalten	116
6.1.2 Struktur und Morphologie des Schichtsystems Ga/ CoGa(100)	120
6.2 Anlassen des Schichtsystems Ga/ CoGa(100)	129
6.2.1 Thermische Stabilität	129
6.2.2 Phasenübergänge	131
6.3 Diskussion und Zusammenfassung	134
7 Wachstum und Charakterisierung des Schichtsystems Fe/β-Ga₂O₃/CoGa(100)	137
7.1 Wachstum von β -Ga ₂ O ₃ auf CoGa(100) bei 800 K	138
7.2 Fe/ β -Ga ₂ O ₃ / CoGa(100)-Multischichten.....	141
7.2.1 Fe-Wachstum auf β -Ga ₂ O ₃ / CoGa(100) bei 300 K	141
7.2.2 Thermische Stabilität des Schichtsystems Fe/ β -Ga ₂ O ₃ /CoGa(100)	147
7.2.3 Fe-Wachstum auf β -Ga ₂ O ₃ / CoGa(100) bei 600 K	149
7.3 Diskussion und Zusammenfassung	152
Zusammenfassung	155
Literaturverzeichnis	159
Danksagung	

Einleitung

Das epitaktische Wachstum dünner Schichten auf kristallinen Substraten ermöglicht die Herstellung neuer Materialien, die in der Natur nicht oder nur unter extremen Druck- und Temperaturbedingungen vorkommen. Dünne Schichten zeigen dabei weitgehend veränderte Eigenschaften gegenüber Volumenmaterialien. Sie finden eine Vielzahl technologischer Anwendungen, bei denen die strukturellen und magnetischen Eigenschaften eine entscheidende Rolle spielen. Grundlegendes Verständnis von Struktur, Wachstum und Stabilität ist daher sowohl in der Forschung als auch in der industriellen Anwendung von zentraler Bedeutung. Ausschlaggebend für das Wachstum und die Eigenschaften eines dünnen Films ist die Substratoberfläche. Sie kann dem dünnen Film eine von der Volumenstruktur des Filmmaterials abweichende Struktur aufzwingen (Pseudomorphie), was nicht selten zu stark veränderten Eigenschaften des Filmmaterials führt. Weitere Parameter, die einen entscheidenden Einfluss auf die strukturellen und magnetischen Eigenschaften von dünnen Schichten haben sind die Aufdampfrate, die Schichtdicke des Films und die Temperatur des Substrates. Daher wird neben der Struktur auch das Wachstumsverhalten solcher Schichten untersucht. Ziel des epitaktischen Wachstums ist es glatte und wohlgeordnete Schichten herzustellen. Die Qualität dieser Schichten hängt sehr stark von der Reinheit des Substrates, sowohl im Volumen als auch an der Oberfläche ab. Daher ist ein unter Ultrahochvakuum (UHV)-Bedingungen kontrolliertes Wachstum erforderlich.

Metalloxide spielen insbesondere in der heterogenen Katalyse eine wichtige Rolle, als Vollkatalysator und vor allem als Trägermaterial für katalytisch aktive Metalle. Sie werden ferner als passivierende Schichten sowie zur Herstellung von Halbleiterbauteilen verwendet. Dünne Oxidschichten werden auch als Tunnelbarrieren zwischen ferromagnetischen Metallschichten in magnetischen Tunnelkontakten (TMR- Tunneling Magnetoresistance) [1, 2] eingesetzt, die eine potentielle Anwendung in so genannten

MRAM (Magnetic Random Access Memory)- Bausteinen finden [3, 4]. Ein TMR-System besteht aus zwei ferromagnetischen Schichten, die durch eine Isolatorschicht, die als Tunnelbarriere wirkt, getrennt sind. Der Tunnelwiderstand hängt dabei von der relativen Magnetisierung der ferromagnetischen Schichten sowie von der Dicke und der elektrischen Bandlücke der Tunnelbarriere ab [5]. Als Tunnelbarriere werden meistens dünne Al_2O_3 -Schichten verwendet. Als Alternative zu Al_2O_3 bietet sich Ga_2O_3 an, dessen kristallinen Phasen isomorph zu den entsprechenden Phasen des Al_2O_3 sind. Einer der Vorteile des Ga_2O_3 ist, dass sich wohlgeordnete Schichten bei geringeren Temperaturen herstellen lassen als kristalline Al_2O_3 -Schichten. In den letzten Jahren konnten amorphe sowie kristalline, dünne Oxidschichten (1 – 2 nm) auf intermetallischen Legierungsoberflächen, wie NiAl oder CoGa gewachsen werden [6-8].

Die vorliegende Arbeit beschäftigt sich mit dem Wachstum, der Struktur, der Oberflächenmorphologie und der thermischen Stabilität von dünnen Metall- (Fe, Ga) und Oxidschichten (Ga_2O_3) sowie mit der Präparation von Multischichtsystemen, wie Fe/ Ga_2O_3 / $\text{Fe}_3\text{Ga}_{2-x}\text{As}_x$ auf GaAs(100) und Fe/ β - Ga_2O_3 auf CoGa(100). Für das erstgenannte Schichtsystem wurde die Oxidschicht durch das Verdampfen einer dünnen Ga-Schicht und ihre anschließende Oxidation mit Sauerstoff bei 300 K gewachsen. Eine geordnete Ga_2O_3 -Schicht konnte durch Anlassen auf 820 K präpariert werden. Dünne, einkristalline β - Ga_2O_3 -Schichten konnten hingegen durch die direkte Oxidation der CoGa(100)-Oberfläche bei 800 K hergestellt werden.

Das Wachstum der Schichten fand unter UHV-Bedingungen in zwei verschiedenen Apparaturen statt. Für die Charakterisierung der jeweils erzeugten Schicht wurden folgende oberflächenempfindlichen Methoden verwendet: Streuung thermischer Heliumatome (TEAS), Augerelektronenspektroskopie (AES) und Beugung niederenergetischer Elektronen (LEED). TEAS- und LEED-Experimente liefern Informationen über die strukturellen und morphologischen Eigenschaften, während AES zur Bestimmung der chemischen Zusammensetzung der oberflächennahen Schichten dienen. TEAS ermöglicht auch Untersuchungen des Wachstumsverhaltens in Echtzeit. Für diese Arbeit wurden ergänzende Messungen an zwei weiteren UHV-Apparaturen (von C. Elsaesser bzw. T. Balster) durchgeführt. Die eine Apparatur diente zur morphologischen Charakterisierung der Oberfläche von β - Ga_2O_3 /CoGa(100) und von Fe/ β - Ga_2O_3 /CoGa(100) mittels der Rastertunnelmikroskopie (STM), während in der zweiten die magnetischen

Eigenschaften der auf CoGa(100) gewachsenen Eisenschichten mittels magneto-optischem Kerr-Effekt (MOKE) untersucht wurden.

Die vorliegende Arbeit gliedert sich in sieben Kapitel: In Kapitel 1 wird auf grundlegende Aspekte des Filmwachstums sowohl aus thermodynamischer als auch aus kinetischer Perspektive eingegangen. In Kapitel 2 werden die Grundlagen der Messmethoden beschrieben. Insbesondere wird der Streuung thermischer Heliumatome besondere Achtung geschenkt. Kapitel 3 liefert eine kurze Beschreibung der beiden hier verwendeten Messapparaturen. Ebenfalls werden hier die Substrate GaAs und CoGa beschrieben und die wichtigsten kristallinen Phasen und die strukturellen Eigenschaften der verwendeten Materialien (Fe, Ga und deren Oxide) zusammengefasst. Kapitel 4 befasst sich mit dem Fe-Wachstum und der Präparation des TMR-Schichtsystems Fe/Ga₂O₃/Fe₃Ga_{2-x}As_x auf einem GaAs(100)-Substrat. In Kapitel 5 wird das Wachstum von Fe auf der CoGa(100)-Oberfläche sowohl bei 300 K als auch bei 550 K vorgestellt. In Kapitel 6 wird das Wachstum von Ga auf der CoGa(100)-Oberfläche beschrieben. Die Präparation einer wohlgeordneten β -Ga₂O₃-Schicht auf der CoGa(100)-Oberfläche sowie die Eigenschaften der auf ihr gewachsenen Fe-Schichten werden in Kapitel 7 vorgestellt.

Kapitel 1

Wachstumsprozesse

Dieses Kapitel gibt einen Überblick über grundlegende Phänomene der Keimbildung und des Filmwachstums auf einkristallinen Oberflächen. Dazu wird zunächst auf die *Thermodynamik* der Wachstumsprozesse eingegangen. Die Adsorption von Teilchen an Oberflächen findet allerdings oft weit entfernt vom thermodynamischen Gleichgewicht statt, so dass das Wachstum durch kinetische Effekte stark beeinflusst werden kann und die Struktur des entstehenden Adsorbatfilms in der Regel durch die *Kinetik* bestimmt wird.

1.1 Thermodynamik des Wachstums

Es ist das vorrangige Ziel experimenteller und theoretischer Untersuchungen des Wachstums epitaktischer Schichten, Bedingungen zu finden, unter denen sich atomar glatte Filme über makroskopische Bereiche des Substrates hinweg bilden. Die Perfektion der Schicht ist eng verknüpft mit der Art des Wachstums, dem *Wachstumsmodus*.

Eine auf thermodynamischen Überlegungen basierende Unterteilung der Wachstumsmodi wurde zum ersten Mal von BAUER [9] eingeführt. Der Wachstumsmodus wird dabei, in der Nähe des thermodynamischen Gleichgewichts, durch die spezifischen freien Oberflächenenergien des Substrates γ_S , des Adsorbates γ_F und der Grenzfläche zwischen Film und Substrat γ_G bestimmt. BAUERS Kriterium für eine vollständige Benetzung des Substrats lautet [10]:

$$\Delta\gamma = \gamma_F - \gamma_S + \gamma_G \leq 0 \quad (1.1)$$

Ist diese Gleichung erfüllt, so verläuft das Wachstum zweidimensional und man spricht vom FRANK-VAN DER MERWE (FM) Wachstumsmodus (Abb. 1.1) [11]. Dabei wachsen die Schichten im Idealfall lagenweise, d.h. die Besetzung der $(n+1)$ -ten Lage beginnt erst, nachdem die n -te Lage vollständig aufgefüllt ist. Demnach wird dieser Wachstumsmodus auch als *Lage-für-Lage*-Wachstum bezeichnet. Ist die Gleichung (1.1) nicht erfüllt ($\Delta\gamma > 0$), so bilden sich schon während der Deposition dreidimensionale Inseln und der Film wächst im so genannten VOLMER-WEBER (VW)-Modus auf (Abb. 1.1) [12]. Wächst die Adsorbatschicht anfangs lagenweise auf, so kommt es in heteroepitaktischen Systemen oft vor, dass die freie Energie γ_G der Grenzfläche mit zunehmender Schichtdicke z.B. aufgrund von Oberflächenspannungen ansteigt. In diesem Fall ist die Gleichung (1.1) ab eine gewisse Schichtdicke nicht mehr erfüllt, und weiteres Wachstum führt zur Entstehung von dreidimensionalen Inseln (Abb. 1.1). Dieses Wachstum wird als STRANSKI-KRASTANOV- Modus bezeichnet [13].

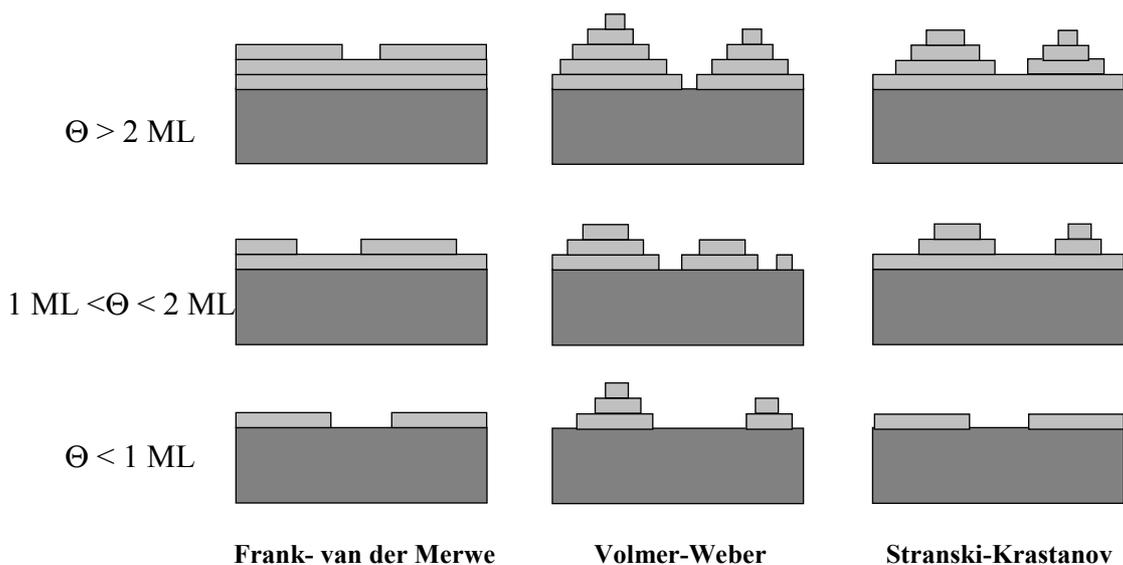


Abbildung 1.1: Schematische Darstellung der drei thermodynamischen Wachstumsmodi eines Films bei verschiedenen Bedeckungen Θ .

Die oben beschriebene Unterteilung gilt jedoch nur im thermodynamischen Gleichgewicht, kinetische Effekte wie z.B. Interdiffusionsprozesse oder chemische Reaktionen zwischen Adsorbat und Substrat werden also vernachlässigt. So kann z.B. durch die Adsorption eines so genannten *surfactants* auf der Filmoberfläche eine Clusterbildung des Films unterdrückt werden. COPEL et al. [14] haben gezeigt, dass das *surfactant*

während des Filmwachstums an die Oberfläche segregiert, wenn es damit die freien Oberflächenenergie des Films reduziert. Damit kann ein lagenweises Wachstum von Filmen erreicht werden, die eigentlich nach dem BAUER-Kriterium im VOLMER-WEBER Modus aufwachsen sollten.

1.2 Kinetik des Wachstums

Wenn die Wachstumsprozesse nicht im thermodynamischen Gleichgewicht ablaufen, wird das Wachstumsverhalten entscheidend von der Kinetik bestimmt. Zu den für das Wachstum dünner Filme grundlegenden atomaren Prozessen gehören die Kondensation der Adsorbatatome aus der Gasphase, die Oberflächendiffusion, die Keimbildung von zwei- oder dreidimensionalen Clustern, die Anlagerung der Adatome an Adsorptionsplätze wie z.B. Stufenkanten oder Inseln, und die Desorption. Sie sind in Abb. 1.2 schematisch dargestellt und werden im Folgenden kurz beschrieben.

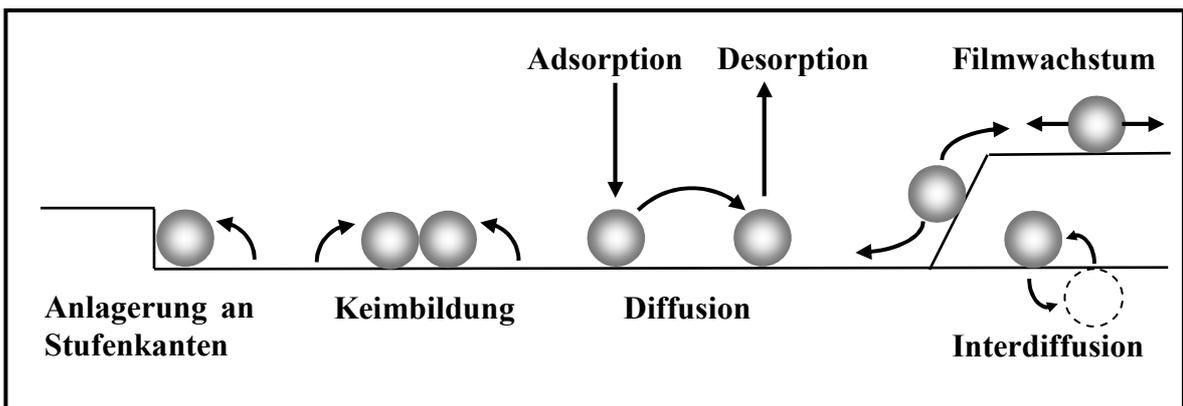


Abbildung 1.2: Schematische Darstellung der wichtigsten atomaren Prozesse der Keimbildung und des Wachstums dünner Filme.

Deposition: Die Aufdampftrate R der aus der Gasphase adsorbierten Teilchen lässt sich aus der kinetischen Gastheorie ableiten:

$$R = \frac{p}{\sqrt{2\pi mk_B T}} \quad (1.2)$$

Dabei ist p der Gasdruck (in Pa) m die Atommasse (in kg), k_B ist die BOLTZMANN-Konstante und T ist die Gastemperatur (in K). In der Anfangsphase der Deposition bilden sich einzelne Adatome, deren Oberflächendichte linear mit der Zeit t steigt: $n = Rt$.

Desorption: Nach dem Auftreffen kann ein Atom nach einer Verweildauer τ wieder desorbieren. Die Verweildauer τ kann durch eine ARRHENIUS-Gleichung beschrieben werden:

$$\tau = \tau_0 \cdot e^{E_{\text{Des}}/k_{\text{B}}T} \quad (1.3)$$

Dabei ist τ_0 ein präexponentieller Faktor in der Größenordnung von 10^{-14} s und E_{Des} ist die Aktivierungsenergie der Desorption. Die Desorptionsrate steigt mit zunehmender Temperatur und kann einen Wert erreichen, der gleich der Adsorptionsrate ist. Unter MBE (Molecular Beam Epitaxy) Wachstumsbedingungen ist sie bei Raumtemperatur jedoch klein gegenüber der Aufdampftrate [15] und kann meist vernachlässigt werden.

Oberflächendiffusion: Nach dem Auftreffen der Teilchen, wird ihre *transiente Energie*, zu der die Adsorptionsenergie und die kinetische Energie beitragen, an das Substrat abgeführt. Dies geschieht im Allgemeinen innerhalb weniger Sprünge an der Oberfläche. Nach vollständiger Abgabe der transienten Energie sind die Teilchen jedoch nicht streng lokalisiert, sondern bewegen sich zwischen benachbarten Adsorptionsplätzen, wobei sie die Potentialbarrieren des periodischen Oberflächenpotentials überwinden. Dabei wird die Energie durch die thermischen Vibrationen des Substrates geliefert. Man spricht dann von *intrinsischer Diffusion*. Die entsprechende Diffusionskonstante D kann ebenfalls mittels einer ARRHENIUS-Gleichung beschrieben werden:

$$D = D_0 \cdot e^{-E_{\text{Diff}}/k_{\text{B}}T} \quad (1.4)$$

wobei E_{Diff} die Aktivierungsenergie der Diffusion und D_0 ein präexponentieller Faktor ist.

Keimbildung: Während der Oberflächendiffusion kann es zu einem Zusammentreffen einzelner Adatome kommen, was zur Bildung von Clustern führen kann. Dadurch wird die freie Oberflächenenthalpie verändert. Bei einer bestimmten Clustergröße erreicht die Veränderung der Enthalpie einen Höchstwert. Ein Cluster dieser Größe wird *kritischer Keim* genannt. Bei Clustern, die kleiner sind als der kritische Keim, ist die Wahrscheinlichkeit einer weiteren Anlagerung von Adatomen kleiner als für die Ablösung von Atomen. Dies führt im statistischen Mittel zu einem Zerfall dieser Cluster. Sind die Cluster größer als der kritische Keim, so sind sie stabil, und es kommt zu einer Zunah-

me der Clustergröße durch ständige Anlagerung neuer Atome. In den meisten Fällen hängt die Größe des kritischen Keims hauptsächlich von der Oberflächentemperatur und von der Aufdampfrate ab.

Anlagerung an Stufenkanten: Auf einer flachen Terrasse können sich die Adatome so lange von einem Adsorptionsplatz zum anderen bewegen bis sie z.B. auf eine aufsteigende Stufenkante stoßen. Aufgrund der höheren Koordination sind die Adatome an einer aufsteigenden Stufenkante stärker gebunden als auf einem Terrassen-Adsorptionsplatz. Bei ausreichend hohen Temperaturen können die Adatome auch entlang der Stufenkante diffundieren oder sich von der Stufenkante lösen und auf die Terrasse zurückkehren.

Interdiffusion: Trifft ein Adatom auf eine abfallende Stufenkante, so versucht es, auf die tiefer liegende Terrasse zu gelangen, um einen energetisch günstigeren Adsorptionsplatz einzunehmen. Dazu muss jedoch meistens eine zusätzliche Energiebarriere ΔE_S überwunden werden, die auch als EHRlich-SCHWOEBEL- Barriere bekannt ist [15]. Ihre Ursache wird in der Verringerung der Koordinationszahl gegenüber der Stufenunterkante gesehen. Es besteht auch die Möglichkeit, dass die Diffusion in umgekehrter Richtung stattfindet, d.h. aus den tieferen in die höher liegenden Lagen. In beiden Fällen handelt es sich um *Interdiffusionsprozesse*. Ein Spezialfall der Interdiffusion ist die *Segregation* von Substratomen an die Filmoberfläche.

Die Filmmorphologie entsteht demnach als Folge der Konkurrenz zwischen diesen Prozessen und wird von den experimentellen Bedingungen, wie z.B. der Oberflächentemperatur, der Aufdampfrate und den Substrateigenschaften (Korrugation und Symmetrie des Oberflächenpotentials, Gitterkonstante, Oberflächenenergie, etc.) stark beeinflusst. Ähnlich wie bei den thermodynamischen Überlegungen, kann auch bei der Betrachtung der kinetisch bestimmten Wachstumsprozesse zwischen drei Wachstumsmodi unterschieden werden:

2D-Wachstum: Beim idealen *Lagenwachstum* ist der Massentransport in der obersten Schicht so groß, dass stets diese Lage gefüllt wird, bevor Nukleation in der folgenden Lage eintritt. Für gestufte Oberflächen kann ein lagenweises Wachstum auch durch *Stufenwanderung* erreicht werden [16]. Dabei ist die Beweglichkeit der Atome auf den einzelnen Niveaus so groß, dass sie vor einer möglichen Nukleation stets eine Stufen-

kante erreichen. Im Experiment wird in der Regel ein nicht ideales 2D-Wachstum beobachtet: Bevor eine Schicht vollständig aufgefüllt ist, kommt es zur Keimbildung in der nächsten Lage.

3D-Wachstum: Beim idealen 3D-Wachstum gibt es keinen Massentransport zwischen den Schichten. Es wurde gezeigt, dass diese Form des Wachstums zu einer Verteilung der unbedeckten Flächen der unterschiedlichen Kristallebenen gemäß einer POISSON-Verteilung führt [17].

2D+3D-Wachstum: Bedingt durch einen veränderten Einfluss des Substrates auf die Oberfläche (z.B. Veränderung der Oberflächenstruktur oder Oberflächenspannung) kann es bei einer gewissen Schichtdicke zu einem Übergang vom 2D- zum 3D-Wachstumsmodus kommen.

Unter bestimmten Bedingungen, wenn die Adatome mobil sind, die Stufenkantenbarriere jedoch nicht überwinden können, bilden sich auf der Oberfläche breite, pyramidenförmige, geordnete Strukturen. Man spricht von einem *instabilen* Wachstumsmodus [18].

Kapitel 2

Grundlagen der Untersuchungsmethoden

Zur Untersuchung der Struktur kristalliner Festkörper werden insbesondere Streumethoden verwendet, die als Sonden sowohl die elektromagnetische Strahlung als auch Materieteilchen wie Elektronen, Neutronen oder Atome nutzen. Um die atomare Struktur auflösen zu können, muss die Wellenlänge der Sonde in der Größenordnung der zu detektierenden Gitterkonstanten oder darunter liegen, d.h. bei Festkörpern im Bereich von einem Ångstrom.

Die am häufigsten verwendeten Methoden zur Analyse des Wachstumsprozesses und der Struktur von dünnen Schichten sind die lokalen mikroskopischen Methoden: Rastertunnelmikroskopie (Scanning Tunneling Microscopy, STM) [19, 20] und Mikroskopie niederenergetischer Elektronen (Low Energy Electron Microscopy, LEEM) [21, 22] und die Beugungsmethoden: Reflexionsbeugung hochenergetischer Elektronen (Reflection High Energy Electron Diffraction, RHEED) [23, 24], Beugung niederenergetischer Elektronen (Low Energy Electron Diffraction, LEED) [25, 26] und die Streuung thermischer Heliumatome (Thermal Energy He-Atom Scattering, TEAS) [27-30].

In der vorliegenden Arbeit wurden die beiden letztgenannten Methoden eingesetzt, um die Struktur und das Wachstumsverhalten dünner Metall- (Fe, Ga) und Oxidschichten (Ga_2O_3) auf geordneten einkristallinen Substraten zu untersuchen. In diesem Kapitel wird neben LEED und TEAS auch die Augerelektronenspektroskopie (AES), die unter anderem zur Bestimmung der chemischen Zusammensetzung der Oberflächen dient, kurz vorgestellt. Hierbei werden die theoretischen Grundlagen erläutert, die für das Verständnis der durchgeführten Experimente wichtig sind.

2.1 Streuung thermischer Heliumatome

Thermische Heliumatome (10-100 meV) treffen auf die Oberfläche eines Festkörpers und können aufgrund der geringen kinetischen Energie nicht in den Festkörper eindringen, sondern werden am Oberflächenpotential gestreut. Da die Energie der He-Atome im Bereich der Gitterschwingungen und ihre DE BROGLIE-Wellenlänge in der Größenordnung der zu untersuchenden Oberflächenstrukturen ($\lambda \approx 1 \text{ \AA}$) liegen, lassen sich sowohl die elastischen als auch die inelastischen Streuprozesse an Oberflächen untersuchen. Diese sind schematisch in Abbildung 2.1 dargestellt. Zusätzlich kann auch eine *selektive Adsorption* der He-Atome auftreten. Dabei verlieren die einfallenden He-Atome so viel Energie, dass sie an der Oberfläche eingefangen werden.

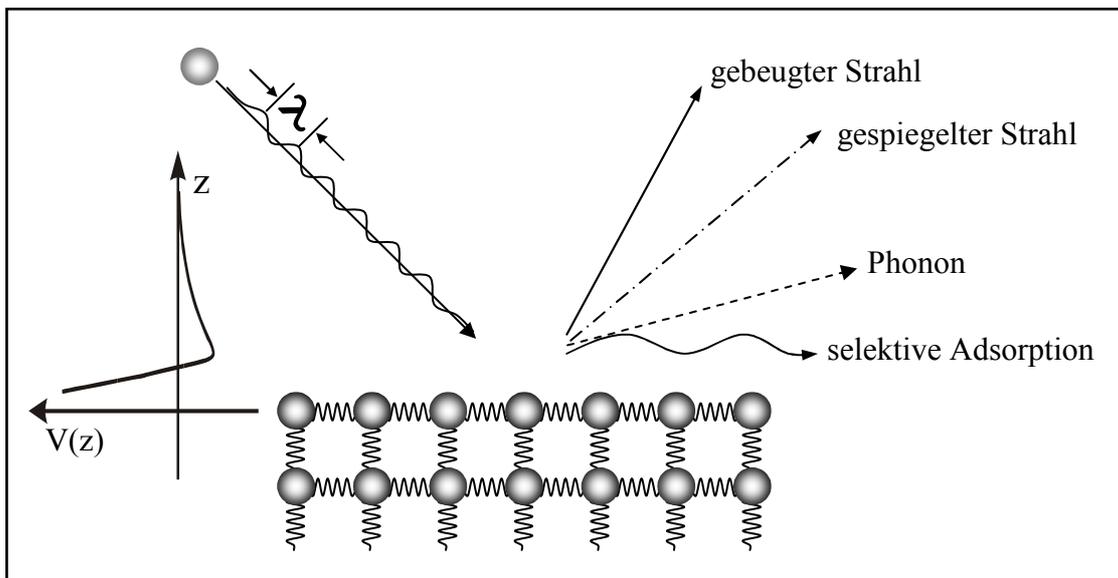


Abbildung 2.1: Schematische Darstellung der unterschiedlichen Streuprozesse, die während der Streuung eines He-Atoms stattfinden können.

Aus der elastischen Streuung lassen sich strukturelle Eigenschaften der untersuchten kristallinen Oberflächen bestimmen. Treffen He-Atome auf eine atomar „glatte“ Oberfläche, so werden sie am periodischen Kristallgitter *kohärent* gestreut und erzeugen ein Interferenzbild. In der Nähe von Oberflächendefekten (Adatome, Stufenkanten) ist das Gitterpotential hingegen verzerrt und die einfallenden Atome werden *diffus* gestreut. Diese tragen nicht zur Intensität eines Beugungsreflexes des Interferenzbildes bei. Lediglich der Untergrund des gesamten Beugungsspektrums wird durch die diffuse

Streuung erhöht. Aus den Beugungsspektren lassen sich nicht nur die Größe und die Richtung der Einheitszelle, sondern auch die Korrugation der Oberfläche bestimmen. Das letztere ergibt sich aus der Intensität der Beugungsreflexe. Insgesamt erhält man – analog zur Methode der Beugung niederenergetischen Elektronen (Kap. 2.3) – ein Bild der geometrischen Anordnung im reziproken Raum [31-33]. Da die He-Atome am Oberflächenpotential gestreut werden, ist die Methode relativ unempfindlich gegenüber reinen, wohlgeordneten, dichtgepackten Metalloberflächen, die bekanntlich eine sehr schwache Korrugation aufweisen. Hingegen ist die Methode sehr empfindlich gegenüber Oberflächendefekten, wie Stufenkanten oder Adatome und ist insbesondere zu Untersuchungen von Wachstumsprozessen, Morphologie und Struktur von gestuften Oberflächen geeignet.

Thermische Helium-Atomstrahlen haben neben der geringen kinetischen Energie auch eine geringe Energiebreite ($\Delta E \sim 0.3$ meV bei einer Primärenergie $E = 20$ meV) und deshalb geben Untersuchungen der inelastischen Streuung Aufschluss über die Dynamik der Oberfläche [34]. Anhand so genannter Flugzeitmessungen der gestreuten Heliumatome lassen sich die Dispersionskurven der Oberflächenphononen mit hoher Auflösung (< 0.5 meV) bestimmen [35, 36]. Wegen der niedrigen He-Strahlenergien ist es des weiteren möglich, auch schwach gebundene Adsorbatstrukturen, wie z.B. Physisorbate [37] zu untersuchen, ohne sie zu zerstören. Die Kombination von struktureller und gitterdynamischer Information ergibt eine komplementäre physikalische Charakterisierung der oberflächennahen Schichten [38-40].

2.1.1 Wechselwirkung mit Oberflächen

Die Wechselwirkung von Heliumatomen thermischer Energien mit Oberflächen wird üblicherweise mit Hilfe eines Potentials beschrieben, das aus einem langreichweitigen attraktiven Anteil und einem kurzreichweitigen repulsiven Anteil besteht (siehe Potentialkurve in Abb. 2.1 links). Nähern sich die He-Atome einer Oberfläche, erfahren sie aufgrund (induzierter) Dipol-Dipol-Wechselwirkung eine attraktive (VAN DER WAALS-) Kraft [41]. Bei weiterem Annähern unterliegen die He-Atome zusätzlich einer repulsiven Kraft (PAULI-Repulsion), da sich die Elektronenhüllen der Heliumatome mit den Valenzelektronen der Oberfläche überlappen. Die thermischen He-Atome dringen nicht in den Festkörper ein sondern werden am Oberflächenpotential gestreut. Der klas-

sische Umkehrpunkt der He-Atome liegt etwa 3-4 Å vor der äußersten Atomlage. Die Streuung thermischer He-Atome liefert demnach ausschließlich Informationen über die erste atomare Lage der Oberfläche und stellt somit eine extrem oberflächenempfindliche und praktisch zerstörungsfreie Untersuchungsmethode dar.

Es gibt verschiedene Ansätze, eine Funktion für das Gesamtpotential zu finden, um die Wechselwirkung analytisch zu beschreiben. Einer davon wird als *Exponential-Corrugated-Wall-Modell* bezeichnet. Hierbei wird das Potential als

$$V(\vec{r}) = V_{\text{rep}}(\vec{r}) + V_{\text{attr}}(z) = V_0 \cdot e^{-\kappa[z-h(x,y)]} - \frac{C_3}{(z+z_0)^3} \quad (2.1)$$

mit den Parametern V_0, C_3, z_0 und dem Ortsvektor $\vec{r} = (x, y, z)$ beschrieben [41-44]. Die Größe $h(x, y)$ bezeichnet die Lage des klassischen Umkehrpunktes des Heliumatoms, die so genannte Korrugation, und κ ist ein Maß für die „Steifheit“ des Potentials [45]. Diese geht hier nur in den repulsiven Teil des Potentials ein. Oft ist es ausreichend, das Potential zu vereinfachen, indem man den repulsiven Teil für $z < h(x, y)$ als unendlich, und das Potential sonst als Null annimmt. Dieser Ansatz wird als *Hard-Corrugated-Wall-Modell* [33, 42] bezeichnet. Experimentell kann das Wechselwirkungspotential aufgrund der *selektiven Adsorption* bestimmt werden [46].

2.1.2 Beugung an lateralen Strukturen

Da jedes Teilchen auch Welleneigenschaften besitzt, kann den thermischen He-Atomen eine Wellenlänge λ zugewiesen werden. Diese ist mit der kinetischen Energie E_{kin} durch die DE BROGLIE-Beziehung verknüpft:

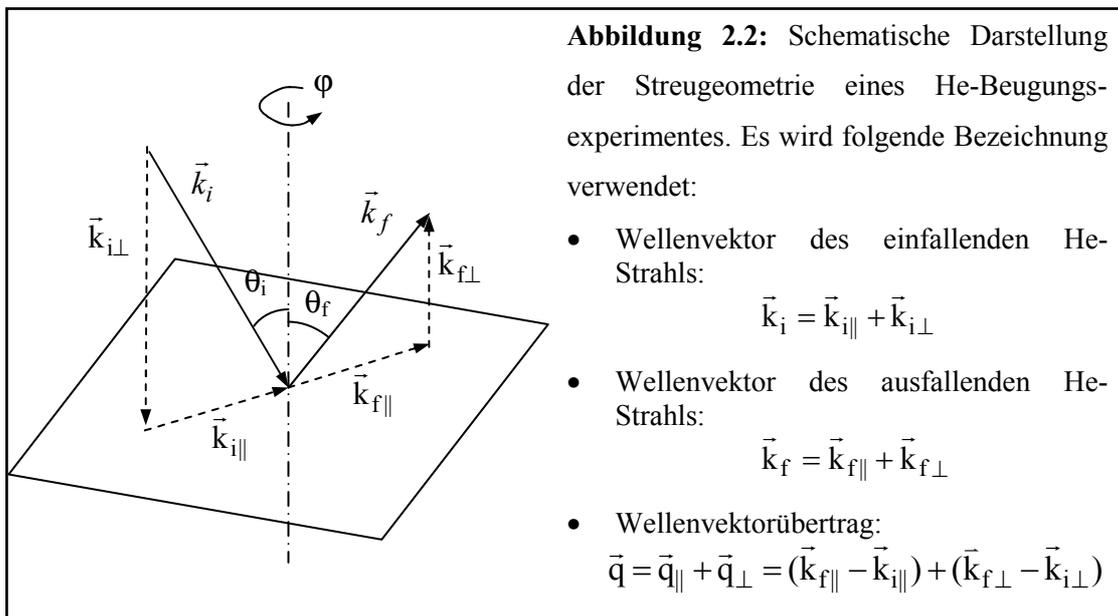
$$\lambda = \frac{h}{\sqrt{2m_{\text{He}}E_{\text{kin}}}} \approx \frac{4.54}{\sqrt{E_{\text{kin}}}} \quad (2.2)$$

wobei m_{He} die Masse der Heliumatome bezeichnet, h die Planck-Konstante ist und λ in Å und E_{kin} in meV ausgedrückt sind. Die kinetische Energie wird durch die Enthalpie H_0 der He-Atome, d.h. von deren Temperatur bestimmt (siehe Gleichung 3.1). Bei der hier verwendeten Messapparatur kann durch Variation der Temperatur der Düsenstrahlquelle (siehe Kapitel 3.1) die Energie der Heliumatome zwischen 13 und 97 meV variiert werden. Die Wellenlänge liegt somit zwischen 0.5 und 1.3 Å. Die He-Atome

dieses Energiebereichs sind demnach als Sondeteilchen für Beugungsexperimente an Oberflächen sehr gut geeignet und ebenfalls können damit sowohl elastische als auch inelastische Streuprozesse untersucht werden.

Elastische Streuung:

Das in Gleichung (2.1) beschriebene Potential zwischen He-Atom und Oberfläche ist lokal von der Elektronendichteverteilung und somit indirekt von der atomaren Struktur der Oberfläche abhängig. Das Helium-Oberflächen-Wechselwirkungspotential und somit die Fläche der klassischen Umkehrpunkte der He-Atome ist also durch die atomare Struktur moduliert. Durch die periodische Anordnung der Oberflächenatome bildet das Potential für die Heliumatome ein natürliches Beugungsgitter. Um die Oberflächenstruktur eines Festkörpers zu analysieren, ist die Anwendung der geometrischen Streutheorie oft ausreichend (siehe auch Abschnitt 2.3). Abbildung 2.2 zeigt schematisch die Streugeometrie eines Heliumbeugungsexperimentes, wobei auch die verwendeten Bezeichnungen erläutert werden.



Das aus der elastischen Beugung der He-Atome resultierende Interferenzbild zeigt Beugungsmaxima, deren Positionen durch die LAUE-Bedingung in zwei Dimensionen festgelegt sind:

$$\vec{q}_{||} = \vec{k}_{f||} - \vec{k}_{i||} = \vec{G} \quad (2.3)$$

wobei \vec{q}_{\parallel} den Wellenvektorübertrag parallel zur Oberfläche bezeichnet. Der reziproke Oberflächengittervektor \vec{G} steht zum Gittervektor \vec{R} im Realraum in folgender Beziehung:

$$\begin{aligned}\vec{G} &= m_1 \vec{a}_1^* + m_2 \vec{a}_2^* \\ \vec{R} &= n_1 \vec{a}_1 + n_2 \vec{a}_2\end{aligned}\quad \text{mit } \vec{a}_i \cdot \vec{a}_j^* = 2\pi\delta_{ij} \quad (2.4)$$

mit \vec{a}_1, \vec{a}_2 die Basisvektoren im Realraum, \vec{a}_1^*, \vec{a}_2^* die Basisvektoren im reziproken Raum und δ_{ij} das Kroneckersymbol. Die Basisvektoren \vec{a}_1, \vec{a}_2 erhält man aus den reziproken Basisvektoren \vec{a}_1^*, \vec{a}_2^* durch folgende Beziehungen [47]:

$$\vec{a}_1 = 2\pi \frac{\vec{a}_2^* \times \vec{n}}{|\vec{a}_1^* \times \vec{a}_2^*|}; \quad \vec{a}_2 = -2\pi \frac{\vec{a}_1^* \times \vec{n}}{|\vec{a}_1^* \times \vec{a}_2^*|}; \quad |\vec{a}_i| = \frac{2\pi}{|\vec{a}_i^*| \cdot \sin \langle \vec{a}_1^*, \vec{a}_2^* \rangle} \quad (2.5)$$

Dabei ist \vec{n} der Normalvektor der Oberfläche und $i \in (1, 2)$. Zusätzlich zu Gleichung (2.3) gilt für den elastischen Streuprozess auch der Energieerhaltungssatz $E_i = E_f = E$. Dieser lässt sich bei elastischer Streuung auch als:

$$|\vec{k}_i| = |\vec{k}_f| = |\vec{k}|, \quad \text{mit } |\vec{k}| = \frac{2\pi}{\lambda} \quad (2.6)$$

schreiben. Aus den Gleichungen (2.3) und (2.6) ergibt sich der Betrag des parallelen Wellenvektorübertrags zu:

$$|\vec{q}_{\parallel}| = |\vec{k}| \cdot (\sin \theta_f - \sin \theta_i) \quad (2.7a)$$

Da der Gesamtwinkel $\chi = \theta_i + \theta_f$ aus experimentellen Gründen 90° beträgt (siehe Kap. 3.1.1), so folgt:

$$|\vec{q}_{\parallel}| = \sqrt{2} \cdot |\vec{k}| \cdot \sin(\theta_f - 45^\circ) \quad (2.7b)$$

Variiert man den Einfallswinkel θ_i , so lässt sich die Intensität der gestreuten Heliumatome anhand der Gleichung (2.7b) in Abhängigkeit von q_{\parallel} als *Beugungsspektrum* aufnehmen. Die q_{\parallel} -Werte der Intensitätsmaxima im Beugungsbild entsprechen nach Gleichung (2.3) jeweils einem reziproken Gittervektor der Oberfläche. Aus einer genügenden Anzahl von Beugungsreflexe lässt sich demnach das reziproke Gitter bestimmen und damit über die Gleichung (2.5) das reale Gitter der Oberfläche konstruieren.

Zur genauen Beschreibung des Beugungsbildes müssen die Parameter des Wechselwirkungspotentials (Gleichung 2.1) bekannt sein. Da jedoch diese Parameter im Allgemeinen schwer zu ermitteln sind, wurden verschiedene vereinfachende Modelle zur Beschreibung der Wechselwirkung aufgestellt. Ein häufig verwendetes ist die *Eikonalnäherung* [33], die von einem Hard-Wall-Potential ausgeht. Dieses Modell vernachlässigt die Mehrfachstreuung und liefert zufrieden stellende Ergebnisse nur im Fall schwach korrigierter Oberflächen [31]. Für die gestreute Intensität $I(\vec{q})$ ergibt sich:

$$I(\vec{q}) = \left| \frac{1}{S} \int_S e^{-i[\vec{q}_{\parallel} \cdot \vec{R} + \vec{q}_{\perp} \cdot \mathbf{h}(\vec{R})]} d\vec{R} \right|^2 \quad (2.8)$$

Die Integration erstreckt sich hierbei über die gesamte Fläche S der Einheitszelle.

Inelastische Streuung:

Aufgrund der Wechselwirkung mit Oberflächenphononen können außer den elastischen Streuprozessen auch inelastische Streuprozesse auftreten. Für diese gelten folgende Erhaltungssätze:

$$\vec{q}_{\text{Ph}} = \vec{k}_{f\parallel} - \vec{k}_{i\parallel} = \vec{Q}_P - \vec{G} \quad (2.9)$$

und

$$\Delta E = E_f - E_i = \pm \hbar \omega \quad (2.10)$$

Dabei entspricht \pm der Vernichtung bzw. Erzeugung von Phononen mit dem Impuls Q_P . Mit den Bezeichnungen aus Abbildung 2.2 ergibt sich hieraus die Beziehung:

$$\Delta E = E_i \cdot \left[\left(\frac{\sin \theta_i + Q_P / k_i}{\sin \theta_f} \right)^2 - 1 \right] \quad (2.11)$$

wobei $\Delta E = E_f - E_i$ der Energieübertrag ist.

Da alle quantitativen Auswertungen in dieser Arbeit auf der elastischen Streuung von He-Atomen beruhen, wird auf die inelastische Streuung hier nicht weiter eingegangen. Für eine detaillierte Diskussion der inelastischen Streuung wird auf die Referenzen [48, 49] und die darin zitierten Arbeiten hingewiesen.

2.1.3 Diffuse Streuung:

Da die Intensität des gespiegelten Heliumstrahls unter anderem stark von der Rauigkeit der Oberfläche, d.h. von der Anzahl der Defekte (z.B. Adatome oder Fehlstellen) und von der Anzahl der Stufenkanten bzw. der Terrassen abhängt, lassen sich anhand der Streuung thermischer Heliumatome auch Informationen über die Oberflächenmorphologie ermitteln. Außerdem lässt sich auch das epitaktische Wachstum eines Adsorbates auf einem Substrat *in-situ* beobachten, indem die gespiegelte Heliumintensität als Funktion der Bedeckung verfolgt wird.

Diffuse Streuung an Punktdefekten

In der Nähe eines Punktdefekts (Adatom oder Fehlstelle) kommt es, wie schon erwähnt, zu einer lokalen Verzerrung des periodischen Wechselwirkungspotentials. An solchen Defekten werden die Heliumatome diffus gestreut. Eine charakteristische Größe der diffusen Streuung stellt der *diffuse Streuquerschnitt* Σ dar. Dieser liegt etwa eine Größenordnung über der geometrischen Ausdehnung des Defektes [28] und erklärt somit die außergewöhnliche Empfindlichkeit der gespiegelten Heliumintensität auf Oberflächendefekte. Bei einer Defektkonzentration Θ auf einer Oberfläche der Atomdichte n_S gilt für die auf die Anfangswert normierte Intensität $I(\Theta)/I_0$ die Beziehung [28]:

$$I(\Theta)/I_0 = 1 - n_S \Theta \Sigma \quad (2.12)$$

Dies gilt jedoch nur im Bereich isolierter Defekte ($\Theta \rightarrow 0$). Kommt es zur Überlappung von Defekten, so bezeichnet Σ den *effektiven diffusen Streuquerschnitt pro Atom*. Im Grenzfall isolierter Teilchen lässt sich Σ aus der Intensitätsabnahme des gespiegelten Reflexes

$$\Sigma = -\frac{1}{n_S} \frac{d}{d\Theta} \left(\frac{I(\Theta)}{I_0} \right) \Bigg|_{\Theta=0} \quad (2.13)$$

bestimmen [28]. Wird während der Anfangsphase eines Wachstumsprozesses eine zufällige Verteilung der Adatome auf Gitterplätze der Oberfläche angenommen, so verläuft die gespiegelte Heliumintensität für große diffuse Streuquerschnitte und nicht wechselwirkende Adatome gemäß der so genannten Gittergas-Gleichung [28]:

$$I(\Theta)/I_0 = (1 - \Theta)^{-n_S \Sigma} \quad (2.14)$$

Die obige Gleichung gilt auch für wechselwirkende Adatome, wenn diese an der Auftreffstelle verharren. Dies kann bei sehr niedrigen Temperaturen der Fall sein, wenn die Adatome ihre ganze kinetische Energie sofort nach dem Auftreffen verlieren.

Diffuse Streuung an Stufenkanten

Für die diffuse Streuung an Stufenkanten wird analog ein diffus streuendes Band der Breite D definiert. Dies lässt sich aus der normierten gespiegelten Heliumintensität I/I_0 ermitteln, wenn man die zwischen benachbarten Terrassen stattfindenden Interferenzeffekte (siehe Kap. 2.1.4) berücksichtigt. Im Falle einer konstruktiven Interferenz gilt folgende Beziehung [50]:

$$I/I_0 = (1 - DS)^2 \quad (2.15)$$

Dabei kann die genaue Stufenkantendichte S aus der Analyse des unter Anti-Phase-Interferenzbedingung aufgenommenen He-Beugungsprofils bestimmt werden [51]. Sie wird in *Stufenlänge pro Einheitsfläche* angegeben.

2.1.4 Beugung an gestuften Oberflächen

Wenn zwei kohärente Streuer nicht auf dem gleichen Höhenniveau liegen, sondern durch eine Höhe h getrennt sind, so kommt es zu einem zusätzlichen Phasenunterschied:

$$\phi = q_{\perp} h = k_i h (\cos \theta_f + \cos \theta_i) \quad (2.16)$$

Für spiegelnde Streuung ($\theta_i = \theta_f = 45^\circ$) vereinfacht sich diese Gleichung zu:

$$\phi = \sqrt{2} k_i h \quad (2.17)$$

Hieraus ergeben sich für die Interferenzerscheinungen zwei Extremfällen:

- *konstruktive Interferenz* für $\phi = 2\pi n$ (In-Phase-Interferenzbedingung) und
- *destruktive Interferenz* für $\phi = 2\pi(n + 1/2)$ (Anti-Phase-Interferenzbedingung)

mit $n = 0, 1, 2, \dots$

Interferenzkurven:

Die Stufenhöhe h lässt sich aus der Gleichung (2.17) bestimmen, indem die gespiegelte Heliumintensität als Funktion des Wellenvektorübertrags senkrecht zur Oberfläche q_{\perp} unter einem konstanten Gesamtstreuwinkel $\chi = \theta_i + \theta_f = 90^\circ$ aufgenommen wird. Diese Abhängigkeit wird als *Interferenzkurve* bezeichnet und zeigt periodisch alternierende Maxima und Minima der gespiegelten Intensität, aus deren Position man auf die Stufenhöhe, die Stufendichte und die Lagenverteilung schließen kann.

Ein Modell zur Erklärung von Interferenzkurven wurde von KRZYZOWSKI [52] und ROMAINCZYK [53] vorgeschlagen und von TÖLKES in einer erweiterten Form erstmals zur Anpassung an experimentell gemessene Beugungsintensitäten benutzt und in [54] im Detail beschrieben. Dabei wird von einer Lagenverteilung auf der Oberfläche ausgegangen, die durch die in den einzelnen Terrassen $j = 0, 1, \dots, N$ vorhandenen Bedeckungen $\{\beta_j\}$ gegeben ist. Die „sichtbaren“ Flächenanteile $\{\alpha_j\}$ berechnen sich aus:

$$\alpha_j = \beta_j - \beta_{j+1} \quad (2.18)$$

Im Rahmen des Hard-Corrugated-Wall-Modells berechnet sich die gespiegelte Heliumintensität einfach als kohärente Überlagerung der an den unterschiedlichen Terrassen gestreuten ebenen Helium-Partialwellen zu [17, 55, 56]:

$$I(q_{\perp}) = I_0 \left| \sum_{j=0}^N \alpha_j e^{ijhq_{\perp}} \right|^2 \quad (2.19)$$

Hierbei wird angenommen, dass jede Partialwelle nur genau einmal gestreut wird und die Intensität in der kinematischen Näherung nur vom Wellenvektorübertrag q_{\perp} abhängt. Um eine gute Anpassung an die experimentellen Daten erreichen zu können, müssen zusätzliche Effekte berücksichtigt werden, wie z.B. der Debye-Waller-Effekt (siehe Kap. 2.1.5) und die von Null verschiedene Energiehalbwertsbreite ΔE des He-Strahls. Die Abhängigkeit der gespiegelten Heliumintensität I vom senkrechten Wellenvektorübertrag q_{\perp} schreibt sich dann als [54]:

$$I(q_{\perp}) = I_{\text{add}} + \int_0^{\infty} I_{\text{DW}}(q') \rho(q', q_{\perp}) dq' \quad (2.20)$$

Dabei wird I_{DW} durch die Gleichungen 2.25 und 2.30, die in Kap.2.1.5 erläutert werden, bestimmt, $\rho(q', q_{\perp})$ beschreibt die Form der q -Verteilung und I_{add} ist eine additive Konstante. Die Funktion $I(q_{\perp})$ kann nun mit Hilfe der Parameter $\{\alpha_j\}$, h , $I(0)$, der Oberflächen-Debyetemperatur $T_{D,eff}$ (in Kap.2.1.5 definiert) und I_{add} an die experimentellen Daten anhand der Methode der kleinsten Quadrate angepasst werden. Daraus lässt sich dann neben der Stufenhöhe auch die Lagenverteilung der gewachsenen Schichten an der Oberfläche berechnen.

Wachstumskurven:

Die Streuung thermischer Heliumatome ermöglicht – ähnlich wie RHEED – die *in-situ* Beobachtung des epitaktischen Wachstums eines Adsorbats auf dem Substrat mittels der gespiegelten Heliumintensität, deren Darstellung als Funktion der Bedeckung Θ im folgenden als *Depositionskurve* oder als *Wachstumskurve* bezeichnet wird. Die Empfindlichkeit der gespiegelten Intensität auf spezifische strukturelle Oberflächeneigenschaften hängt dabei entscheidend von der gewählten Interferenzbedingung ab.

a) Anti-Phase-Interferenzbedingung:

Unter Vernachlässigung der diffusen Streuung ergibt sich für die gespiegelte Intensität in einfacher kinematischer Näherung [54]:

$$I^{anti} = I_0 \left| \sum_{j=0}^N \alpha_j (-1)^j \right|^2 \quad (2.21)$$

Mit Hilfe dieser Gleichung lassen sich zwei Spezialfälle des epitaktischen Wachstums untersuchen:

1) Dreidimensionales oder Volmer-Weber-Wachstum:

Jedes Adsorbatatom verbleibt in der Position, in der es deponiert wurde (kinetisch bedingtes 3D-Wachstum), es findet also kein Massentransport zwischen den Lagen statt. In diesem Fall folgen die „sichtbaren“ Flächenanteile $\{\alpha_j\}$ einer POISSON-Verteilung mit dem Erwartungswert Θ :

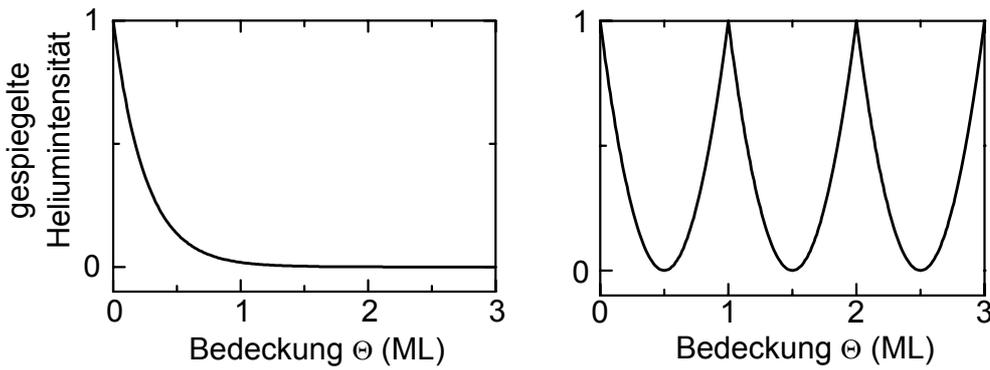


Abbildung 2.3: Theoretische Verläufe der gespiegelten Heliumintensität unter Anti-Phase-Interferenzbedingung für **a)** kinetisch bedingtes 3D-Wachstum und **b)** Lagenwachstum

$$\alpha_j = \frac{\Theta^j}{j!} e^{-\Theta}, \quad j = 0, 1, \dots, N \quad (2.22)$$

wodurch sich die Gleichung (2.21) wie folgt vereinfacht:

$$I^{\text{anti}} = I_0 e^{-4\Theta} \quad (2.23)$$

Dabei ist Θ die Bedeckung des Adsorbates auf der Oberfläche, gemessen in Monolagen. Die gespiegelte Heliumintensität fällt also im Fall des kinetisch bedingten 3D-Wachstums exponentiell, wie in Abbildung 2.3(a) dargestellt, ab.

2) Lage-für-Lage oder Frank- van der Merwe- Wachstum:

Das Wachstum der (n+1)-ten Lage setzt erst ein, wenn das Wachstum der n-ten Lage vollendet ist. Dabei wird eine sich mit der Bedeckung periodisch ändernde Oberflächenmorphologie beobachtet: Jeweils nach Vervollständigung einer kompletten Monolage befindet sich die Oberfläche wieder im Anfangszustand. Für $\Theta \leq 1$ ergibt sich daher aus Gleichung (2.21):

$$\frac{I^{\text{anti}}}{I_0} = (\alpha_0 - \alpha_1)^2 = (1 - 2\Theta)^2 \quad (2.24)$$

Für $\Theta = 1$ ist der Ausgangspunkt des Wachstums wiederhergestellt. Bei höheren Bedeckungen wiederholt sich der Vorgang periodisch und die Intensität oszilliert mit einer Periode von einer Monolage (siehe Abb. 2.3(b)).

b) In-Phase-Interferenzbedingung:

Im Rahmen des Hard-Corrugated-Wall-Modells gilt für alle möglichen Lagenverteilungen $I = I_0$, d.h. die gespiegelte Heliumintensität enthält keine Information über die Lagenverteilung. Berücksichtigt man jedoch die diffuse Streuung an Stufenkanten, so wird die gespiegelte Intensität durch die Gleichung (2.15) bestimmt und ist somit sehr empfindlich auf Größenänderungen der stufenbedingt diffus streuenden Fläche. Auch im Falle der konstruktiven Interferenz lässt sich eine Analyse der verschiedenen Wachstumsmodi durchführen:

1) Dreidimensionales oder Volmer-Weber-Wachstum:

Während des Wachstums setzt Keimung auf Inseln ein. Dabei bleibt die Insel diffus streuend und die gespiegelte Intensität zeigt eine stetige Abnahme.

2) Lage-für-Lage oder Frank- van der Merwe- Wachstum:

Während der Keimbildung entstehen Punktstreuer mit einem großen effektiven diffusen Streuquerschnitt und die Intensität fällt stark ab. Mit wachsender Inselgröße tritt auch kohärente Streuung auf, und die Abnahme der Intensität wird schwächer. Mit Beginn der Koaleszenz der 2D-Inseln nehmen die Gesamtfläche des Inselrandes und damit auch die diffuse Streuung wieder ab, und es kommt zu einem erneuten Anstieg der gestreuten Intensität. Die Intensität zeigt auch in diesem Fall ein Oszillationsverhalten mit der Periode von einer Monolage.

Abschließend soll noch bemerkt werden, dass im Fall eines heteroepitaktischen Wachstums zusätzlich auch die unterschiedlichen Reflexionsvermögen des Substrats und des Adsorbats berücksichtigt werden müssen.

2.1.5 Der Debye-Waller-Effekt

Die bisherigen Überlegungen zur Berechnung von Beugungsintensitäten (siehe Gleichungen 2.8 und 2.19) gingen davon aus, dass die Atome des Oberflächengitters sich nicht bewegen. Für eine Proben temperatur $T > 0$ K finden jedoch thermische Vibrationen statt, die zu einer inelastischen Streuung der einfallenden Heliumatome und dementsprechend zu einer Abschwächung der kohärenten Beugungsintensitäten führen können. Dabei bleibt die Form der Beugungsreflexe unverändert. Dieser Effekt wurde

erstmal von DEBYE und WALLER im Fall der Röntgenstreuung untersucht [57, 58]. Deren Theorie konnte später auch auf Elektronen- [59] und Neutronenstreuung [60] erweitert werden. Unter der Verwendung der Bornschen Näherung wurde folgende Temperaturabhängigkeit für die elastisch gestreute Intensität $I(T)$ hergeleitet; dabei entspricht $I(0)$ der am absoluten Nullpunkt vom Gitter gestreuten Intensität:

$$I(T) = I(0) \cdot e^{-2W(T)} \quad (2.25)$$

wobei $e^{-2W(T)}$ der *Debye-Waller-Faktor* ist und durch

$$2W(T) = \left\langle (\vec{q} \cdot \vec{u})^2 \right\rangle_T \quad (2.26)$$

beschrieben wird. Hier ist \vec{u} die zeitliche Auslenkung eines Oberflächenatoms von dessen Gleichgewichtsposition, \vec{q} ist der Wellenvektorübertrag und die äußere Klammerung bezeichnet die thermische Mittelung. Für die gespiegelte Intensität vereinfacht sich Gleichung (2.26) zu:

$$2W(T) = q_{\perp}^2 \langle u_z^2 \rangle_T \quad (2.27)$$

wobei $\langle u_z^2 \rangle_T$ die mittlere Auslenkung eines Atoms senkrecht zur Oberfläche darstellt. Im Rahmen des Debye-Modells der harmonischen Gitterschwingungen ergibt sich $\langle u_z^2 \rangle_T$ zu

$$\langle u_z^2 \rangle_T = \frac{3\hbar^2}{m_s k_B T_D^2} T \quad (2.28)$$

wobei m_s die Masse der streuenden Atome, k_B die Boltzmannkonstante und T_D die Debyetemperatur des betreffenden Kristalls bezeichnen.

Die Gleichungen (2.25) - (2.28) beruhen auf der Annahme einer schwachen und relativ zur Schwingungsperiode der Phononen kurzzeitigen Wechselwirkung der Teilchen mit dem Kristallgitter. Es wurde jedoch gezeigt, dass die Gleichungen in der Regel eine gute Beschreibung der Streuexperimente mit He-Atomen liefern [61], auch wenn in diesem Fall die Wechselwirkungszeit mit den Oberflächenatomen lang ist (aber noch vergleichbar mit der Vibrationsperiode der Phononen) und das einfallende He-Atom gleichzeitig mit mehreren Oberflächenatomen wechselwirkt. Infolgedessen detektiert das He-Atom eine Auslenkung \vec{u} eines Oberflächenatoms, die auch von der Verschie-

bung der benachbarten Oberflächenatome beeinflusst werden kann (ARMAND-Effekt) [62]. Demnach ist im Fall der Heliumstreuung eine effektive thermische Auslenkung \bar{u}_{eff} anstelle von \bar{u} anzunehmen und Gleichung 2.28 gilt nur noch näherungsweise. Da an der Oberfläche weniger Bindungen vorliegen als im Volumen des Festkörpers, ist zu erwarten, dass die *Oberflächen-Debyetemperatur* $T_{D,\text{eff}}$ sich von der Debyetemperatur T_D des Kristalls unterscheidet. Demnach ist T_D durch $T_{D,\text{eff}}$ zu ersetzen. Wird auch der attraktive Teil des Wechselwirkungspotentials berücksichtigt (siehe Kap.2.1.1), so muss eine zusätzliche Korrektur des Einfallswinkels und der Strahlenergie (BEEBY-Korrektur) durch den effektiven Wellenvektorübertrag $q_{\perp,\text{eff}}$ eingeführt werden [63]. Für spiegelnde Streuung gilt:

$$q_{\perp,\text{eff}} = \sqrt{q_{\perp}^2 + \frac{8m_{\text{He}}}{\hbar^2} D} \quad (2.29)$$

Hierbei bezeichnet D die Tiefe des Helium-Oberflächen-Wechselwirkungspotentials und m_{He} die Masse des Heliumatoms. Gleichung (2.27) lässt sich somit als

$$2W = \frac{3T}{m_S k_B T_{D,\text{eff}}^2} (\hbar^2 q_{\perp}^2 + 8m_{\text{He}} D) \quad (2.30)$$

schreiben. Der Parameter D beträgt für Metalle etwa 5-10 meV [36] und hat keinen Einfluss auf die Lagenverteilung. Die hier vorgestellten Daten sind nicht bezüglich des Debye-Waller-Effektes korrigiert worden.

2.2 Augerelektronenspektroskopie

Die Augerelektronenspektroskopie (AES) ist eine Standardmethode in der Oberflächen- und Grenzflächenphysik. Sie wird sowohl zur qualitativen Überprüfung der Reinheit von Festkörperoberflächen als auch zur quantitativen Bestimmung der chemischen Oberflächenzusammensetzung angewandt. Weitere wichtige Anwendungen sind die Untersuchung des Filmwachstums [64] und die Tiefenprofilanalyse.

Augerprozess:

Primärelektronen mit Energien von einigen keV können Rumpfniveaus in einem Atom ionisieren. Das so entstandene Loch wird mit einem Elektron aus einer höheren Schale aufgefüllt. Die dabei freiwerdende Energie kann entweder als charakteristisches Röntgenphoton emittiert oder auf ein Elektron derselben oder einer anderen Schale übertragen werden. Dieses Elektron verlässt dann das Atom und hinterlässt es in einem doppelt ionisierten Zustand. In Abbildung 2.4 ist schematisch ein $KL_1L_{2,3}$ -Auger-Übergang dargestellt. Die Bezeichnung $KL_1L_{2,3}$ zeigt an, dass ein Loch in der K-Schale durch ein Elektron der L_1 -Schale aufgefüllt wird. Die hierbei freiwerdende Energie wird an ein Elektron der L_2 - bzw. L_3 -Schale übertragen, das emittiert wird. Demzufolge ergibt sich die kinetische Energie des Augerelektrons in einer ersten Näherung zu:

$$E_{KL_1L_{2,3}} = E_K - E_{L_1} - E_{L_{2,3}} \quad (2.31)$$

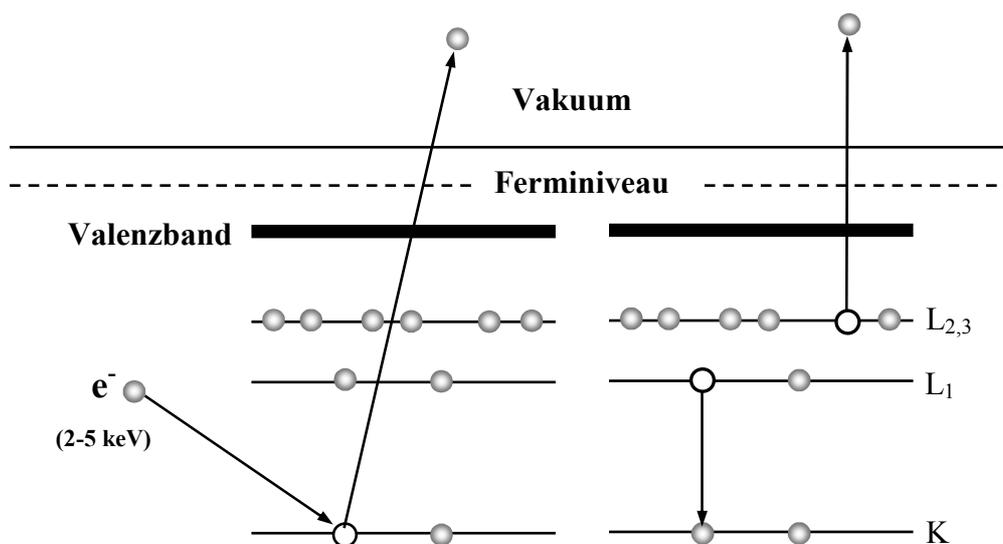


Abbildung 2.4: $KL_1L_{2,3}$ - Augerprozess

Bei genauerer Betrachtung muss ein Korrekturterm auf der rechten Seite hinzugefügt werden, um veränderte Bindungsenergien für das ionisierte Atom im Vergleich zum neutralen Atom zu berücksichtigen. Die Energie des emittierten Augerelektrons ist nach Gleichung (2.31) unabhängig von der Energie des einfallenden Elektrons und damit charakteristisch für das betreffende Element.

Messverfahren:

In der Praxis werden die emittierten Elektronen mittels eines Zylinderspiegelanalysators (Cylindrical Mirror Analyser- CMA) detektiert. Dabei wird die Energieverteilung $N(E)$ der von der Probe emittierten Elektronen gemessen. Wie der in Abbildung 2.5 schematisch dargestellte Versuchsaufbau zeigt, liegt die Elektronenkanone innerhalb des Zylinderspiegelanalysators, so dass der primäre Elektronenstrahl senkrecht auf die Probe geschossen wird. Die zylindrischen Elektroden dienen zur Fokussierung der emittierten Augerelektronen auf den Detektor. Dabei werden nur solche Elektronen detektiert, die unter dem Winkel $\varphi = 42^\circ$ (Fokuswinkel des CMA) in den CMA eintreten und die bei angelegter Spannung U die entsprechende Passenergie besitzen. Durch Messung der Elektronenintensität N bei gleichzeitigem Variieren der Spannung U lässt sich die Energieverteilung $N(E)$ der Augerelektronen bestimmen. Diese enthält elementspezifische Maxima, die durch den Augerprozess verursacht werden, allerdings auf einem sehr hohen Untergrundsignal (Sekundärelektronen). Daher misst man in der Praxis häufig

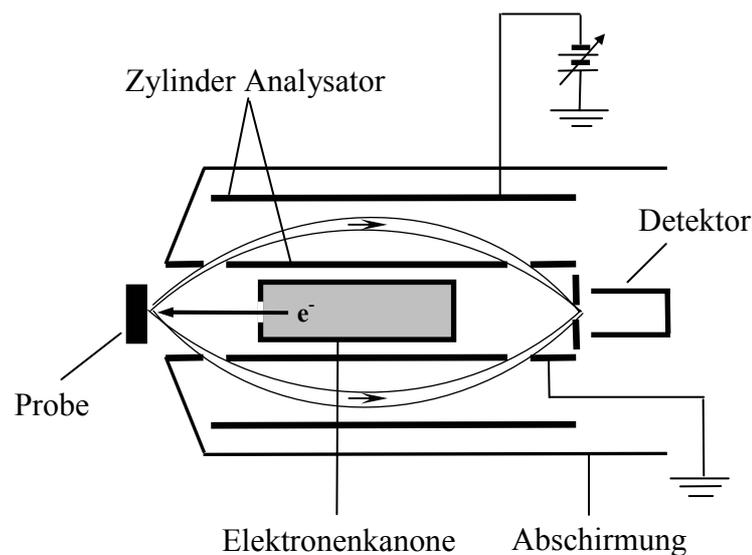


Abbildung 2.5: Schematische Darstellung eines AES- Versuchsaufbaus.

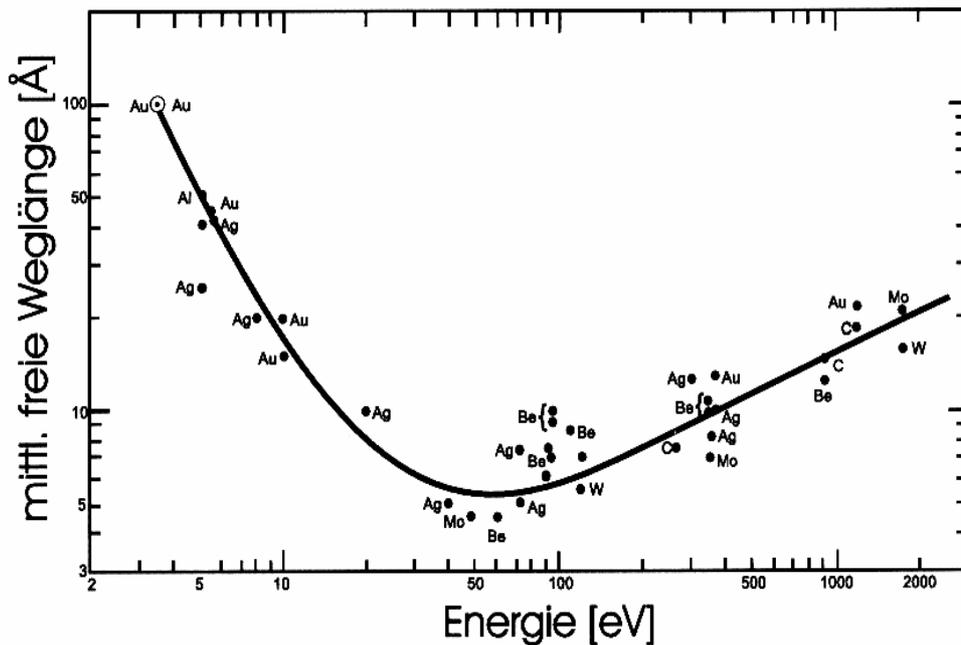


Abbildung 2.6: Mittlere freie Weglänge von Elektronen als Funktion der Energie [67].

die differenzierte Energieverteilung $dN(E)/dE$. Hierzu wird die am äußeren Zylinder des CMA anliegende Gleichspannung mit einer sinusförmigen Wechselspannung moduliert und das Signal des Elektronenvervielfachers über einen Lock-In-Verstärker gemessen. Die Energie eines AES-Übergangs wird dabei als das Minimum der Amplitude im differenzierten Spektrum definiert und als Maß für die Intensität der Auger-Übergänge wird die *peak-to-peak* Amplitude genommen.

Chemische Analyse:

Vergleicht man die differenzierte Energieverteilung $dN(E)/dE$ mit Referenzspektren reiner Elemente [65], so ist eine recht genaue qualitative Bestimmung der Oberflächens Zusammensetzung möglich. Allerdings ist die Empfindlichkeit dieser Spektroskopie bezüglich geringer Verunreinigungen an der Oberfläche meistens nicht besser als 0.1% einer Monolage. Demnach können Oberflächen, die gemäß AES keine Verunreinigungen zu enthalten scheinen, noch Verunreinigungen aufweisen, die mittels Photoemission (UPS, XPS) oder Elektronenenergieverlustspektroskopie (EELS, HREELS) detektiert werden können. Weniger genau ist hingegen die quantitative Auswertung von AES Daten, da die gemessenen Intensitäten sowohl von der Energieauflösung des CMA als auch von der Höhe der angelegten Modulationsspannung abhängen.

Da die Auflösung für verschiedene Probenabstände stark variiert [66], ist für Vergleiche verschiedener Spektren die Einhaltung einer identischen Probenposition erforderlich. Daher wurde bei den in der vorliegenden Arbeit gezeigten Wachstumskurven (Änderung der Intensität in Abhängigkeit von der Aufdampfzeit) auf eine exakt reproduzierte Probenposition geachtet.

Schichtdickenbestimmung:

AES ist aufgrund der geringen Austrittstiefe der Augerelektronen oberflächenempfindlich. Die Abschwächung der Intensität eines AES-Übergangs des Substrats durch den aufgedampften Film ist abhängig von der Schichtdicke d des Films und der mittleren freien Weglänge λ der beobachteten Augerelektronen und lässt sich im Fall eines Lagenwachstums wie folgt beschreiben:

$$\frac{I^S(d)}{I^S(0)} = e^{-\frac{d}{\lambda \cos \varphi}} \quad (2.32)$$

wobei $I^S(0)$ und $I^S(d)$ die Intensität eines AES-Übergangs des Substrats vor- bzw. nach der Deposition eines Films der Schichtdicke d darstellen. Gleichzeitig verhält sich die Intensität des aufgedampften Films wie folgt:

$$\frac{I^F(d)}{I^F(\infty)} = 1 - e^{-\frac{d}{\lambda \cos \varphi}} \quad (2.33)$$

Dabei stellen $I^F(d)$ und $I^F(\infty)$ die Intensität des AES-Übergangs des Films mit der Schichtdicke d bzw. eines unendlich dicken Materials dar. Der Faktor $\cos \varphi$ ergibt sich dadurch, dass nur die Augerelektronen detektiert werden, die unter dem Winkel $\varphi = 42^\circ$ in den CMA eintreten. Die mittlere freie Weglänge der Elektronen λ hängt sowohl von der kinetischen Energie der Augerelektronen (Abb. 2.6) [67] als auch von der kristallographischen Struktur des zu durchdringenden Materials ab und lässt sich in guter Näherung aus den empirischen Formeln von Seah und Dench [68] abschätzen. Für Elemente gilt:

$$\lambda = \frac{538 \cdot a}{E^2} + 0.41 \cdot a^{3/2} \cdot E^{1/2} \quad (2.34)$$

Anorganische Verbindungen (z.B. Oxide) lassen sich hingegen anhand der Gleichung:

$$\lambda = \frac{2170 \cdot a}{E^2} + 0.72 \cdot a^{3/2} \cdot E^{1/2} \quad (2.35)$$

besser beschreiben. Die Energie E der Elektronen wird in eV angegeben. Der Parameter a beschreibt die Struktur des von Elektronen durchlaufenen Materials und wird wie folgt berechnet:

$$a = \left(\frac{\text{Volumen der Einheitszelle}}{\text{Anzahl der Atome der Einheitszelle}} \right)^{1/3} \quad (2.36)$$

Sowohl a als auch λ sind in nm angegeben.

2.3 Beugung niederenergetischer Elektronen

Eine weitere Methode zur Untersuchung von Oberflächenstrukturen ist die Beugung niederenergetischer Elektronen (Low Energy Elektron Diffraction, LEED). Das in der vorliegenden Arbeit verwendete LEED-Experiment wird in Abbildung 2.7 schematisch beschrieben. Dabei wird ein monochromatischer Elektronenstrahl unter senkrechtem Einfall auf die Probe gerichtet. Die von der Oberfläche elastisch gestreuten Elektronen werden anschließend auf einen Fluoreszenzschirm beschleunigt und dort nachgewiesen. Auf dem Schirm bildet sich durch konstruktive und destruktive Interferenz ein für die Struktur der Oberfläche charakteristisches Beugungsmuster (LEED-Bild). Dies stellt eine Abbildung des reziproken Oberflächengitters dar. Gewöhnlich wird das entstandene Beugungsmuster fotografiert.

Elektronen weisen sowohl Wellencharakter als auch korpuskulare Eigenschaften auf. Den Elektronen kann daher eine Wellenlänge λ zugeordnet werden, die sich ähnlich wie im Fall der Heliumatome nach der DE BROGLIE-Gleichung (2.2) berechnen lässt. Dementsprechend ergibt sich die Größe des Wellenvektors \vec{k} der Elektronen aus folgender Beziehung:

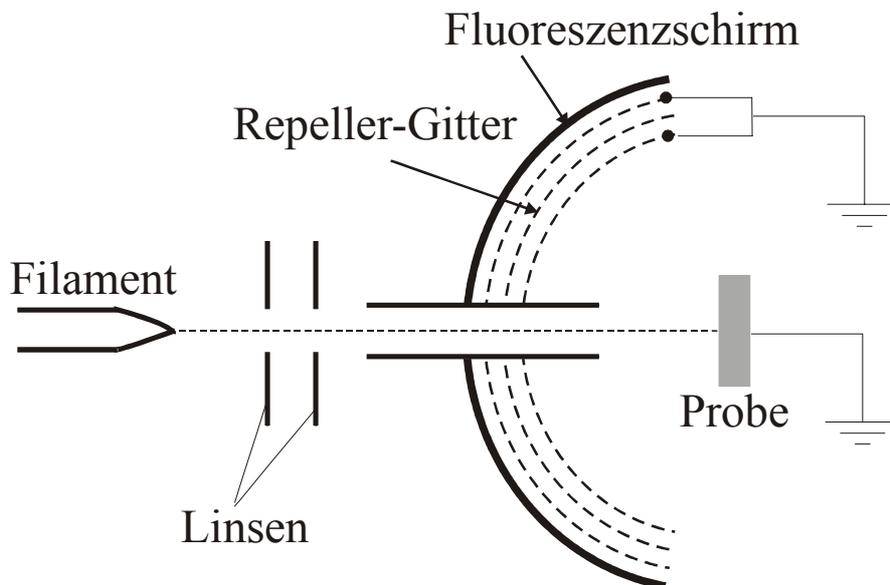


Abbildung 2.7: Schematische Darstellung eines LEED-Experimentes.

$$|\vec{k}| = \frac{2\pi}{\lambda} = \sqrt{\frac{2m_e E}{\hbar^2}} \cong 0.512\sqrt{E(\text{eV})} (\text{\AA}^{-1}) \quad (2.37)$$

wobei m_e die Ruhemasse des Elektrons darstellt. Die Energie E der verwendeten Elektronen beträgt in den LEED-Experimenten 10 bis 500 eV. Dementsprechend nimmt die Wellenlänge λ Werte zwischen 4 und 0.5 Å an und liegt somit in der Größenordnung der Gitterkonstanten in einem Festkörper. Das zweidimensionale Gitter der Oberfläche wirkt daher als Beugungsgitter für die Elektronen.

Die Information, die man mit Hilfe von Beugungsexperimenten erhält, ist einerseits durch ihre Position relativ zum (0,0)-Reflex bestimmt und andererseits durch die Intensität der Beugungsmaxima. Da im Weiteren nur die Periodizität der Oberfläche betrachtet wird, ist eine Auswertung der LEED-Bilder mit Hilfe der einfachen *geometrischen LEED-Theorie* ausreichend. Hierbei können zur Bestimmung der Richtungen, in welchen die Intensitätsmaxima auftreten, die Laue-Gleichungen für die Streuung an einem zweidimensionalen Gitter angewandt werden:

$$\vec{a}_i(\vec{k}_f - \vec{k}_i) = \vec{a}_i \vec{q} = 2\pi n_i \quad i = 1, 2 \quad (2.38)$$

Hierin bezeichnen \vec{a}_i die primitiven Translationsvektoren des Oberflächengitters, \vec{k}_i und \vec{k}_f die Wellenvektoren der einfallenden und der gebeugten Elektronen, \vec{q} den Streuvektor und n_i ganze Zahlen. Wie bereits im Falle der Heliumbeugung gezeigt, ergibt sich das reziproke Gitter eines Kristalls aus dem Gitter im Ortsraum, indem zu jedem realen Gittervektor \vec{a}_1, \vec{a}_2 der entsprechende reziproke Gittervektor \vec{a}_1^*, \vec{a}_2^* gemäß der Gleichung 2.5 gebildet wird. Die Einheitszelle des reziproken Oberflächengitters ist durch die reziproken Gittervektoren \vec{a}_1^* und \vec{a}_2^* bestimmt. Ähnlich wie im Fall der He-Streuung tritt ein Beugungsreflex dann auf, wenn die zur Oberfläche parallele Komponente des Streuvektors des Elektrons einem reziproken Oberflächengittervektor entspricht. Das von den gebeugten Elektronen erzeugte Interferenzmuster entspricht folglich der Transformation der Translationssymmetrie der realen Oberflächenstruktur in den reziproken Raum. Die Rücktransformation ergibt die Periodizität im Realraum. Die LEED-Bilder liefern demnach nach Rücktransformation die Basisvektoren \vec{a}_1 und \vec{a}_2 der Oberflächeneinheitszelle.

Zur Beschreibung von Oberflächenrekonstruktionen oder Überstrukturen, die durch adsorbierte Teilchen oder dünne Schichten eines anderen Materials entstehen, dienen die Bezeichnungen von Wood [69] sowie die von Park und Madden [70]. Dabei wird die Periodizität der Überstruktur, die durch die Vektoren \vec{b}_1 und \vec{b}_2 gekennzeichnet ist, auf die Periodizität der Substratstruktur, die durch die Vektoren \vec{a}_1 und \vec{a}_2 bestimmt ist, bezogen. Bei Wood dient das Verhältnis der Längen der Gittervektoren sowie der zwischen den Gittern befindliche Winkel ϑ zur Kennzeichnung der Lage des Oberflächengitters relativ zum Substratgitter. Demnach wird die Rekonstruktion bzw. die Überstruktur durch folgende Notation gekennzeichnet:

$$z \left(\frac{|\vec{b}_1|}{|\vec{a}_1|} \times \frac{|\vec{b}_2|}{|\vec{a}_2|} \right) R\vartheta \quad (2.39)$$

Der Buchstabe z ist durch p zu ersetzen, wenn es sich um eine primitive Einheitszelle handelt und durch c , wenn es sich um eine zentrierte handelt. Bei der Nomenklatur von Park und Madden werden die primitiven realen Gittervektoren der Überstruktur in den Koordinaten der realen Gittervektoren des Substrates ausgedrückt:

$$\begin{aligned} \vec{b}_1 &= m_{11} \vec{a}_1 + m_{12} \vec{a}_2 \\ \vec{b}_2 &= m_{21} \vec{a}_1 + m_{22} \vec{a}_2 \end{aligned} \quad (2.40)$$

Die Benennung der Überstruktur erfolgt nun in Matrix-Schreibweise:

$$M = \begin{pmatrix} m_{11} & m_{12} \\ m_{21} & m_{22} \end{pmatrix} \quad (2.41)$$

Die endliche Eindringtiefe der Primärelektronen ergibt jedoch auch Beiträge aus der Beugung an einigen tiefer liegenden Lagen, so dass auch die dritte Laue-Bedingung wichtig wird. Dies führt zu Modulationen der Reflexintensität in Abhängigkeit von der Primärenergie, die in so genannten LEED-I/V-Kurven gemessen werden. I/V-Kurven enthalten somit zusätzliche Informationen über die Struktur senkrecht zur Oberfläche.

Kapitel 3

Experimentelles

3.1 Versuchsaufbau

Die in dieser Arbeit vorgestellten Messungen wurden an zwei verschiedenen UHV-Apparaturen durchgeführt, die im Folgenden mit I und II bezeichnet werden. Beide Apparaturen sind mit einem AES-Spektrometer, einer LEED-Optik, einem Quadrupolmassenspektrometer (QMS) für die Restgasanalyse, einer Sputter-Ionenquelle und einer Einrichtung für Heliumstreuexperimente ausgestattet. Sowohl die hochauflösende Heliumstreuapparatur I als auch die zweite UHV-Apparatur II mit dem in die Streukammer integrierten Düsenstrahl sind in [71, 72] bzw. in [73] ausführlich beschrieben worden.

3.1.1 Die hochauflösende Helium-Streuapparatur I

Abbildung 3.1 zeigt eine schematische Darstellung der hochauflösenden Helium-Streuapparatur. Mit ihr sind alle in den Kapiteln 5-7 beschriebenen Experimente durchgeführt worden. Die Messapparatur besteht, in der Folge wie sie der He-Strahl durchläuft, im Wesentlichen aus Düsenkammer, Streukammer, Chopper- und Detektor-kammer. Die Kammern sind zur Vereinfachung von Montage, Wartung und Ausheizbarkeit durch Metallfaltenbälge miteinander verbunden und mittels Ventilen voneinander abtrennbar.

In der **Düsenkammer** wird komprimiertes Helium (50-400 bar, Reinheit 6.0) durch eine Düsenöffnung (Durchmesser 10 μm) ins Vakuum expandiert. Aus der resultierenden Winkelverteilung wird mittels zweier Abschäler der He-Strahl geformt. Er gelangt dabei über ein System bestehend aus drei differentiellen Pumpstufen (mit den zwei Abschälern und einer Lochblende mit 1 mm Durchmesser) auf die Probe, die sich

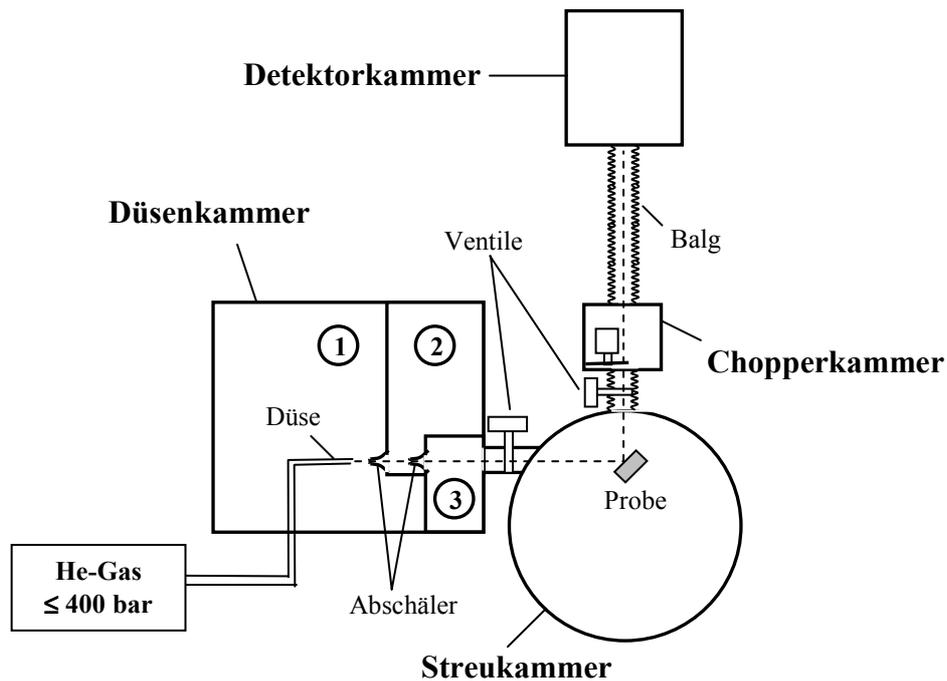


Abbildung 3.1: Schematische Darstellung der hochauflösenden Helium-Streuapparatur I (Aufsicht)

in der Streukammer befindet. Der Öffnungswinkel des He-Strahls ist 0.2° . Bei einer Primärenergie von 20 meV betragen seine volle Energiehalbwertsbreite 0.3 meV und sein Strahldurchmesser am Probenort 2 mm. Bei der Expansion wird die gesamte Enthalpie des Düsenstrahls in vorwärtsgerichtete kinetische Energie umgewandelt. Für ein ideales, einatomiges Gas gilt die Beziehung

$$E_{\text{kin}} = \frac{1}{2} m_{\text{He}} v^2 = \frac{5}{2} k_B T_D \quad (3.1)$$

dabei sind m_{He} die Masse und v die Geschwindigkeit des He-Atoms, k_B ist die Boltzmannkonstante und T_D ist die Gastemperatur in der Düse. Demzufolge wird die kinetische Energie des He-Strahls E_{kin} über die Temperatur T_D der Düse eingestellt. Dazu kann diese mit einer Heizeinrichtung bis 450 K (bei bis zu 400 bar Düsendruck) erwärmt und mit flüssigem Stickstoff bis etwa 100 K bzw. mit flüssigem Helium bis etwa 60 K gekühlt werden. Die Monochromasie des He-Strahles wird üblicherweise durch das so genannte Geschwindigkeitsverhältnis S charakterisiert, das sich mit der Halbwertsbreite Δv der Geschwindigkeitsverteilung wie folgt verknüpfen lässt [74]:

$$S = 1,65 \cdot \frac{V_{\text{He}}}{\Delta v} \quad (3.2)$$

Der hier verwendete Heliumstrahl weist die Geschwindigkeitsauflösung $\Delta v/v \approx 0.007$ auf und erreicht Intensitäten $I > 10^{19}$ Atome/sr · s [75]. Somit ergibt sich das Geschwindigkeitsverhältnis zu $S \approx 235$ und die Energieauflösung zu $\Delta E/E \approx 0.014$.

Der auf die Probe fallende Heliumstrahl bildet mit der Oberflächennormalen den Winkel θ_i . In der Detektorkammer werden nur diejenigen He-Atome detektiert, welche in Bezug zur Oberflächennormalen unter dem Winkel θ_f gestreut werden, wobei für die Streuexperimente dieser Arbeit $\chi = \theta_i + \theta_f = 90^\circ$ gilt. Die Probe befindet sich in der **Streukammer**, die nach Ausheizen einen Restgasdruck von $5 \cdot 10^{-11}$ bis $1 \cdot 10^{-10}$ mbar hat. Durch den He-Strahl steigt der Heliumpartialdruck in der Streukammer bis zu etwa $2 \cdot 10^{-9}$ mbar an. Die Probe kann mittels eines Manipulators entsprechend der drei Freiheitsgraden der Rotation und auch der Translation bewegt werden. Die Hauptachse des Manipulators, die gleichfalls die Polarwinkeldrehachse ist (θ_i), steht senkrecht zur Streuebene. Die Streuebene wird aus dem Einfallswinkel und Ausfallswinkel des He-Strahls und der Oberflächennormalen gebildet. Die Azimutwinkeldrehachse (φ) ist mit der zentralen Oberflächennormalen identisch, dabei legt der Azimut die kristallographische Orientierung der Probe gegenüber der Streuebene fest. Die Kippachse (Tilt) liegt senkrecht zur Polarachse einige Millimeter hinter der parallel zu ihr gerichteten Probenfläche und dient dazu, die Oberflächennormale gegenüber der Streuebene zu kippen. Sie wird jedoch nur zu Justierzwecken verwendet und macht, aufgrund ihrer Position hinter der Probenfläche, mitunter eine geringe Höhenkorrektur (z-Bewegung) der Probe notwendig. Die Rotationsbewegungen werden durch externe Schrittmotoren gesteuert. Die Eichung des Azimuts erfolgt über die Position der BRAGG-Reflexe. Die Einstellung des Tilt wird grob mit einer Laserreflexion an der Probenoberfläche und fein mit dem (0,0)-Reflex des He-Strahls durchgeführt. In den Manipulator sind ein Heliumkryostat und eine Elektronenstoßheizung integriert, so dass Proben Temperaturen zwischen 70 und 1200 K bei Verwendung eines Cu-Kühlrings für die Probe erreicht werden können. Die Temperatur wird direkt an der Probe mit einem NiCr-Ni-Thermoelement gemessen. In der Streuposition wird die Probe zu Reinigungszwecken mit Ar^+ -Ionen einer Energie von 800-1000 eV gesputtert. In der Streukammer sind zudem zwei Verdampferöfen für

Eisen und Gallium eingebaut, mit deren Hilfe dünne Filme auf die Probenoberfläche gedampft werden können. Die Oberflächenuntersuchung mittels Heliumstreuung wird durch LEED und AES ergänzt. Durch zusätzliches Drehen des zweifach differentiell gepumpten Deckelflansches um 180° kann die Probe vor das AES-Spektrometer gefahren werden.

Der an der Probe gestreute Heliumstrahl gelangt in die **Chopperkammer**, in der er für Flugzeitmessungen von einer rotierenden Scheibe (*Chopper*) in eine pseudostatische Pulsfolge zerlegt werden kann [76], und trifft schließlich nach zwei weiteren differentiellen Pumpstufen in den Detektor. Der Abstand zwischen Chopperkammerblende und Detektorblende definiert, zusammen mit diesen Blenden, die Winkelauflösung der Detektorlinie (hier 0.2°), so dass sich unter Berücksichtigung der 0.2° Strahldivergenz eine Gesamtwinkelauflösung von ca. 0.3° ergibt [77].

Im **Detektor** werden die Heliumatome ionisiert, in einem Massenspektrometer vom Restgas separiert und per Channeltron in einzelne Spannungsimpulse umgewandelt [78], gezählt und als Intensität in [Impulse/Sekunde] ausgegeben. Die Ionisationswahrscheinlichkeit der He-Atome beträgt $\sim 10^{-5}$. Die vom Detektor gemessene Intensität I_g muss um die Totzeit t_d gemäß

$$I = \frac{I_g}{1 - t_d \cdot I_g} \quad (3.3)$$

korrigiert werden, um die wahre Intensität I zu erhalten. Alle in dieser Arbeit aufgeführten Intensitäten wurden auf diese Weise um die in Ref. [52] angegebene Totzeit von $0.7 \mu\text{s}$ korrigiert.

3.1.2 UHV-Apparatur II

Abbildung 3.2 zeigt eine schematische Darstellung der UHV-Apparatur II. An ihr wurden ausschließlich die in Kapitel 4 beschriebenen Experimente durchgeführt. Sie besteht aus vier differentiell gepumpten Kammern. Das Strahlsystem ist innerhalb der Probenkammer auf einer drehbaren Scheibe angebracht. Es besteht aus einer Düsenkammer und einer Chopperkammer, die über eine federgestützte Teflongleitdichtung, auf der die Drehscheibe liegt und geführt wird, gegen die Probenkammer abgedichtet sind. Der Düsenstrahl wird im Gegensatz zu der hochauflösenden He-Streuapparatur (I) bei viel niedrigeren Drücken ($p_{\text{He}} = 2\text{-}3 \text{ bar}$) erzeugt und kann nicht gekühlt werden.

Daher beträgt die Energie der Heliumatome in den hiermit durchgeführten Experimenten 63 meV und die volle Halbwertsbreite der Geschwindigkeitsverteilung ist $\Delta v/v \approx 12\%$ [79]. Nach Gleichung 3.2 ergibt sich somit das Geschwindigkeitsverhältnis zu $S \approx 14$ und die Energieverteilung liegt bei $\Delta E/E \approx 0.24$. Die Winkelauflösung des He-Strahls kann zwischen 0.4° und 2° variiert werden [80]. Zur Durchführung der Heliumstreuexperimente wurde die Probe so justiert, dass der Ausfallwinkel der detektierten He-Atome stets $\theta_f = 70^\circ$ beträgt. Während der Helium-Beugungsexperimente wurde der Einfallswinkel des He-Strahls variiert, indem der Düsenstrahl mit Chopperkammer in der Messebene um die Probe gedreht wurde (siehe Abbildung 3.2).

Der Detektor ist in einer abgetrennten, differenziell gepumpten Kammer untergebracht, die nur über eine Blende von 0.7 mm Durchmesser zum Durchlass des Atomstrahls mit der Probenkammer verbunden ist. Der Ionisationsdetektor ist wie bei Apparatur I mit einem Quadrupolmassenfilter kombiniert und kann auch für TDS-

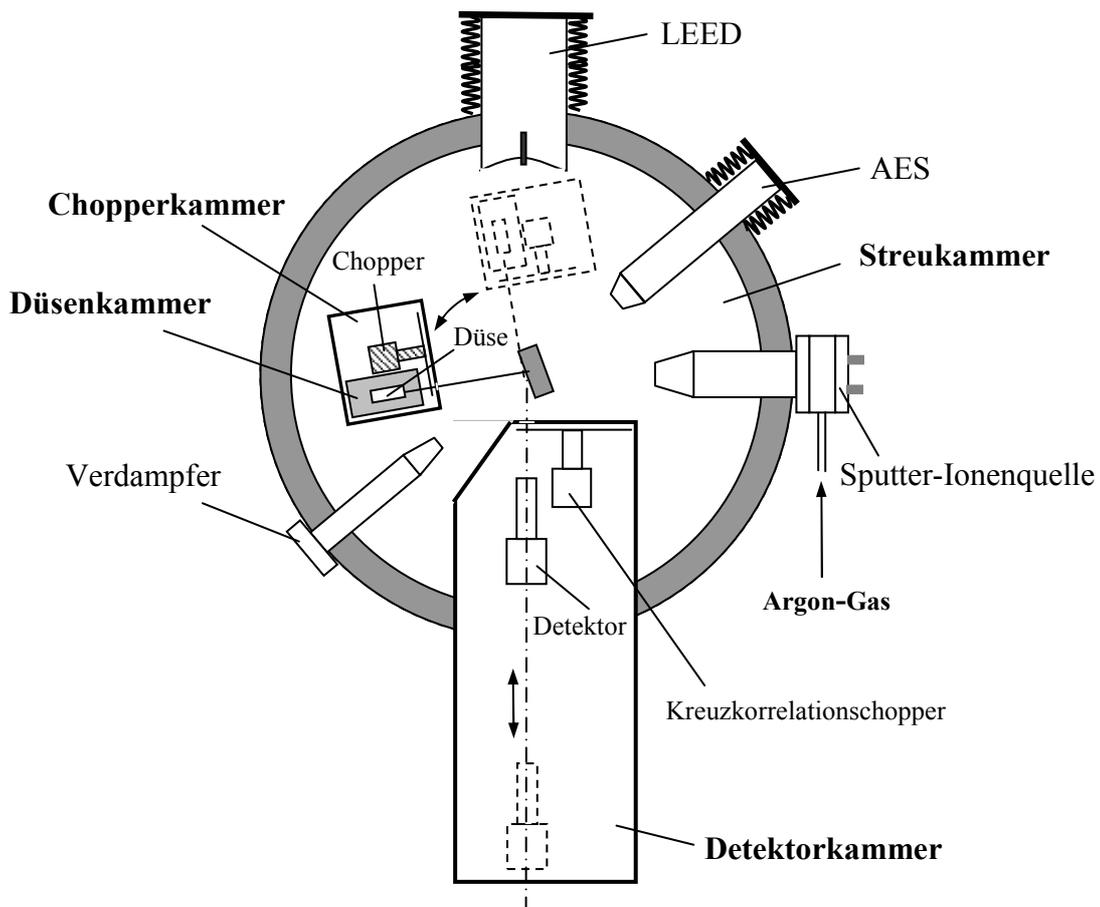


Abbildung 3.2: Schematische Darstellung der UHV-Apparatur II (Aufsicht)

Experimente verwendet werden. Die 0.7 mm Blende und die Ionisatoreintrittsblende (3.2 mm \varnothing) schränken den Raumwinkel, aus dem Teilchen detektiert werden, auf etwa 1° ein.

Der hier verwendete Manipulator ist identisch zu dem zuvor beschriebenen und ermöglichte, die Probe in allen drei Raumrichtungen zu verschieben und um alle drei Winkel zu drehen. Die Probe kann durch einen im Manipulator integrierten Kryostaten mit flüssigem Stickstoff bis etwa 85 K gekühlt werden. Zusätzlich wurde eine Schleuse zwischen Manipulator und Probenkammer eingesetzt, um Probenwechsel ohne Belüftung der Vakuumkammer (80 cm \varnothing) durchführen zu können. Die Ionenkanone dient zum Reinigen der Probe, wobei ein Strahl aus Ar^+ -Ionen auf die Oberfläche gerichtet und auf 1-2 keV beschleunigt wird. AES und LEED-Optik werden zur Charakterisierung der Oberfläche benutzt. Beide sind mittels Federbälgen montiert und können mit Hilfe von Elektromotoren bis in die jeweilige Messposition gefahren werden. Aus Platzgründen wurde das LEED-System oberhalb der Streuebene untergebracht, so dass die Probe hierzu aus der Messebene bewegt werden muss.

3.2 Charakterisierung der verwendeten Materialien

Als Substrate für das Wachstum von dünnen metallischen (Fe-, Ga-) Filmen und dünnen Oxidschichten (Ga_2O_3) sind in der vorliegenden Arbeit die intermetallische Legierung CoGa und die halbleitende Verbindung GaAs verwendet worden. Im Folgenden sollen kurz die für die Wachstumsexperimente wichtigen Eigenschaften der hier verwendeten Materialien vorgestellt werden.

3.2.1 Der GaAs-Kristall

Galliumarsenid (GaAs) kristallisiert, wie ähnliche Verbindungen aus Elementen der III-ten und der V-ten Gruppe des Periodensystems in der *Zinkblendestruktur*. Abbildung 3.3(a) zeigt den Aufbau des GaAs-Gitters. Die Zinkblendestruktur entsteht durch zwei ineinander geschobene kubisch-flächenzentrierte Strukturen, die entlang der Raumdiagonalen um $1/4$ der Diagonalenlänge gegeneinander verschoben sind, wobei die Plätze $(0,0,0)$ und $(1/4,1/4,1/4)$ jeweils durch die beiden Atome, Ga und As, besetzt sind. Jedes Ga-Atom liegt demnach in der Mitte eines regelmäßigen Tetraeders, wobei die vier Atome, die den Tetraeder bilden, aus As-Atomen bestehen. Die Gitterkonstante entspricht der Kantenlänge des Würfels in Abbildung 3.3(a) und beträgt $a_0 = 5.65 \text{ \AA}$, die Entfernung zum nächsten Nachbarn dementsprechend 2.45 \AA [81].

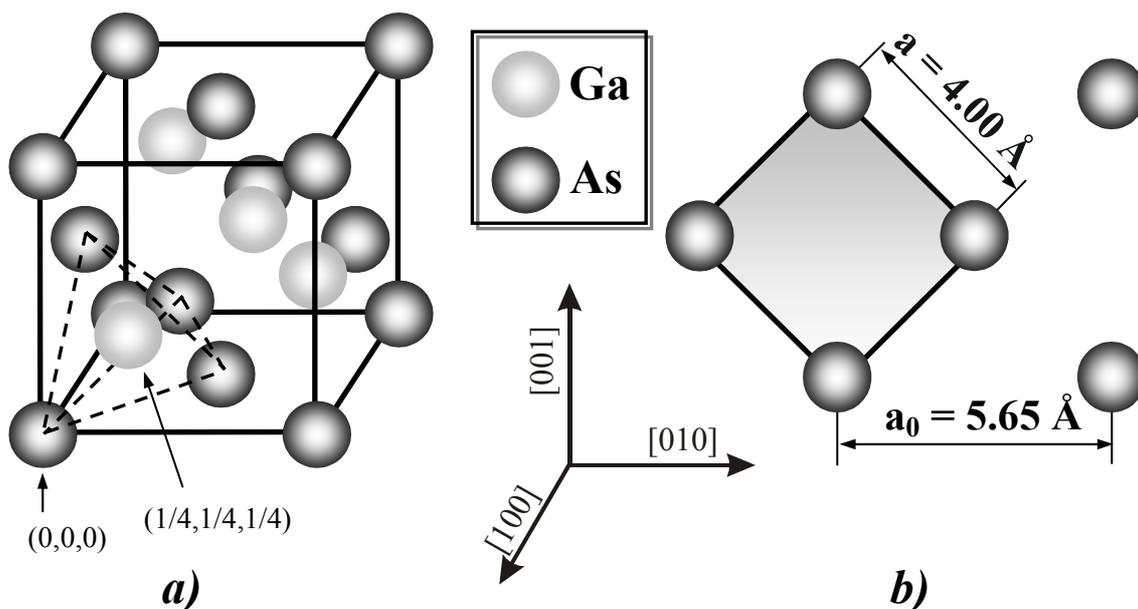


Abbildung 3.3: Einheitszelle des GaAs-Gitters (a) und der GaAs(100)-Fläche (b)

In Kapitel 4 wird für das Eisenwachstum die (100)-orientierte GaAs-Oberfläche verwendet. Abbildung 3.3(b) zeigt einen Schnitt senkrecht zur [100]-Richtung durch das Atomgitter. Die ideal (100)-orientierte Fläche ist entweder ausschließlich mit As-Atomen oder nur mit Ga-Atomen besetzt. Die primitive Einheitszelle dieser Fläche ist ein Quadrat mit der Kantenlänge $a = 4.00 \text{ \AA}$. In Wirklichkeit ist die GaAs(100)-Oberfläche jedoch rekonstruiert. Die Rekonstruktionen werden in erster Linie durch das As/Ga-Konzentrationsverhältnis bestimmt. Die allgemein beobachteten Rekonstruktionen sind (geordnet nach fallendem As/Ga-Konzentrationsverhältnis): $c(4 \times 4)$, $c(2 \times 8)$ und $c(8 \times 2)$ [82, 83]. Mit ähnlicher As-Bedeckung wie bei der $c(8 \times 2)$ -Rekonstruktion wurden auch $(n \times 6)$ -Rekonstruktionen mit $n = 1, 2, 3, 4, 6$ gefunden [81, 82, 84]. Mittels Molekularstrahlepitaxie (MBE) lassen sich weitere Oberflächenstrukturen aufgrund kinetischer Effekte stabilisieren. Insbesondere bei Rekonstruktionen mit ähnlicher Zusammensetzung der Oberfläche können Übersättigungseffekte oder Nukleationsphänomene für die jeweilige Rekonstruktion ausschlaggebend sein.

Die hier verwendete GaAs(100)-Probe ist durch mehrere Zyklen von Ar^+ -Ionenbeschuss (1-2 keV) mit anschließendem Ausheilen bei 825 K für 5-10 Minuten präpariert worden. Diese Präparation der GaAs(100)-Oberfläche führte meistens zur Bildung einer $c(8 \times 2)$ -Rekonstruktion (siehe Kap.4.1). Bei einer leicht abweichenden Präparationsweise konnte manchmal zusätzlich eine $p(4 \times 6)$ -Rekonstruktion beobachtet werden (siehe Kap. 4.1).

3.2.2 Die intermetallische Verbindung CoGa

CoGa kristallisiert in einer *Cäsiumchlorid-Struktur*, d.h. in einer kubisch raumzentrierten Struktur (bcc), bei welcher jedes Atom in der Mitte eines Würfels liegt, dessen Ecken von Atomen der anderen Art besetzt sind. Die Struktur ist in Abbildung 3.4 dargestellt. Die Gitterkonstante des CoGa-Einkristalls beträgt 2.88 \AA [85]. Die Einheitszelle der idealen (100)-Fläche von CoGa ist in Abbildung 3.4 schattiert dargestellt und zeigt ein Quadrat. Die (100)-Fläche besteht entweder nur aus Co-Atomen oder nur aus Ga-Atomen. Wie im Fall von GaAs findet man jedoch auch für CoGa(100) in Abhängigkeit von der Präparation unterschiedliche Oberflächenstrukturen. Ihre Präparation und die strukturellen Eigenschaften werden in Kap. 5.1 beschrieben.

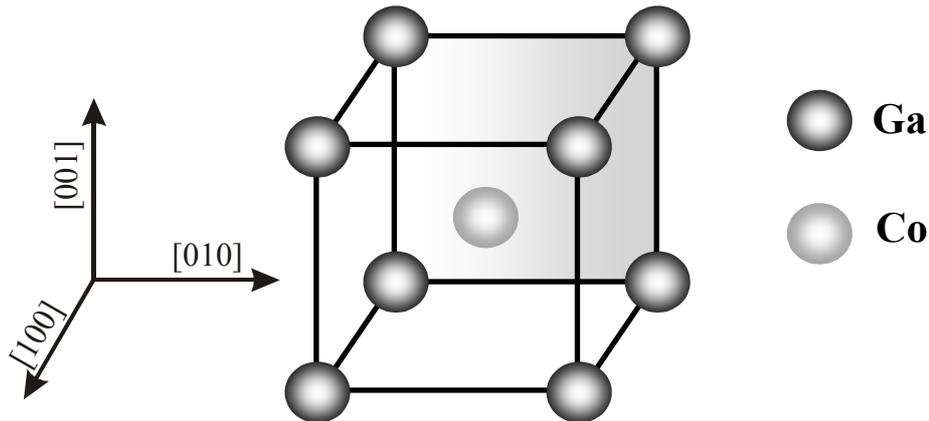


Abbildung 3.4: Die Struktur des CoGa Kristallgitters

3.2.3 Eisen (Fe)

Eisen kristallisiert bei Raumtemperatur und unter normalem Druck in einer kubisch raumzentrierten Struktur – der α -Phase – mit einer Gitterkonstanten von 2.866 Å [86, 87]. Bei hohem Druck kann auch eine hexagonale Struktur – die ϵ -Phase – stabilisiert werden [87]. Die α -Phase ist bis 910°C stabil. Bei dieser Temperatur findet der Übergang zur γ -Phase statt. Die γ -Phase besitzt eine fcc-Struktur mit einer Gitterkonstanten von 3.64 Å [86, 87]. Ein weiterer struktureller Phasenübergang wird bei 1390°C beobachtet: γ -Fe geht wieder in eine bcc-Struktur – die δ -Phase – über, diesmal mit einer Gitterkonstanten von 2.93 Å [86, 87]. Die δ -Phase ist thermisch stabil bis 1525°C, wo der Schmelzpunkt nahezu erreicht wird. Tabelle 3.1 zeigt eine Zusammenfassung der wichtigsten Kristallstrukturdaten von Eisen:

Tabelle 3.1: Kristallstrukturen von Eisen nach Landoldt-Börnstein [87]

Name	Struktur	Gitterkonstante (Å)	thermisch stabiler Temperaturbereich (°C)
α -Fe	bcc	2.866	< 910
γ -Fe	fcc	3.646	910 < T < 1390
δ -Fe	bcc	2.932	1390 < T < 1535 (= T_m)

3.2.4 Gallium (Ga)

Gallium ist ein trivalentes Metall, das eine sehr geringe Schmelztemperatur besitzt ($T_m = 29.78^\circ\text{C}$) und in einer Vielzahl von Strukturen kristallisiert. Unter normalen Bedingungen ist α -Ga die einzige stabile Phase. Sie besitzt eine Struktur, die durch eine flächenzentrierte orthorhombische Einheitszelle mit acht Atomen beschrieben wird und deren Gitterkonstanten $a = 4.51 \text{ \AA}$, $b = 4.52 \text{ \AA}$ und $c = 7.64 \text{ \AA}$ betragen [88]. Ein Teil der Ga-Verbindungen ist kovalenter Natur, so dass α -Ga als metallisch-molekularer Kristall betrachtet werden kann. Bei normalem Atmosphärendruck und niedrigen Temperaturen können weitere (metastabile) Phasen stabilisiert werden, wie z.B. β -, γ - und δ -Ga [89-91]. Die entsprechenden Struktureigenschaften sind in der Tabelle 3.2 aufgelistet. Interessant für diese Arbeit ist das β -Ga. Es besitzt eine monokline Struktur, mit folgenden Gitterparameter (gemessen bei -25°C): $a = 2.77 \text{ \AA}$, $b = 8.05 \text{ \AA}$, $c = 3.33 \text{ \AA}$ und $\beta = 92^\circ$ [89] und ist stabil bis -16.3°C . Bei hohem Druck sind zwei stabile Phasen des Galliums bekannt: Ga(II) und Ga(III) [92]. Deren kristallographische Daten sind ebenfalls in der Tabelle 3.2 eingetragen.

Tabelle 3.2: Kristallstrukturdaten von Gallium:

Name	Struktur	Gitterkonstante (\AA)	thermisch stabiler Temperaturbereich ($^\circ\text{C}$)
α -Ga	orthorhombisch	$a = 4.51, b = 4.52, c = 7.64$	$< 29.78 (= T_m)$
β -Ga	monoklin	$a = 2.766, b = 8.053, c = 3.332$ $\beta = 92^\circ 02'$	< -16.3
γ -Ga	orthorhombisch	$a = 10.60, b = 13.56, c = 5.19$	< -35.6
δ -Ga	rhomboedrisch	$a = 2.766$ $\alpha = 72^\circ 02'$	< -19.4
Ga(II)	bcc	$a = 5.951 (2.6 \text{ GPa})$	
Ga(III)	tetragonal	$a = 2.813, c = 4.452 (2.8 \text{ GPa})$	

3.2.5 Eisenoxide

In der Literatur wird eine große Anzahl von Eisenoxiden beschrieben [86]. Die wichtigsten sind FeO (*Wüstit*), α -Fe₂O₃ (*Hämatit*) und Fe₃O₄ (*Magnetit*). Wüstit (FeO) kristallisiert in einer NaCl-Struktur mit der Gitterkonstanten 4.31 Å und schmilzt bei 1377°C [93]. Gewöhnlich werden jedoch Abweichungen von der 1:1 Stöchiometrie beobachtet, daher schreibt man die chemische Formel des Wüstit als Fe_{1-x}O. Abhängig von x wurden in der Literatur unterschiedliche Gitterkonstanten angegeben [93]. Hämatit (α -Fe₂O₃) hat eine Korund-Struktur, welche isomorph zum α -Al₂O₃ ist [93]. Die Struktur basiert auf einem dichtgepackten hexagonalen Sauerstoffgitter, mit den Fe³⁺-Ionen in oktaedrischen Lückenplätzen. Ein Drittel dieser Lücken bleibt jedoch unbesetzt, um die Stöchiometrie des Kristalls zu bewahren. Die Gitterkonstanten von α -Fe₂O₃ sind $a = 5.03$ Å und $b = 13.75$ Å. Eine detaillierte Beschreibung dieser Struktur ist in Ref. [94] zu finden. Magnetit (Fe₃O₄) kristallisiert in einer „Spinell-Struktur“, d.h. in einer Struktur, die isomorph zu MgAl₂O₄ ist [93]. Dabei bilden die Sauerstoffionen eine fcc-Struktur. Die Kationen (Fe²⁺- und Fe³⁺-Ionen) besetzen sowohl tetraedrische als auch oktaedrische Lücken im Sauerstoffgitter. Die Gitterkonstante von Fe₃O₄ beträgt 8.39 Å [93]. Eine Zusammenfassung der Strukturdaten ist in Tabelle 3.3 dargestellt.

Tabelle 3.3: Kristallstrukturdaten von Eisenoxid nach Landoldt-Börnstein [93]

Name	Struktur	Gitterkonstante (Å)	Schmelztemp. (°C)
FeO	kubisch (NaCl-Typ)	4.3125	1377
Fe ₂ O ₃	hexagonal (Korund-Typ)	$a = 5.034, c = 13.752$	1570
Fe ₃ O ₄	kubisch (Spinell-Typ)	8.394	1527

3.2.6 Galliumoxide

Die bislang einzige bekannte kristalline Form des Galliumoxides ist Ga₂O₃. Es wurden bereits mindestens vier verschiedene Phasen des Ga₂O₃ beobachtet [93]. Sie sind zusammen mit ihren Kristallstrukturdaten in Tabelle 3.4 aufgelistet. Die α -Phase von Ga₂O₃ ist isomorph zum α -Al₂O₃ und hat dementsprechend eine Korund-Struktur

mit den Gitterkonstanten $a = 4.983 \text{ \AA}$ und $c = 13.43 \text{ \AA}$ [93]. Sie basiert auf einen hexagonalen Sauerstoffgitter mit den Ga^{3+} -Ionen auf oktaedrischen Lückenplätzen. Eine für die vorliegende Arbeit wichtige Phase ist das $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$, welches eine monokline Struktur mit den Gitterkonstanten $a = 3.04 \text{ \AA}$, $b = 5.80 \text{ \AA}$, $c = 12.23 \text{ \AA}$ und $\beta = 103.7^\circ$ besitzt [87]. Die Sauerstoffatome bilden hier eine fcc-Struktur, in der die Ga^{3+} -Ionen sowohl oktaedrische als auch tetraedrische Lückenplätze besetzen. Ein ähnliches Verhalten wird auch im Fall des γ - und $\delta\text{-Ga}_2\text{O}_3$ beobachtet. Diese zwei Phasen haben jedoch eine kubische Struktur, mit der Gitterkonstanten 8.22 \AA bzw. 9.52 \AA . Neulich konnte auch eine γ' -Phase des Ga_2O_3 sowohl auf einer $\text{CoGa}(110)$ -Fläche [95] als auch auf der $\text{Ni}(100)$ -Fläche dargestellt werden [96].

Tabelle 3.4: Kristallstrukturdaten von Ga_2O_3

Name	Struktur	Gitterkonstante (\AA)
$\alpha\text{-Ga}_2\text{O}_3$	hexagonal (Korund-Typ)	$a = 4.983, c = 13.43$
$\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$	monoklin	$a = 3.04, b = 5.80, c = 13.752$ $\beta = 103.7^\circ$
$\gamma\text{-Ga}_2\text{O}_3$	kubisch (Spinell-Typ)	8.22
$\gamma'\text{-Ga}_2\text{O}_3$	kubisch (Spinell-Typ)	4.11
$\delta\text{-Ga}_2\text{O}_3$	kubisch	9.52

3.2.7 Thermodynamische Eigenschaften

Wie in Kap.1.2 gezeigt wurde, ist das Wachstum von dünnen metallischen oder oxidischen Filmen auf kristallinen Substraten kinetisch bedingt. Meistens ist es jedoch möglich, aufgrund thermodynamischer Überlegungen vorauszusagen, ob das Wachstum zweidimensional oder dreidimensional erfolgt. Dazu sind Kenntnisse über die jeweilige *freie Oberflächenenergie* γ_s erforderlich (siehe Kap. 1.1). Die freien Oberflächenenergien γ_s der hier verwendeten Metalle (Ga, Co und Fe) sind in Tabelle 3.5 aufgelistet und zwar sowohl für Raumtemperatur (298 K) [97] als auch für die jeweilige Schmelztemperatur T_m [97, 98]. Für Ga_2O_3 wird angenommen, dass sich die freie Oberflächenenergie

gie nicht viel von der des Al_2O_3 unterscheidet. Dessen Wert liegt nach [98] zwischen 650 und $925 \text{ mJ} / \text{m}^2$.

Tabelle 3.5: Berechnete Werte der freien Oberflächenenergie

Material	γ_s (298 K) [17] (mJ / m^2)	γ_s (T_m) [17] (mJ / m^2)	γ_s (T_m) [18] (mJ / m^2)	T_m (K)
Ga	720	718	650	302.9
Co	2709	2003	1870	1765
Fe	2939	1923	1787	1808

Wird ein Metall A auf der Oberfläche eines metallischen Oxides B_xO_y deponiert, so kann es zu einer Reaktion kommen, in welcher B_xO_y zu B reduziert und A zu $\text{A}_x'\text{O}_{y'}$ oxidiert wird:



Dies geschieht, wenn die Reaktion exotherm ist. Vernachlässigt man die Bildungsentropien der Oxide, so ist diese Bedingung erfüllt, wenn die *Bildungsenthalpie* $\Delta H^0 / \text{mol}$ *Sauerstoff* von $\text{A}_x'\text{O}_{y'}$ negativer ist als die von B_xO_y . Einige für diese Arbeit interessante Werte der Bildungsenthalpie ΔH^0 sind in Tabelle 3.6 aufgelistet.

Tabelle 3.6: Bildungsenthalpie ΔH^0 (kJ / mol) ausgewählter Oxide [99]

ΔH^0 (kJ / mol)						
Galliumoxide		Kobaltoxide		Eisenoxide		
Ga_2O	Ga_2O_3	CoO	Co_3O_4	FeO	Fe_2O_3	Fe_3O_4
-356.0	-1089.1	-237.9	-891.0	-272.0	-824.2	-1118.4

Kapitel 4

Wachstum von Fe und Fe/ Ga₂O₃/ Fe₃Ga_{2-x}As_x- Multischichten auf GaAs(100)

In diesem Kapitel war das Ziel der Untersuchungen die Herstellung und Charakterisierung eines TMR (Tunneling Magnetoresistance)-Modellsystem, ausgehend von dem halbleitenden Substrat GaAs. Ein TMR-System besteht aus zwei ferromagnetischen Schichten, die durch eine Isolatorschicht, Tunnelbarriere genannt, getrennt sind. Abbildung 4.1 zeigt das Schema eines TMR-Systems das auf einem Halbleitersubstrat aufgebaut ist. Der Tunnelwiderstand (oder Tunnelstrom) hängt dabei von der relativen Magnetisierung der ferromagnetischen Schichten **FM_{1,2}** sowie von der Dicke (1 - 2 nm) und der elektrischen Bandlücke der Tunnelbarriere **I** ab [5].

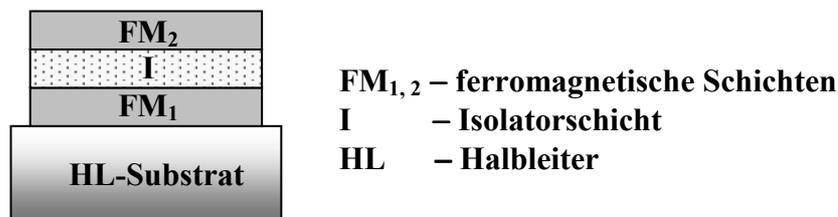


Abbildung 4.1

Im Rahmen dieser Dissertationsarbeit sollte das Wachstum und die strukturellen Eigenschaften der einzelnen Schichten eines TMR-Systems untersucht werden und Möglichkeiten gesucht werden ein epitaktisches Schichtsystem mit wohldefinierten Grenzflächen zwischen den Schichten herzustellen. Als Tunnelbarriere werden meistens dünne Al₂O₃-Schichten verwendet. Als Alternative zu Al₂O₃ bietet sich Ga₂O₃ an, dessen kristallinen Phasen isomorph zu den entsprechenden Phasen des Al₂O₃ sind. Einer der Vorteile des Ga₂O₃ ist, dass sich wohlgeordnete Schichten bei geringeren Temperaturen herstellen lassen als kristalline Al₂O₃-Schichten.

Dünne Ga_2O_3 -Schichten können auf den einkristallinen Substrate CoGa [100-103], GaN [104], GaAs [105] und Ni [96] gewachsen werden. Während sich im Temperaturbereich zwischen 700 und 900 K wohlgeordnete β - Ga_2O_3 -Schichten auf CoGa(100) herstellen lassen [100-103], wächst auf der GaAs(100)-Oberfläche nur eine amorphe Galliumoxidschicht [105].

In diesem Kapitel wird das Wachstum eines TMR-Vielschichtsystems beschrieben, ausgehend von GaAs als Substrat. Zuerst wurde Fe (FM_1) auf der GaAs(100)-Oberfläche deponiert, auf das anschließend eine dünne Ga_2O_3 -Schicht (**I**) als Tunnelbarriere gewachsen wurde. Als zweite ferromagnetische Schicht wurde eine dünne Fe-Schicht (FM_2) aufgedampft. In den folgenden Unterkapiteln werden das Wachstumsverhalten, die Struktur, die Oberflächenmorphologie und die thermische Stabilität der einzelnen Schichten und des Substrates beschrieben. Die Untersuchungen fanden in dem als UHV-Apparatur II bezeichneten System statt, indem als Untersuchungsmethoden TEAS, LEED und AES zur Verfügung standen.

4.1 Die reine GaAs(100)-Oberfläche

Die GaAs(100)-Probe hat eine Fläche von $10 \times 6 \text{ mm}^2$ und eine Dicke von 0.5 mm und ist aus einem GaAs-Wafer geschnitten. Sie wird mittels Elektronenstoß von der Rückseite der Halterung her geheizt. Zur Temperaturmessung wurde an dem Probenhalter ein NiCr-Ni Thermoelement befestigt. Die GaAs(100)-Probe wurde in-situ durch wiederholte Zyklen von Ar^+ -Ionenbeschuss (2 keV) und anschließendem Ausheilen bei 825 K gereinigt. Diese Prozedur wurde nach jedem Experiment wiederholt, um die auf der Probe deponierten Schichten zu entfernen und führte zu einer relativ sauberen und glatten GaAs(100)-Oberfläche.

Die Struktur der GaAs(100)-Oberfläche wurde mittels LEED und TEAS untersucht. Abbildung 4.2 zeigt Helium-Beugungsspektren gemessenen in $[01\bar{1}]$ - (Abb. 4.2(a)) und in $[011]$ -Richtung (Abb. 4.2(b)). Dabei wurde der Ausfallswinkel des Heliumstrahls bei 70° konstant gehalten, während der Einfallswinkel variiert wurde. Die Spektren sind jeweils auf die Intensität des gespiegelten (0,0)-Reflexes normiert. Deshalb muss hier bemerkt werden, dass die gespiegelte Intensität in $[011]$ -Richtung ungefähr dreimal größer ist als die in $[01\bar{1}]$ -Richtung gemessene. In $[01\bar{1}]$ -Richtung er-

kennt man, neben dem gespiegelten (0,0)-Reflex, deutliche Beugungsreflexe bei $(-1/4, 1/4)$, $(1/4, -1/4)$, $(1/2, -1/2)$ und $(1, -1)$. Der $(3/4, -3/4)$ -Reflex ist von dem $(1/2, -1/2)$ -Reflex bedeckt und ist nur durch eine Verbreiterung dessen zu beobachten. In $[01\bar{1}]$ -Richtung sind nur die Beugungsreflexe (0,0) und (1,1) zu erkennen. Die Oberflächenstruktur zeigt demnach eine (4×1) -Periodizität gegenüber dem (unrekonstruierten) GaAs-Substrat. Diese Struktur wird durch das in Abbildung 4.3(a) dargestellte LEED-Bild der reinen GaAs(100)-Oberfläche bestätigt. Sie zeigt auch die typische (4×1) -Periodizität an, man erkennt jedoch auch zusätzliche, schwache Reflexe, charakteristisch für eine $c(8\times 2)$ -Struktur, die zur Verdeutlichung in Abbildung 4.3(b) als kleine schwarze Punkte schematisch dargestellt sind.

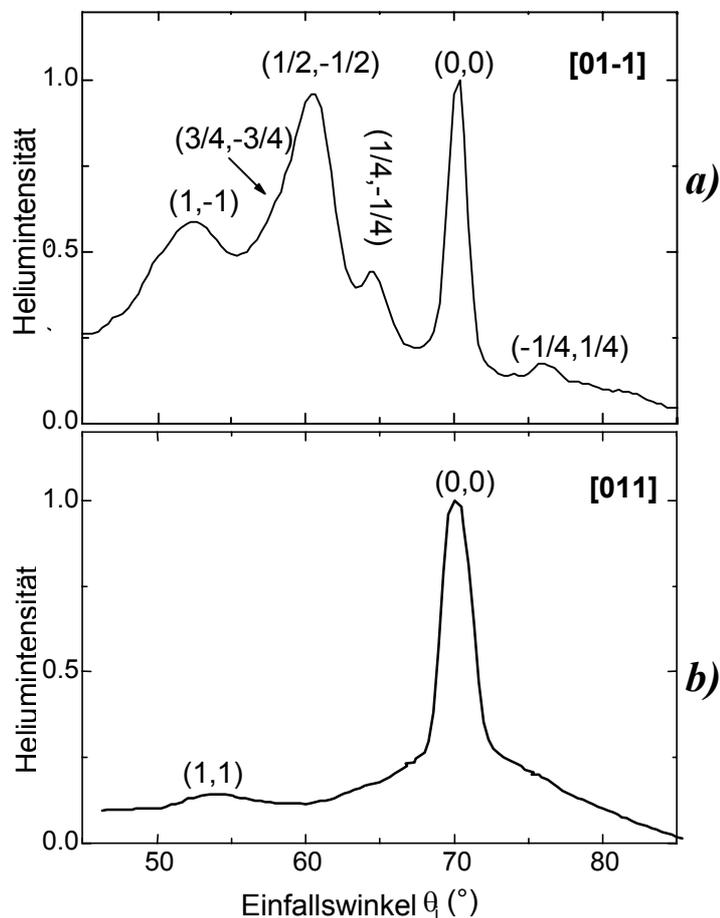


Abbildung 4.2: Helium-Beugungsspektren der reinen GaAs(100)-Oberfläche in **a)** $[0\ 1\ \bar{1}]$ -Richtung und **b)** $[0\ 1\ 1]$ -Richtung. Die Beugungsspektren sind jeweils auf die Intensität des gespiegelten Reflexes ($\theta_i = 70^\circ$) normiert. Die Energie der Heliumatome betrug 63 meV, der Ausfallswinkel $\theta_f = 70^\circ$.

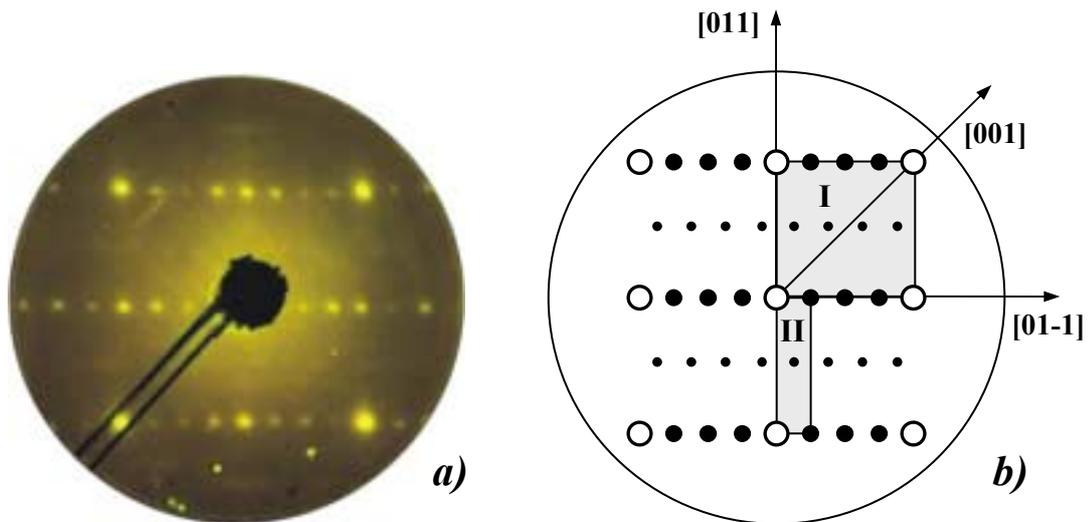


Abbildung 4.3: GaAs(100)-Oberfläche: **a)** LEED-Bild einer $c(8 \times 2)$ -Struktur mit **b)** einem Schema der Reflexe: die leeren Kreise (○) entsprechen der (1×1) -Struktur, die schwarzen Kreise (●) sind Reflexe einer (4×1) -Struktur und die schwarzen Punkte (•) sind Reflexe einer $c(8 \times 2)$ -Struktur; die haschierte Fläche **(I)** stellt die Einheitszelle der (1×1) -Struktur im reziproken Raum dar, die haschierte Fläche **(II)** die Einheitszelle der $c(8 \times 2)$ -Rekonstruktion.

4.2 Wachstum von Fe auf GaAs(100)

Es ist bekannt, dass Eisen epitaktisch auf der GaAs(100)-Oberfläche wächst [106-112]. Das epitaktische Wachstum wird von der geringen Fehlpassung ($\sim 1.4\%$) zwischen dem Fe-Gitter ($2a = 5.732 \text{ \AA}$) und dem GaAs-Gitter ($a = 5.654 \text{ \AA}$) begünstigt. Die strukturellen und magnetischen Eigenschaften des Systems Fe/GaAs(100) wurden umfassend untersucht [106-122]. Bisher nicht geklärt ist ob nichtmagnetische Lagen [108] oder eine halb magnetische $\text{Fe}_3\text{Ga}_{2-x}\text{As}_x$ -Schicht [111] an der Grenzfläche existieren. Zusätzlich wurde für Fe/GaAs(100) eine in der Ebene einachsige Komponente der magnetischen Anisotropie gefunden [108, 117], obwohl ein idealer bcc Fe(100) Film vierfache Symmetrie haben sollte. Es wurde gezeigt, dass zwischen 450 und 500 K epitaktische Wachstum von Fe auf der GaAs(100)-Oberfläche stattfindet [9, 20]. Jedoch wird in diesem Temperaturbereich eine Segregation der Ga und As Atome in die oberflächennahen Fe-Schichten nachgewiesen [107, 108]. Bei höheren Temperaturen reagiert das Fe mit dem Substrat und es bildet sich eine geordnete $\text{Fe}_3\text{Ga}_{2-x}\text{As}_x$ -Legierung [111].

Im Folgenden wird das Wachstumsverhalten von Fe in Abhängigkeit von der Bedeckung und der Wachstumstemperatur, sowie die thermische Stabilität und die strukturellen Eigenschaften der deponierten Fe-Filme beschrieben.

4.2.1 AES-Untersuchungen des Fe-Wachstums bei 300 K

Um den Einfluss der Fe-Bedeckung auf die Eigenschaften der hier untersuchten Schichtsysteme klären zu können, ist eine genaue Bestimmung der Schichtdicken erforderlich. Vor dem Einbau in die UHV-Kammer, wurde der Eisenverdampfer in einem separaten Pumpstand mittels einer Quarzwaage geeicht. Der Abstand zwischen Verdampfer und Quarz war dabei identisch mit dem Abstand zwischen Verdampfer und Probe in der UHV-Kammer. Da der Fe-Dampfstrahl in der Heliumstreuapparatur einen Winkel von 25° mit der Senkrechten zur Probe bildet, muss die Aufdampfrate dafür entsprechend dem Winkel von 25° korrigiert werden. Für alle Fe-Aufdampfexperimente wurde eine Aufdampfrate von $0.77 \text{ \AA}/\text{min}$ ($0.54 \text{ ML}/\text{min}$), wenn man von einem bcc Fe (100)-Film ($1.21 \times 10^{15} \text{ Atomen}/\text{cm}^2$) ausgeht, verwendet. Die Genauigkeit der Eichmethode liegt innerhalb $\pm 10\%$.

Abbildung 4.4 zeigt die peak-to-peak Amplituden der AES-Übergänge von Fe (704 eV), Ga (1070 eV) und As (1228 eV) als Funktion der Aufdampfzeit. Wie erwartet, steigt das Fe-Signal mit zunehmender Fe-Bedeckung an, während das Ga- und das Co-Signal aufgrund der Abschirmung durch die Fe-Schicht abnehmen. Die Tatsache, dass die peak-to-peak Amplituden des Ga-, bzw. des As-Übergangs während der Fe-Deposition nur bis auf einen konstanten Restwert abnehmen, kann auf eine Segregation der Ga und As Atome an die Oberfläche zurückgeführt werden. Es ist bekannt [107, 108], dass Ga- und As-Atome schon bei Raumtemperatur in die Fe-Schicht diffundieren und dass As-Atome an die Oberfläche des Fe-Films segregieren. Zur Abschätzung der Aufdampfrate wurde die mittlere freie Weglänge der Elektronen entsprechend der kinetischen Energie der AES-Übergänge von Fe (775 eV), Ga (1070 eV) und As(1228 eV) mittels der Gleichung (2.34) zu $\lambda_{\text{Fe}} = 1.18 \text{ nm}$, $\lambda_{\text{Ga}} = 1.46 \text{ nm}$ bzw. $\lambda_{\text{As}} = 1.56 \text{ nm}$ berechnet. Wird in Abbildung 4.3 das Fe-Signal anhand der Gleichung (2.33) und das Ga- bzw. das As-Signal anhand der Gleichung (2.32) angepasst (gepunktete Linien), so erhält man folgende Werte für die Fe-Aufdampfrate: $0.22 \text{ ML}/\text{min}$ (aus der Ga-Kurve), $0.16 \text{ ML}/\text{min}$ (aus der As-Kurve) und $0.38 \text{ ML}/\text{min}$ (aus der Fe-Kurve). Aufgrund der

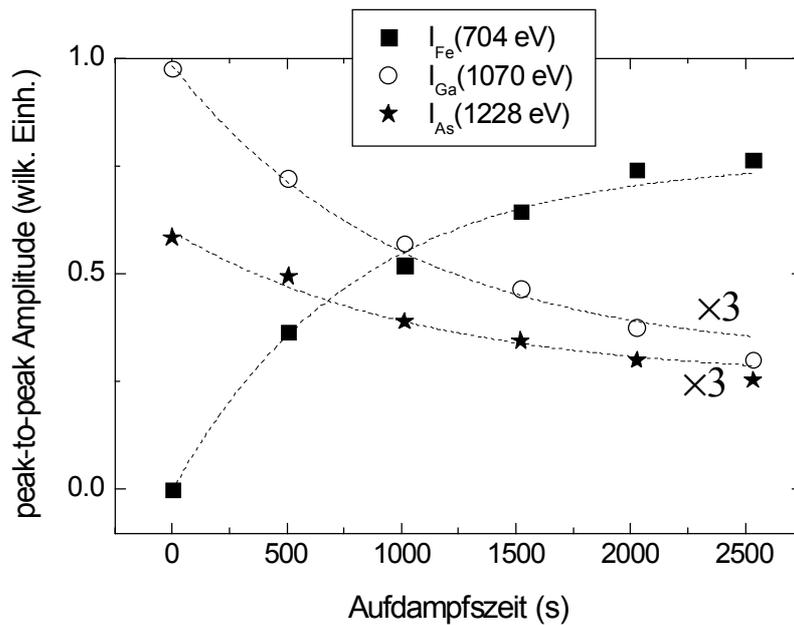


Abbildung 4.4: Peak-to-peak Amplituden der AES-Übergänge von Fe bei 704 eV (■), von Ga bei 1070 eV (○) und von As bei 1228 eV (★), als Funktion der Aufdampfzeit von Fe auf der GaAs(100)-Fläche bei 300 K. Die Aufdampftrate betrug 0.54 ML/ min.

Ga- und As-Segregation ist ebenfalls zu erwarten, dass die Aufdampftrate kleiner ist als der aus der Anpassung an die Fe-Daten ermittelte Wert (0.38 ML/min). Der große Unterschied zwischen der mit Quarzwaage bestimmten Aufdampftrate (0.54 ML/min) und der mittels AES bestimmten (0.22 ML/min (Ga), 0.16 ML/min (As) und 0.38 ML/min (Fe)) zeigt, dass eine Segregation von Ga und As in den Fe-Film stattfinden muss und dass Fe nicht lagenweise aufwächst. Im Folgenden wird die Schichtdicke der Fe-Filme aus der mittels Quarzwaageneichung bestimmten Aufdampftrate von 0,54 ML/min ermittelt.

4.2.2 Thermische Stabilität der Fe-Filme

Die thermische Stabilität dünner Fe-Filme auf der GaAs(100)-Fläche wurde mittels AES untersucht. Zu diesem Zweck wurden 10 ML Fe bei Raumtemperatur aufgedampft und danach mit einer Rate von ~ 1 K/s geheizt. In Abbildung 4.5 sind die peak-to-peak Amplituden der AES-Übergänge von Fe (704 eV), Ga(1070 eV) und As(1228 eV) als Funktion der Proben temperatur gezeigt. Man sieht, dass die peak-to-peak Amplituden von Fe(704 eV) und As(1228 eV) bis ~ 550 K innerhalb der experimentellen Genauigkeit konstant bleiben. Dies deutet auf einen in diesem Temperaturbereich stabili-

len Fe-Film hin. Der leichte, aber kontinuierliche Anstieg der peak-to-peak Amplitude des Ga(1070 eV)-Übergangs weist jedoch auf eine merkliche Anreicherung von Gallium in der Fe-Schicht mit steigender Temperatur hin. Nach CHAMBERS et al. [107] nehmen die Ga-Atome fcc-freie Plätze in dem Gitter des bcc Fe(100)-Films ein, so dass die Epitaxie weiter erhalten bleibt. Oberhalb von 550 K nimmt die AES-Intensität des Fe(704 eV)-Übergangs ab, während die AES-Intensität des As(1228 eV)-Übergangs zunimmt. Dies deutet auf eine Segregation der As-Atome an die Oberfläche hin. Ab 600 K fällt die AES-Intensität des Fe(704 eV)-Übergangs drastisch ab, wodurch eine starke Vermischung der Fe-Schicht mit dem Substrat angezeigt wird.

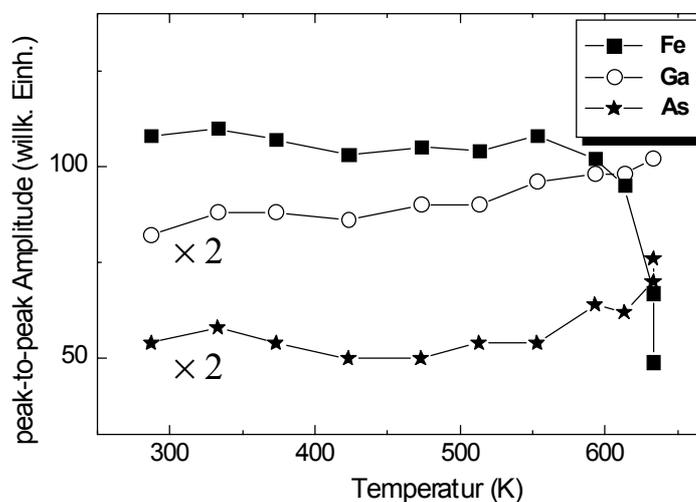


Abbildung 4.5: Peak-to-peak Amplituden der AES-Übergänge von Fe bei 704 eV (■), von Ga bei 1070 eV (●) und von As bei 1228 eV (★), aufgenommen während des Anlassens eines 10 ML-dicken Fe-Films, als Funktion der Temperatur. Die Heizrate betrug 1 K/s.

Abbildung 4.6 zeigt den Verlauf der gespiegelten Heliumintensität während des Anlassens und dem anschließenden Abkühlen eines 10 ML dicken Fe-Films auf der GaAs(100)-Fläche. Die Intensität bleibt bis ~ 420 K konstant, nimmt dann leicht ab und geht durch ein Minimum bei ~ 500 K. Sie steigt danach wieder an, anfangs leicht bis ~ 550 K und dann stark bis ~ 580 K. Die Intensität wird im Temperaturbereich zwischen 550 K und 580 K um ein Zweifaches erhöht und deutet somit auf einen strukturellen Phasenübergang hin. Die Intensität steigt mit zunehmender Temperatur weiterhin an und erreicht ein Maximum bei ~ 630 K. Während des Abkühlens nimmt die gespiegelte Heliumintensität gemäß dem Debye-Waller Effekt (Kap. 2.1.5) stark zu und erreicht

schon bei 400 K einen Wert von 3.5 gegenüber dem bei 300 K gemessenen. Während des Anlassens können folgende Effekte die Ausgangsintensität in unterschiedlicher Weise verändern:

- der Debye-Waller Effekt, der zu ihrer Abnahme mit zunehmender Temperatur führt;
- die Oberflächendiffusion innerhalb der Fe-Schicht, die meistens zur Glättung der Oberfläche führt und infolgedessen einen Anstieg der gespiegelten Heliumintensität hervorruft;
- die Segregation von Ga und As an die Oberfläche, die je nach Oberflächenstruktur ebenfalls zur Glättung oder zur Erhöhung der Rauigkeit führen kann.

Der Verlauf der gespiegelten Intensität ergibt sich demnach aus dem Zusammenwirken dieser drei Effekte. Der nahezu konstante Verlauf während des Anlassens bis 550 K deutet auf eine Kompensation des Debye-Waller Effektes durch die Ordnungsprozesse hin. Zwischen 500 und 550 K werden die Effekte der Oberflächendiffusion deutlicher, so dass die Intensität leicht zunimmt. Der drastische Anstieg oberhalb von 550 K lässt sich durch die Segregation von Ga- und vor allem As-Atome an die Oberfläche der Fe-Schicht, die zur Entstehung einer neuen geordneten Phase führt erklären. Dies führt bei 630 K zur Bildung einer glatten und wohlgeordneten Oberflächenlegierung, deren genaue Zusammensetzung in dieser Arbeit nicht bestimmt werden konnte. Aus diesem Grunde wird die chemische Formel dieser Legierung, wie in Ref. [111] mit $\text{Fe}_3\text{Ga}_{2-x}\text{As}_x$ angegeben.

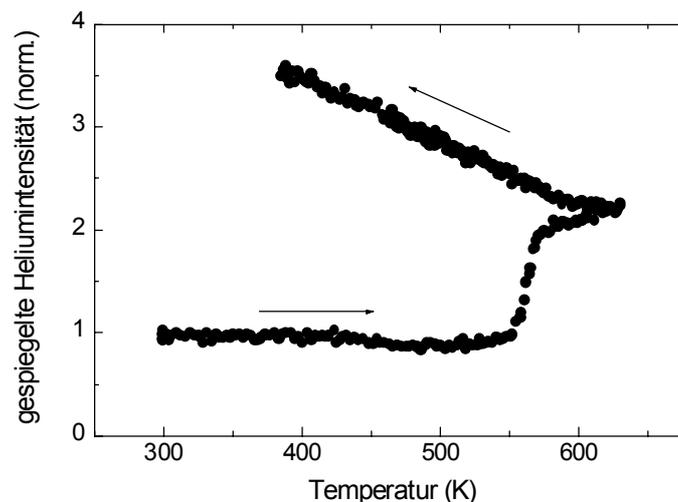


Abbildung 4.6: Die gespiegelte Heliumintensität, aufgenommen während des Anlassens bzw. des Abkühlens eines 10 ML dicken Fe-Films als Funktion der Temperatur. Die Intensität ist auf den Ausgangswert normiert. Die Heizrate betrug ~ 1 K/s.

4.2.3 Wachstum und Struktur von Fe auf GaAs(100)

Für das kontrollierte Wachstum der dünnen Fe-Filme interessieren uns unter anderem die Dynamik des Wachstums der Filme, die thermische Stabilität, die innere Struktur und die Grenzflächenstruktur. Der Überblick über die thermische Stabilität zwischen 300 und 630 K im vorigen Abschnitt hat gezeigt, dass die Morphologie und die chemische Zusammensetzung der Fe-Filme stark von der Temperatur abhängig sind. Im folgenden werden das Wachstum bzw. die Struktur der Fe-Filme bei vier ausgesuchten Temperaturen des Substrats mittels TEAS und LEED untersucht, und zwar bei 86 K, um die Segregationseffekte so stark wie möglich zu reduzieren, bei 300 K und 475 K, um eine hohe Mobilität der Fe-Atome zu bewirken jedoch die Ga- und As-Segregation noch gering zu halten, und bei 630 K, wo für 10 ML Fe ein Maximum der gespiegelten Heliumintensität beobachtet wurde. Abbildung 4.7 zeigt den Verlauf der gespiegelten Heliumintensität $I(\theta)$, normiert auf die Intensität $I(0)$ der reinen GaAs(100)-Fläche, während der Fe-Deposition bei 86, 300 und 475 K. Man sieht, dass die Intensität deutlich mit der Temperatur und der Bedeckung variiert. In den folgenden drei Abschnitten werden das Wachstumsverhalten und die Struktur für die drei oben erwähnten Temperaturen im Detail analysiert und diskutiert.

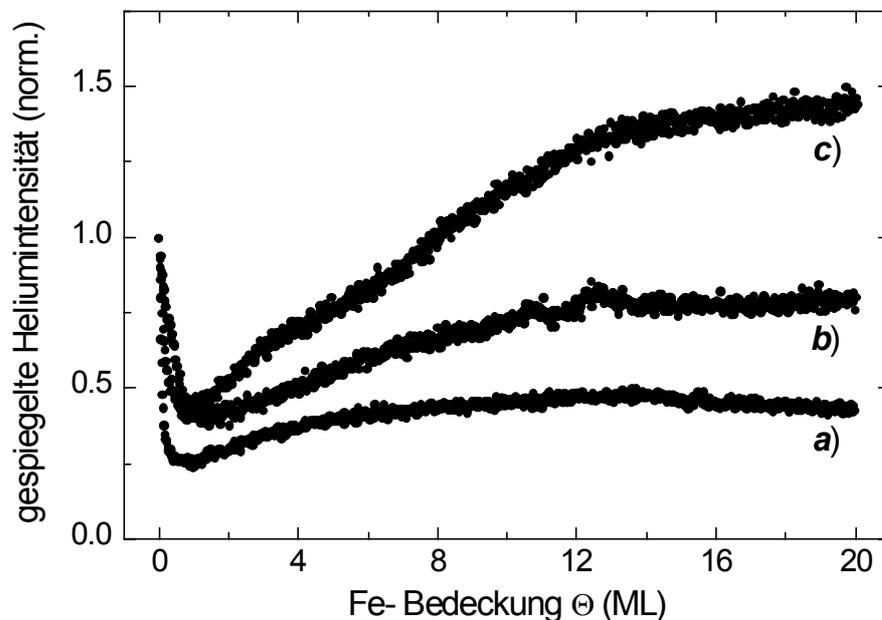


Abbildung 4.7: Normierte gespiegelte Heliumintensität, aufgenommen während des Aufdampfens von Fe auf die GaAs(100)-Oberfläche, als Funktion der Bedeckung bei Probertemperaturen von: *a)* 86 K, *b)* 300 K und *c)* 475 K.

4.2.3.1 Fe-Wachstum bei 86 K:

Kurve (a) in Abbildung 4.6 zeigt in der Anfangsphase der Fe-Deposition bei 86 K eine starke Abnahme der gespiegelten Heliumintensität bis zu einer Bedeckung von etwa 1 ML. Das Substrat trägt bei dieser Bedeckung nicht mehr zum reflektierten Strahl bei und die Intensität erreicht ein Minimum. Bei dieser niedrigen Temperatur sind die Fe-Atome nahezu immobil, so dass die Wahrscheinlichkeit, 2D-Inseln in der Anfangsphase der Deposition zu bilden, sehr gering ist. Der kohärente Teil ist demnach vernachlässigbar und die gespiegelte Heliumintensität wird fast ausschließlich durch die diffuse Streuung an den einzelnen Adatomen bestimmt. In diesem Fall kann das Wachstum durch eine Zufallsverteilung der Adatome auf Gitterplätzen beschrieben werden, und die Abhängigkeit der gespiegelten Heliumintensität von der Eisenbedeckung wird, unterhalb einer Monolage, durch die Gleichung (2.14) gegeben. Unter Berücksichtigung des Untergrundsignals B , induziert durch diffuse Streuung und den Detektoruntergrund, schreibt sich diese Gleichung als

$$\frac{I(\theta) - B}{I(0) - B} = (1 - \theta)^{\Sigma \cdot n_s} \quad (4.1)$$

wobei Σ der diffuse Streuquerschnitt pro Adatom ist, n_s bezeichnet die Anzahl der Substratome pro Flächeneinheit und B stellt das durch diffuse Streuung und Detektoruntergrund induzierte Signal dar. Werden die Depositionskurven aller der bei 86 K durchgeführten Aufdampfexperimente anhand der Gleichung (4.1) beschrieben, so erhält man für den effektiven diffusen Streuquerschnitt einen Mittelwert $\Sigma = 90 (\pm 9) \text{ \AA}^2$. Der Messfehler ergibt sich hier hauptsächlich aus den zeitlichen Schwankungen der Aufdampftrate, aber auch die nicht vollständig erreichbare Reproduzierbarkeit der Oberflächenmorphologie des Substrates kann dazu beitragen. Der relativ große diffuse Streuquerschnitt deutet auf die Bildung einzelner Adatome in der Anfangsphase der Deposition hin. Mit zunehmender Bedeckung wachsen diese zu 3D-Inseln zusammen. Oberhalb einer Monolage jedoch bilden sich mit zunehmender Bedeckung auch kohärent streuende Terrassen, die dort zu dem in Abbildung 4.6 beobachteten Anstieg der gespiegelten Intensität führen. Sie erreicht ein schwach ausgeprägtes Maximum bei 12-13 ML und nimmt danach nur sehr wenig ab. Dieser fast konstante Bereich lässt sich durch eine so genannte Stufenwanderung erklären oder, anders ausgedrückt, die einfallenden

Fe-Atome besetzen bevorzugt Stufenpositionen, so dass die Stufendichte und dementsprechend die diffuse Streuung nahezu unverändert bleiben. Allerdings ist die gespiegelte Heliumintensität auch bei höheren Bedeckungen gering und erreicht höchstens einen Wert, der immer noch viermal kleiner ist als der für die reine GaAs(100)-Oberfläche. Dies deutet auf eine ungeordnete Oberfläche der Fe-Schicht hin, so dass weder mit LEED noch mittels Heliumstreuung ein Beugungsmuster zu beobachten ist.

4.2.3.2 Fe-Wachstum bei 300 K:

Kurve (b) in Abbildung 4.7 zeigt den Verlauf der gespiegelten Heliumintensität als Funktion der Fe-Bedeckung bei 300 K. Qualitativ gleicht er dem bei 86 K, die Intensität nimmt jedoch mit der Bedeckung schneller zu und erreicht hier einen höheren Maximalwert als bei 86 K. Auch hier kann die Gleichung (4.1) in guter Annäherung verwendet werden, um das Verhalten der gespiegelten Heliumintensität unterhalb einer Monolage zu beschreiben, auch wenn die Fe-Atome bei dieser Temperatur schon eine gewisse Mobilität besitzen und die Wechselwirkung zwischen ihnen nicht mehr ganz vernachlässigbar ist. Wird über alle bei 300 K aufgenommenen Aufdampfkurven gemittelt,

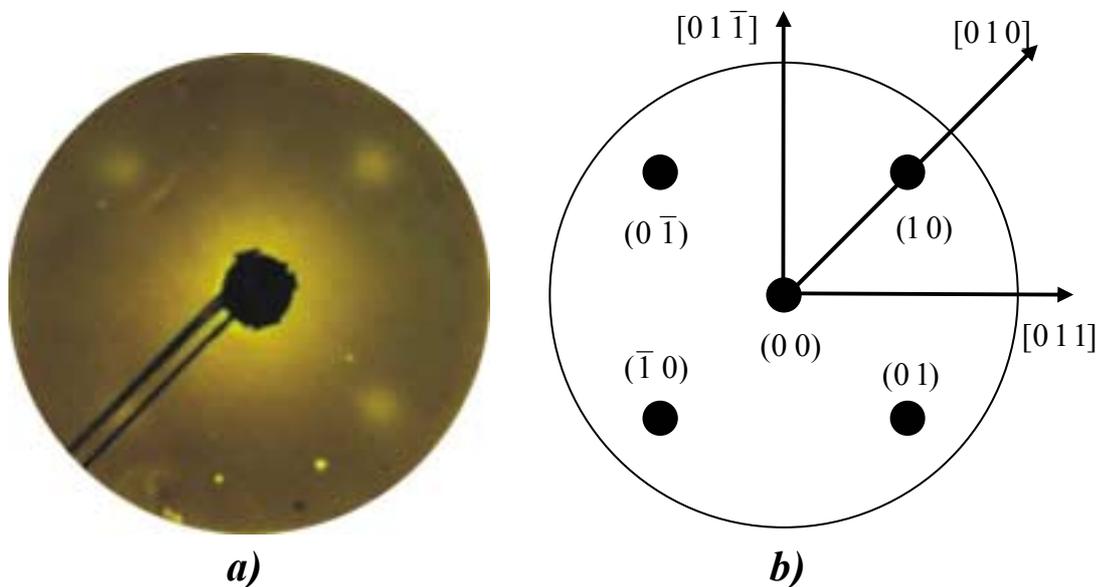


Abbildung 4.8: a) LEED- Bild eines 20 ML dicken Fe- Films gewachsen auf der GaAs(100)-Fläche bei 300 K, aufgenommen bei einer primären Energie von 48 eV, und b) das entsprechende Schema der Reflexe. Das LEED-Bild kann durch eine bcc Fe(100)-Struktur erklärt werden.

telt, so erhält man einen Wert $\Sigma = 43 (\pm 4) \text{ \AA}^2$ für den diffusen Streuquerschnitt, der also nur halb so groß ist wie bei 86 K. Da die Bedeckungsrate unabhängig von der Proben-temperatur ist, lässt sich der Unterschied folgendermaßen erklären: die bei 300 K höhere Mobilität der Fe-Atome kann schon bei sehr niedrigen Bedeckungen zu einer Keimbildung für 2D-Inseln mit Überlappung der Streuquerschnitte der einzelnen Fe-Atome führen – je höher der Überlappungsgrad, desto kleiner ist der effektive Streuquerschnitt dieser Keime pro Atom. Dieses Verhalten ist aus der Streuung in der Gasphase bekannt, wo der Streuquerschnitt eines Dimmers wesentlich kleiner ist als der zweier Monomere [123].

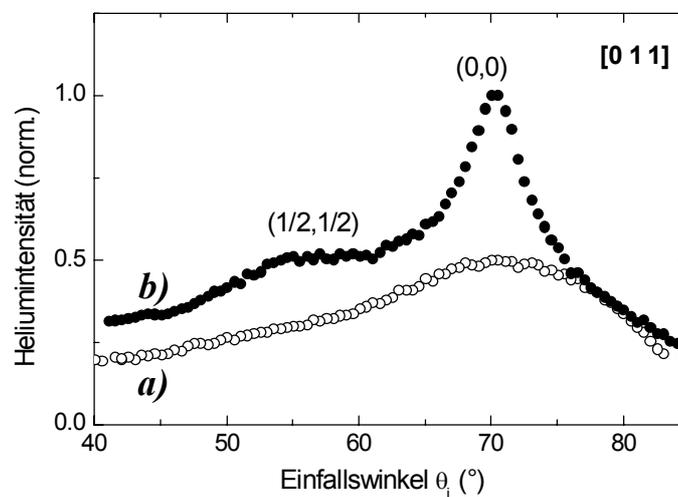


Abbildung 4.9: Helium- Beugungsprofile eines 20 ML dicken Fe-Films, gewachsen bei 300 K (■) und bei 475 K (○). Beide Spektren wurden in $[0\ 1\ 1]$ -Richtung gemessen. Die Energie der Heliumatome betrug 63 meV.

Trotz der gegenüber 86 K erhöhten Mobilität der Fe-Atome bleibt die diffus elastische Streuung noch bedeutend. Sie überlagert den kohärenten Teil der Streuung sowohl bei einer Schichtdicken von 5 ML als auch bei 10 ML. Für diese zwei Schichtdicken wurden weder mit LEED noch mittels Heliumstreuung Beugungsstrukturen beobachtet. Erst die dritte untersuchte Fe-Schicht, mit einer Dicke von 20 ML Fe, zeigt ein erkennbares LEED-Bild, aufgenommen bei einer primären Elektronenenergie von 48 eV, mit einer (1×1) -Struktur (siehe Abb. 4.8). Die beobachtete Struktur entspricht einer α -bcc Fe(100)-Oberfläche, mit einer Gitterkonstanten von $2.9 \pm 0.1 \text{ \AA}$. Es gibt anscheinend eine gewisse Schichtdicke, bei der die Streuung überwiegend kohärent ist und die

Beugungsreflexe sichtbar werden. Die diffuse elastische Streuung macht sich immer noch bemerkbar durch die mit LEED beobachteten breiten Beugungsreflexe. Dies weist auf eine immer noch ziemlich raue Oberfläche mit einer hohen Stufendichte und kleinen Terrassen hin. Das in Abbildung 4.9 (Kurve (a)) dargestellte Helium-Beugungsprofil, gemessen in $[0\ 1\ 1]$ -Richtung bestätigt diese Annahme: Man erkennt keine Beugungsreflexe, sondern nur einen breiten gespiegelten $(0,0)$ -Reflex und ein relativ hohes Untergrundsignal.

4.2.3.3 Fe-Wachstum bei 475 K:

Kurve (c) in Abbildung 4.7 zeigt den Verlauf der gespiegelten Heliumintensität während der Fe-Deposition bei 475 K. Auch in diesem Fall entsteht ein Minimum bei etwa 1 ML, jedoch gefolgt von einem sehr starken Anstieg bis zu 13 ML auf einen nahezu konstanten Wert bei 1.43. Diese relativ hohe Intensität ist auf eine besser geordnete Oberfläche mit breiteren Terrassen und weniger Stufen und Defekten als bei niedrigen Temperaturen zurückzuführen. Ein Lage-für-Lage Wachstum ist auch hier auszuschließen, da keine Oszillationen der gespiegelten Intensität mit steigender Bedeckung beobachtet werden. Da bei dieser Temperatur der Abfall der Intensität in der Anfangsphase des Wachstums eher linear ist, kann die Gleichung (4.1) nicht mehr angewendet werden kann, um das Verhalten der gespiegelten Heliumintensität im Submonolagenbereich zu erklären. Demzufolge kann der diffuse Streuquerschnitt damit hier nicht mehr bestimmt werden.

Abbildung 4.10(a) zeigt das LEED-Bild einer bei 475 K gewachsenen, 20 ML dicken Fe-Schicht bei 35 eV. Das Beugungsmuster entspricht einer $c(2\times 2)$ -Struktur gegenüber einem unrekonstruierten bcc Fe(100)-Film. Bei Schichtdicken von 5 ML, sowie 10 ML Fe wird eine ähnliche Struktur gefunden, allerdings mit weniger intensiven Beugungsreflexen. In Abbildung 4.10(b) ist zur Verdeutlichung ein Schema der Reflexe einer $c(2\times 2)$ -Struktur dargestellt. Der $(1/2, 1/2)$ -Reflex in $[011]$ -Richtung ist auch mittels Heliumstreuung in Form einer breiten Schulter sichtbar (siehe Abbildung 4.9- (b)).

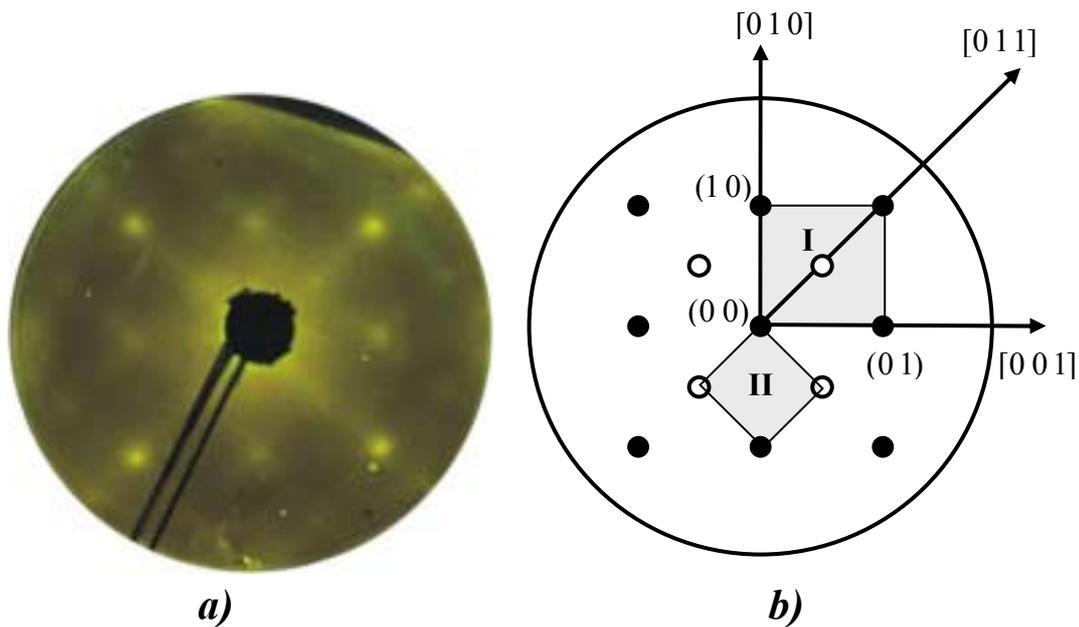


Abbildung 4.10: *a)* LEED- Bild eines 20 ML dicken Fe-Films gewachsen auf der GaAs(100)-Oberfläche bei 475 K, aufgenommen bei einer Elektronenenergie von 85 eV und *b)* die entsprechenden Reflexe im reziproken Raum. Die vollen Kreise (●) entsprechen einer bcc Fe(100)-Oberfläche, während leeren Kreise (○) die zusätzlichen Reflexe einer $c(2 \times 2)$ -Überstruktur darstellen. Die haschierten Flächen stellen die Einheitszelle der (1×1) -Struktur (I) bzw. die Einheitszelle der $c(2 \times 2)$ -Struktur (II) im reziproken Raum dar.

4.3 Präparation von Fe/ Ga_2O_3 / $\text{Fe}_3\text{Ga}_{2-x}\text{As}_x$ – Multischichten

4.3.1 Wachstum und Charakterisierung einer $\text{Fe}_3\text{Ga}_{2-x}\text{As}_x$ – Legierung

Wie schon in Abschnitt 4.2.2 beschrieben, wurden in der vorliegenden Arbeit 10 ML Eisen bei Raumtemperatur aufgedampft und mit ~ 1 K/s geheizt. AES Messungen weisen auf eine Interdiffusion zwischen den Fe-Atomen und den Ga- bzw. den As-Atomen aus dem Substrat hin. (siehe Abb. 4.5).

Wird die gespiegelte Heliumintensität als Funktion der Temperatur verfolgt (siehe Abb.4.6), so wird ein schneller Anstieg ab 550 K bis zu einem Plateau ab 580 bis 630 K beobachtet. Dieses Plateau ist ein Indiz für eine relativ zum Bereich unter 550 K glatte und wohlgeordnete Oberfläche. Die Struktur der bei 630 K für 15 min angelassener Oberfläche wurde nach Abkühlen bei Raumtemperatur mittels LEED und TEAS untersucht. Abbildung 4.11(a) zeigt das entsprechende LEED-Bild (links),

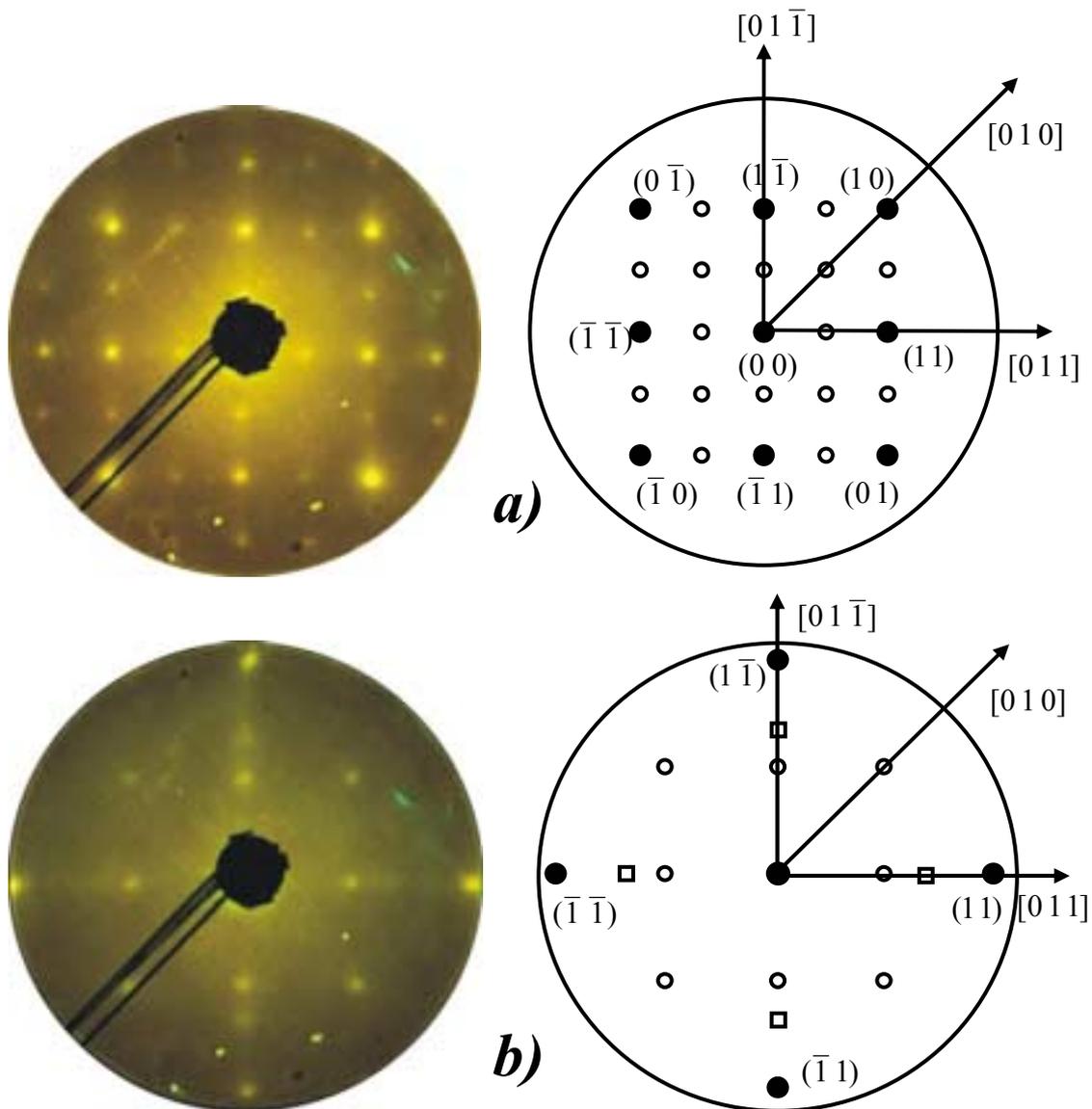


Abbildung 4.11: LEED-Bilder eines bei 630 K ausgeheilten, 10 ML dicken Fe-Films, aufgenommen *a*) 44 eV bzw. *b*) 18 eV. Jeweils rechts von den LEED-Bildern sind die entsprechenden Reflexmuster schematisch dargestellt, wobei die vollen Kreise (●) einer unrekonstruierten GaAs(100)-Oberfläche entsprechen, die leeren Kreise (○) stellen zusätzliche Reflexe entsprechend einer $p(2\times 2)$ -Überstruktur dar und die Quadrate (□) repräsentieren Reflexe entsprechend einer inkommensurablen Überstruktur.

aufgenommen bei einer Energie von 44 eV. Die Reflexe entsprechen einer (2×2) -Überstruktur gegenüber einer unrekonstruierten GaAs(100)-Oberfläche. Diese Struktur entspricht nach DEPUTIER et al. [124] einer Fe₃Ga_{2-x}As_x-Legierung, deren Oberfläche ebener ist als die des reinen Eisens. Außer dieser ternären Phase ist auch die binäre Pha-

se Fe_2As beobachtet worden, die ebenfalls epitaktisch auf der $\text{GaAs}(100)$ -Fläche aufwachsen soll [124, 125]. Die Anwesenheit einer zweiten Phase wird von dem in Abbildung 4.11(b) dargestellten LEED-Bild, aufgenommen bei einer Energie von 18 eV, bestätigt. Dieses zeigt zusätzliche schwache Beugungsreflexe in $[0\ 1\ 1]$ -Richtung und noch schwächer in $[0\ 1\ \bar{1}]$ -Richtung. Da diese weder bei höheren Elektronenenergien mit LEED, noch in den Helium-Beugungsprofilen aufgelöst werden konnten, ist es schwierig, eine Aussage über die Struktur dieser Phase zu machen. Es ist anzunehmen, dass es sich hier ebenfalls um die Fe_2As -Phase handeln könnte.

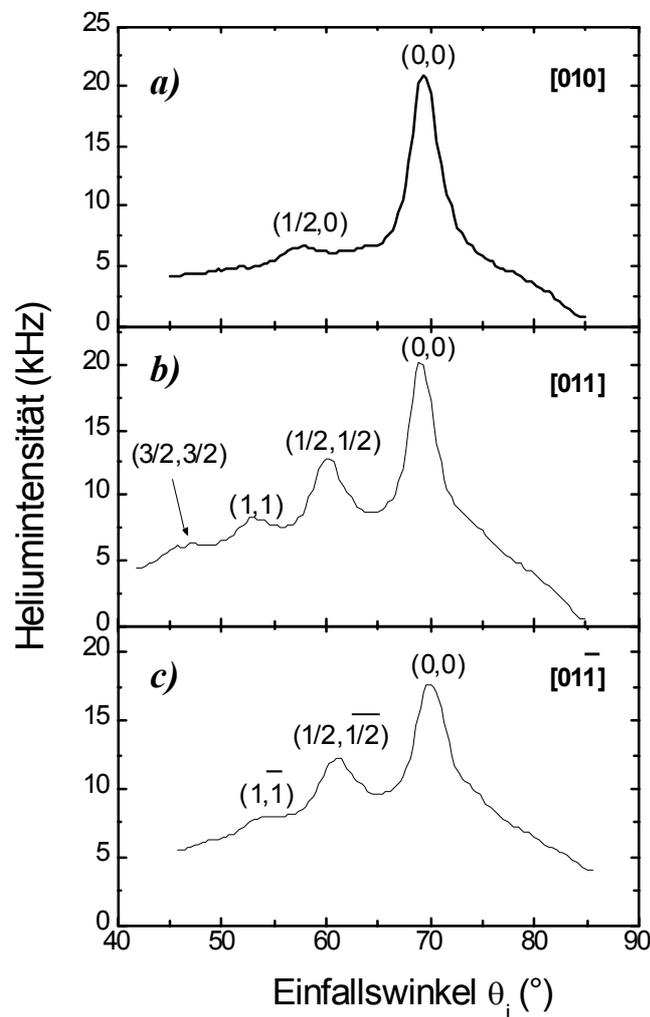


Abbildung 4.12: Helium-Beugungsspektren eines bei 630 K ausgeheilten 10 ML dicken Fe-Films, gemessen in **a)** $[0\ 1\ \bar{1}]$ -, **b)** $[0\ 1\ 1]$ - und **c)** $[0\ 1\ 0]$ -Richtung, bei einer Energie von $E = 63$ meV und konstantem Ausfallswinkel $\theta_0 = 70^\circ$.

In Abbildung 4.12 werden die in **a)** $[0\ 1\ 0]$ -, in **b)** $[0\ 1\ 1]$ -, und in **c)** $[0\ 1\ \bar{1}]$ -Richtung gemessenen Helium-Beugungsprofile dargestellt. Diese stimmen mit den im LEED-Bild beobachteten Reflexen überein, können aber wegen der unzureichenden Energie- und Winkelauflösung die Anwesenheit einer zweiten Phase an der Oberfläche nicht bestätigen. Die Intensität der Beugungsreflexe höherer Ordnung ist ein Maß für die Korrugation in der entsprechenden Richtung. Demnach ist die relativ hohe Intensität der $(1/2, 1/2)$ und $(1/2, \bar{1}/2)$ -Beugungsreflexe, deren Amplitude $\sim 40\%$ der gespiegelten Heliumintensität beträgt, ein Hinweis auf die ausgeprägte Korrugation in $[0\ 1\ 1]$ -, bzw. in $[0\ 1\ \bar{1}]$ -Richtung. Die relativ geringe Intensität des $(1/2, 0)$ -Beugungsreflexes, deren Amplitude $\sim 8\%$ der gespiegelten Heliumintensität beträgt, deutet hingegen auf eine nur wenig korrigierte Oberfläche in $[0\ 1\ 0]$ -Richtung hin.

Die Oberfläche zeigt dieselben Eigenschaften wenn man Eisen direkt bei 630 K aufdampft und dann bis auf Raumtemperatur abkühlt. In diesem Fall findet die Mischung bzw. die Reaktion zwischen dem aufgedampften Fe und dem Substrat schon während der Deposition statt. Auch der Einfluss der aufgedampften Eisenmenge auf die Struktureigenschaften der Oberflächenlegierung ist hier kurz untersucht worden. Anschließend wurde das oben beschriebene Anlassexperiment auch für Fe-Bedeckungen von 5 bzw. 20 ML wiederholt. Die als Funktion der Temperatur aufgenommene gespiegelte Heliumintensität (hier nicht abgebildet) zeigt für 5 ML ein Maximum bei ~ 610 K, während für den 20 ML dicken Fe-Film das Maximum erst bei ~ 730 K zu beobachten ist. Werden die Proben gleich nach Erreichen des Maximums abgekühlt, so zeigen die LEED-Aufnahmen (bei einer Energie von 44 eV) von 5 ML Fe (hier nicht abgebildet) keinen wesentlichen Unterschied gegenüber denjenigen von einer bei 630 K angelassenen 10 ML dicken Fe-Schicht, während bei 20 ML Eisen die beobachteten Reflexe deutlich schwächer und die Reflexe halber Ordnung kaum noch sichtbar sind (siehe Abb. 4.13(a)). In Abbildung 4.13(b) wird auch ein bei 36 eV aufgenommenes LEED-Bild der 20 ML dicken Fe-Schicht, angelassenen bei 730 K, dargestellt. Dieses zeigt eine ringförmige Struktur, die auf die Existenz zufällig angeordneter hexagonaler Domänen zurückzuführen ist. Aus den zwei LEED-Bildern in Abbildung 4.13 kann man auf eine Koexistenz von Domänen mit kubischer und hexagonaler Struktur schließen.

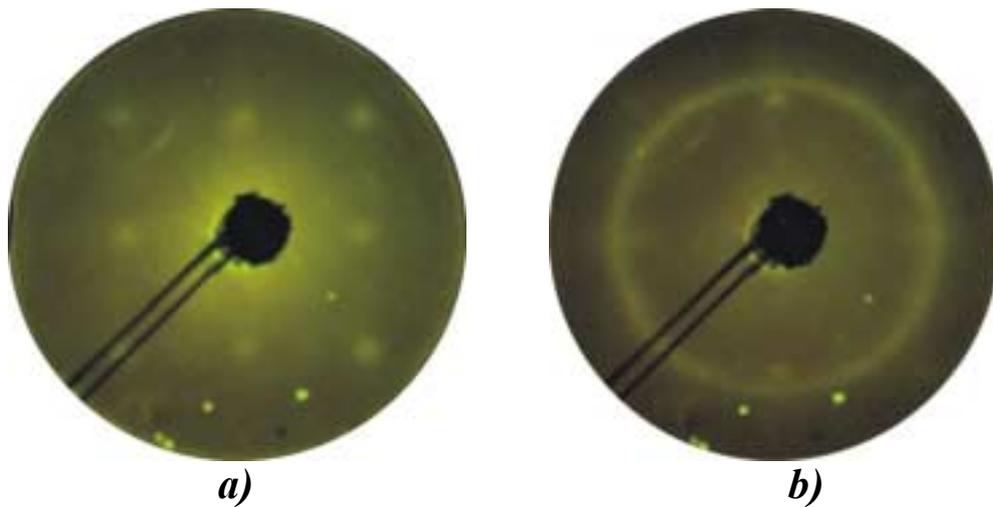


Abbildung 4.13: LEED- Bilder eines bei 630 K angelassenen 20 ML dicken Fe-Films, gemessen bei 300 K mit einer Energie von *a)* 44 eV und *b)* 36 eV.

4.3.2 Herstellung des Schichtsystems $\text{Ga}_2\text{O}_3/\text{Fe}_3\text{Ga}_{2-x}\text{As}_x/\text{GaAs}(100)$

Da die Oberfläche der bei 630 K ausgeheilten, 10 ML dicken Fe-Schicht die glätteste aller hier untersuchten ist, wurde zunächst diese als Substrat verwendet, um darauf eine geordnete Galliumoxidschicht zu präparieren. Die Galliumoxidschicht wurde folgendermaßen präpariert: Zunächst wurde Ga bei einer Temperatur von 86 K aufgedampft, dann O_2 in die UHV-Kammer eingelassen und anschließend die oxidierte Galliumschicht angelassen. Die drei Schritte werden in den folgenden Abschnitten mittels AES, LEED und TEAS charakterisiert.

4.3.2.1 Ga-Deposition bei 86 K

Um so tief wie möglich unter der Schmelztemperatur des reinen Galliums (302 K) zu bleiben, wurde die Probe vor der Deposition bis 86 K abgekühlt. Abbildung 4.14 zeigt den Verlauf der gespiegelten Heliumintensität als Funktion der Ga-Bedeckung während des Aufdampfens bei 86 K. Die Kurve zeigt eine einzige Oszillation, geht durch ein flaches Minimum bei 2.5 ML und steigt mit zunehmender Bedeckung leicht an. Im Folgenden wird als 1 ML Ga die in der Zeitspanne zwischen Beginn der Deposition und Erreichen des Maximum in der He-Wachstumskurve deponierte Menge definiert. Aus thermodynamischer Sicht deutet dieses Verhalten auf ein STRANSKI-KRSTANOV Wachstum hin, d.h. die erste Lage wächst zweidimensional auf, während weiteres Be-

dampfen der Probe zur Bildung von 3D-Inseln führt. Mit dieser Annahme kann man das Maximum einer kompletten Monolage zuordnen und somit die Aufdampfrate bestimmen. Gemäß dieser Eichung beträgt die Dicke der insgesamt aufgedampften Ga-Schicht ~ 7.5 ML. Die mit der Bedeckung steigende gespiegelte Heliumintensität deutet auf die Anwesenheit kohärent streuender Terrassen hin und zeigt, dass das Gallium geordnet wächst. Allerdings ist auch hier, wegen der 3D-Inselbildung, aber auch wegen des relativ hohen Untergrundsignals, der diffus reflektierte Teil des Heliumstrahls so dominant, dass weder mittels TEAS noch mittels LEED Beugungsreflexe aufgelöst werden können.

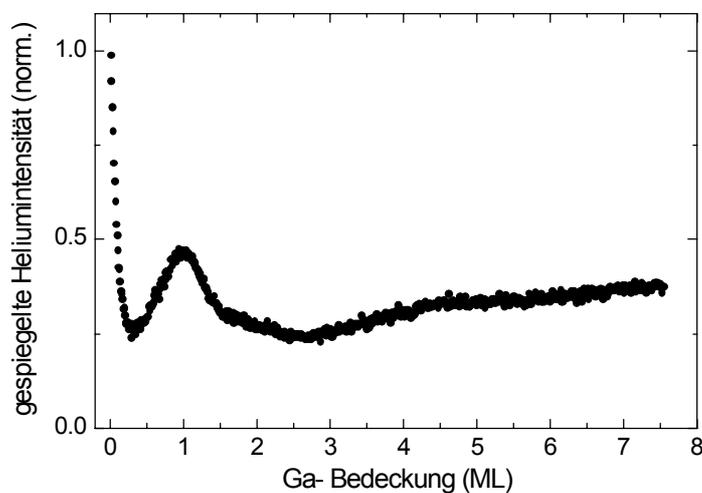


Abbildung 4.14: Die normierte gespiegelte Heliumintensität, gemessen als Funktion der Bedeckung, während der Deposition von Gallium bei 86 K auf einen bei 630 K angelassenen 10 ML dicken Fe-Film.

4.3.2.2 Oxidation der Ga-Schicht

Nach dem Aufdampfen der 7.5 ML dicken Ga-Schicht bei 86 K wurde diese bei 290 K einer Sauerstoffatmosphäre von 1×10^{-6} mbar ausgesetzt und die Sauerstoffbedeckung mittels AES untersucht. In Abbildung 4.15 ist das peak-to-peak Verhältnis des AES-Übergangs von O (510 eV) zum AES-Übergang von Ga (1070 eV) als Funktion der Sauerstoffbegasung aufgetragen. Man erkennt einen stetigen Anstieg, wobei erst bei etwa 4500 L eine Sättigung erreicht wird. Dies lässt auf eine sehr niedrige Haftwahrscheinlichkeit für O₂ bei 290 K schließen. Das maximale Amplitudenverhältnis beträgt in der Sättigung 0.7.

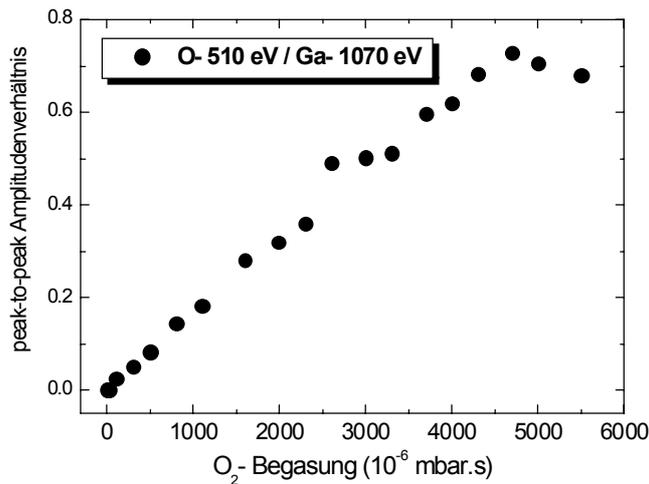


Abbildung 4.15: Verhältnis der peak-to-peak Amplituden der AES-Übergänge von O (510 eV) und Ga (1070 eV), aufgenommen als Funktion der Sauerstoffbegasung, während der Oxidation einer 7.5 ML- dicken Ga-Schicht bei 290 K.

Die Oxidation der Ga-Schicht ist auch mittels Heliumstreuung untersucht worden (Abbildung 4.16). Die während der Sauerstoffbegasung registrierte Heliumintensität fällt bis etwa 200 L steil ab und verschwindet danach langsam im Untergrund. Mit zunehmender Bedeckung wird die Oberfläche also ungeordnet und die Oxidschicht ist nach der Sättigung mit Sauerstoff amorph.

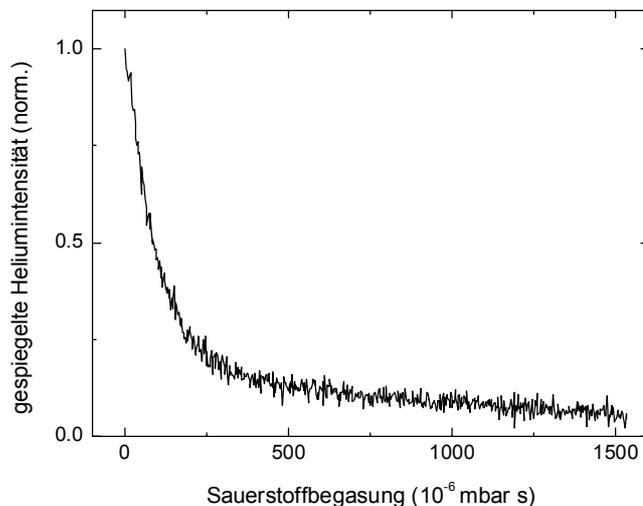


Abbildung 4.16: Die gespiegelte Heliumintensität, aufgenommen als Funktion der Sauerstoffbegasung während der Oxidation einer 7.5 ML dicken Ga- Schicht bei 290 K.

4.3.2.3 Anlassen der Galliumoxidschicht

Um die Galliumoxidschicht zu ordnen, wurde diese anschließend angelassen. Abbildung 4.16 zeigt den Verlauf der gespiegelten Heliumintensität während des Anlassens einer mit 6000 L oxidierten Ga-Schicht als Funktion der Temperatur. Die Intensität bleibt bis ~ 450 K nahezu konstant, nimmt dann leicht ab und geht durch ein flaches Minimum bei ~ 550 K und steigt anschließend ungefähr linear an bis 820 K. Bei dieser Temperatur wurde der Anlassprozess angehalten, um die Probe nicht zu beschädigen.

Während des Abkühlens nimmt die Intensität weiterhin zu und erreicht bei 300 K ein 2.2-faches der Anfangsintensität. Qualitativ ist der Verlauf durch das Wechselspiel zwischen einsetzenden Ordnungsprozessen und dem Debye-Waller Effekt erklärbar, der zunächst als Intensitätsabnahme (Abfall zwischen 450 bis 550 K) sichtbar wird. Oberhalb von 550 K überwiegen dann die Ordnungsprozesse, die zu dem ab 550 K beobachteten Anstieg der Intensität führen. Die Oberfläche ordnet sich weiter bis 820 K. Der während des Abkühlens der Probe beobachtete Anstieg findet ausschließlich aufgrund des Debye-Waller Effektes statt.

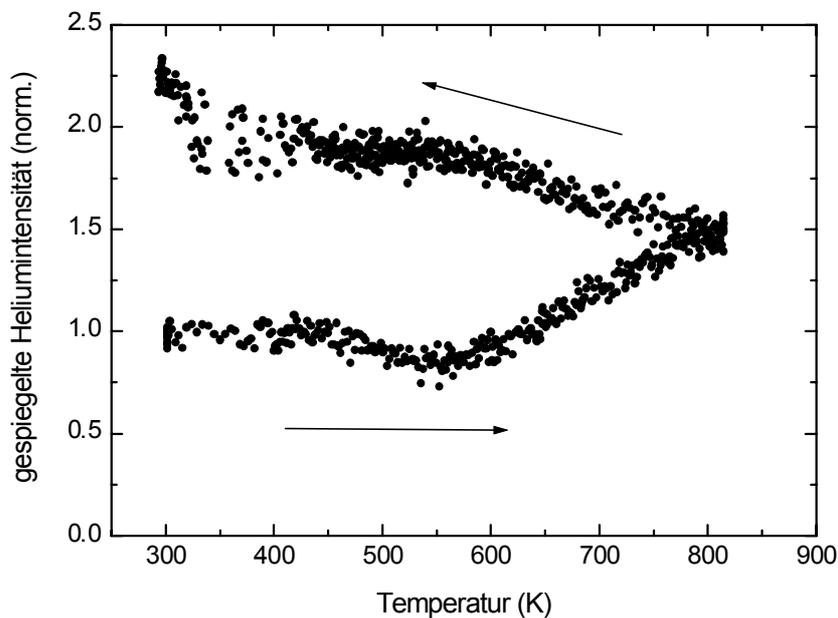


Abbildung 4.17: Die gespiegelte Heliumintensität, aufgenommen als Funktion der Temperatur, während des Anlassens einer bei 290 K mit 6000 L ($1\text{L} = 10^{-6} \text{ mbar}\cdot\text{s}$) oxidierten, 7.5 ML dicken Ga- Schicht. Die Heizrate betrug $\sim 1 \text{ K/s}$.

Das in Abbildung 4.18 dargestellte Beugungsprofil der Galliumoxidschicht, gemessen in $[010]$ -Richtung, zeigt einen relativ breiten gespiegelten $(0,0)$ -Reflex aber keine erkennbaren Beugungsreflexe höherer Ordnung. Dies deutet auf eine gewisse Ordnung hin, jedoch mit sehr kleinen kohärent streuenden Strukturen. Mit LEED (nicht abgebildet) konnten neben den sehr schwachen $\pm(1,1)$ -Reflexe keine weiteren Beugungsreflexe beobachtet werden. Da die Oxidschicht bis zu 820 K angelassen wurde, kann man Interdiffusion zwischen den Schichten nicht ausschließen. Um die chemische Zusammensetzung der Oberfläche unmittelbar vor und nach dem Anlassen auf 820 K zu

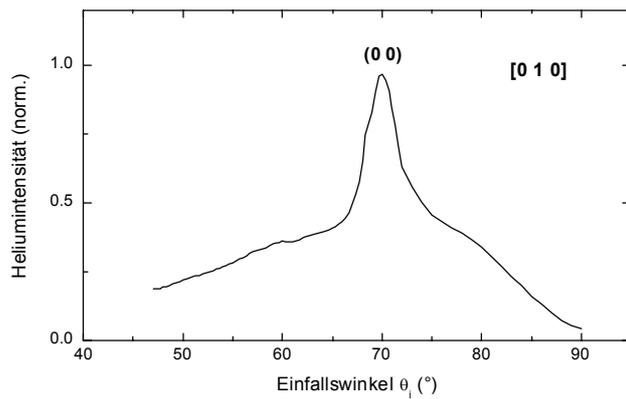


Abbildung 4.18: He-Beugungsprofil einer bei 820 K angelassenen Ga_2O_3 -Schicht, gemessen bei Raumtemperatur in [010]-Richtung. Die Heliumintensität ist normiert auf die Intensität des (0,0)-Reflexes. Der Strahlausfallswinkel beträgt $\theta_0 = 70^\circ$.

analysieren, wurden AES-Messungen durchgeführt. Die in Abbildung 4.19 dargestellten AES-Spektren (*a*: davor, *b*: danach) zeigen eine Abnahme der peak-to-peak Amplitude der AES-Übergänge von O (510 eV) um 40% und von Ga (1070 eV) um 50%. Gleichzeitig steigen die peak-to-peak Amplituden des AES-Übergangs von Fe (704 eV) und von As (1228 eV) jeweils um ein Zweifaches. Daraus kann man schließen, dass ein Teil des Galliumoxides sich während des Anlassens zersetzt und desorbiert. Andererseits

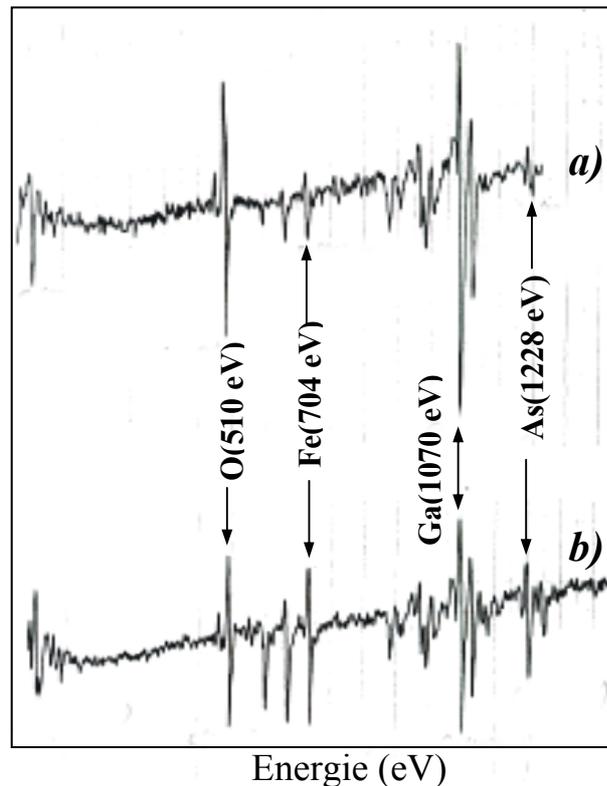


Abbildung 4.19: AES-Spektren, gemessen an dem Schichtsystem $\text{Ga}_2\text{O}_3/\text{Fe}_3\text{Ga}_{3-x}\text{As}_x/\text{GaAs}(100)$: *a*) vor und *b*) nach dem Anlassen der Probe auf 820 K.

können Fe- und As-Atome an die Oberfläche segregieren. Es ist auch nicht ganz auszuschließen, dass sich die Fe₃Ga_{2-x}As_x-Schicht bei dieser Anlasstemperatur von 820 K geändert hat.

4.3.3 Fe-Wachstum auf Ga₂O₃/ Fe₃Ga_{2-x}As_x/ GaAs(100)

Wie bereits in der Einleitung erwähnt wurde, besteht ein TMR-Modellsystem aus zwei ferromagnetischen Schichten getrennt durch einen dünnen isolierenden Film. Ein solches Modellsystem soll im Folgenden durch das Wachstum von Fe auf dem Schichtsystem Ga₂O₃/Fe₃Ga_{2-x}As_x hergestellt werden, wobei als Substrat die (100)-Oberfläche des GaAs-Halbleiters dient. Allerdings werden hier nur die strukturellen Eigenschaften des Schichtsystems Fe/Ga₂O₃/Fe₃Ga_{2-x}As_x/GaAs(100) untersucht.

Dazu wurde Eisen bei 300 K auf die bei 820 K angelassene Galliumoxidschicht deponiert und das Wachstum mittels der gespiegelten Heliumintensität, normiert auf die Intensität der reinen Ga₂O₃-Fläche I₀, als Funktion der Eisenbedeckung verfolgt (siehe Abb.4.20). Die Intensität fällt bis zu einer Bedeckung von etwa 1.5 ML ab, steigt danach wieder an und erreicht nach dem Aufdampfen von 10 ML den Wert $I/I_0 = 0.67$. Die Oberfläche des Fe-Films ordnet sich also mit zunehmender Eisenbedeckung, es werden jedoch auch in diesem Fall keine LEED-Reflexe beobachtet. Die Tatsache, dass die Intensität nicht monoton abnimmt deutet darauf hin, dass das Wachstum durch 3D-Inselbildung erfolgt, wobei leichte Glättung der Oberfläche durch Diffusionsprozesse

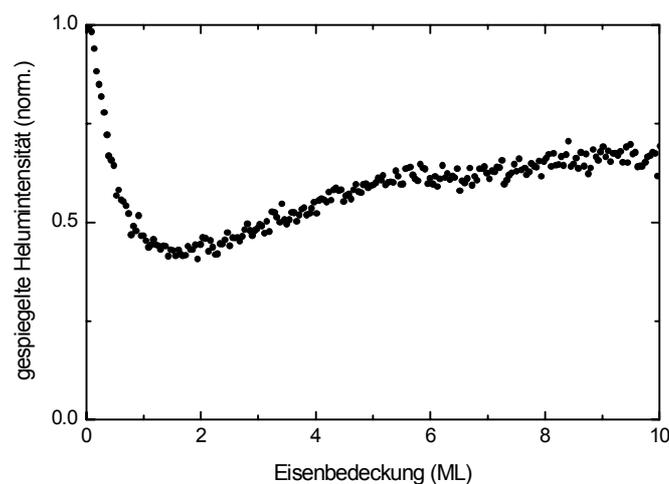


Abbildung 4.20: Gespiegelte Heliumintensität, gemessen während der Fe-Deposition auf dem Schichtsystem Ga₂O₃/Fe₃Ga_{2-x}As_x/GaAs(100) bei 300 K, als Funktion der Bedeckung.

stattfindet. Ein 3D-Wachstum ist aufgrund der viel höheren Oberflächenenergie des Eisens ($\gamma_{\text{Fe}} = 2939 \text{ mJ/m}^2$) gegenüber der des Galliumoxides ($\gamma_{\text{Ga}_2\text{O}_3} < 925 \text{ mJ/m}^2$) auch zu erwarten (siehe Kapitel 3.2).

Das Helium-Beugungsprofil, gemessen in $[010]$ -Richtung, ist in Abbildung 4.21 dargestellt und zeigt einen sehr breiten $(0,0)$ -Reflex und ein hohes Untergrundsignal, aber keine weiteren Beugungsreflexe. Dies deutet, im Vergleich zur eisenfreien Probe auf eine raue und relativ ungeordnete Oberfläche hin. Eine Glättung der Oberfläche erreicht man durch Erhöhung der Proben temperatur. Ein deutlicher Anstieg der gespiegelten Heliumintensität wird hier ebenfalls oberhalb von 550 K beobachtet (nicht abgebildet). Wird die Probe bis 630 K angelassen, so zeigen die LEED-Bilder und die He-Beugungsspektren dieselbe Struktur wie im Fall des Schichtsystems Fe/GaAs(100) (siehe Abb.4.11 und Abb.4.12), entsprechend der $\text{Fe}_3\text{Ga}_{2-x}\text{As}_x$ -Legierung.

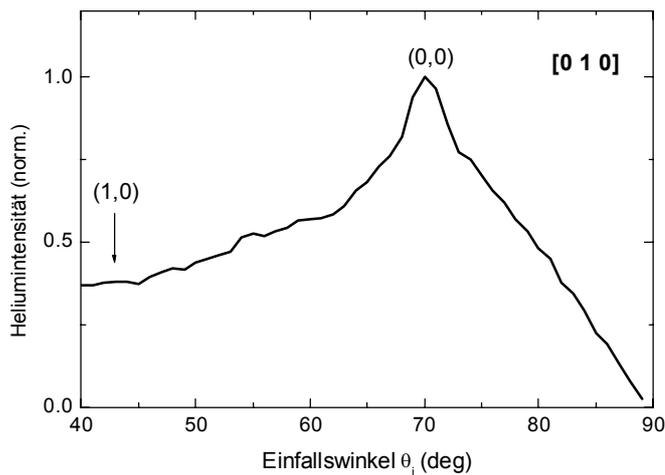


Abbildung 4.21: He-Beugungsprofil einer 10 ML dicken Fe-Schicht, gewachsen auf einer bei 820 K angelassenen Ga_2O_3 -Schicht des im Text beschriebenen Schichtsystems. Der Pfeil zeigt an wo der $(1,0)$ -Beugungsreflex zu erwarten ist.

4.4 Zusammenfassung und Diskussion

Die Oberflächenmorphologie und die thermische Stabilität dünner Fe-Filme und dünner Fe/Ga₂O₃/Fe₃Ga_{2-x}As_x- Multischichten auf der GaAs(100)-Oberfläche wurden mittels TEAS, LEED und AES untersucht. Aus thermodynamischer Sicht wächst der Fe-Film auf der GaAs(100)-Fläche bei 86, 300 und 475 K im Volmer-Weber Modus auf, d.h. die Fe-Atome bilden 3D-Inseln. Würde das Wachstum im thermodynamischen Gleichgewicht stattfinden, so sollte die gespiegelte Heliumintensität als Funktion der Bedeckung Θ exponentiell abnehmen und irgendwann im Untergrund verschwinden. Bei allen drei Temperaturen des Substrates wurde stattdessen eine Zunahme der gespiegelten Heliumintensität oberhalb einer Monolage beobachtet. Dieses Verhalten zeigt, dass der Wachstumsprozess nicht im thermodynamischen Gleichgewicht verläuft. In diesem Fall spielen die kinetischen Prozesse, wie Oberflächendiffusion und Interlagendiffusion, eine wichtige Rolle. Solche Prozesse führen zu einer Glättung der Oberfläche und erklären somit den beobachteten Anstieg der gespiegelten Heliumintensität. Je höher die Temperatur desto intensiver ist die Oberflächendiffusion, bzw. desto glatter und geordneter wird die Oberfläche während der Fe-Deposition auf der GaAs(100)-Fläche. Die gemessenen Aufdampfkurven bestätigen diese Aussage, die eigentlich den Weg zur Präparation dünner, wohlgeordneter Fe-Schichten zu weisen scheint. Jedoch nimmt auch die Interlagendiffusion mit der Temperatur zu, d.h. die Wahrscheinlichkeit wird größer, Ga- und As-Substratatomene in die Fe-Schichten diffundieren. Sowohl die in der Literatur gefundenen Daten, als auch unsere AES-Messungen bestätigen diese Aussage. Die am besten geordnete Oberfläche erhält man für 10 ML Fe bei ~ 630 K, wo bereits Ga- und As-Atome an die Oberfläche segregiert sind. Diese Oberfläche entspricht sehr wahrscheinlich einer geordneten Fe₃Ga_{2-x}As_x-Legierung [124], die eine p(2×2)-Überstruktur gegenüber einer unrekonstruierten GaAs(100)-Oberfläche bildet. Die nicht stöchiometrische Zusammensetzung dieser Legierung ist in der Literatur [124] durch die Entstehung einer zweiten, zu der GaAs(100)-Oberfläche epitaktischen Phase erklärt, die aus Fe₂As besteht. Die Anwesenheit einer zweiten geordneten Phase wird durch die bei $E = 18$ eV aufgenommenen LEED-Bildern, durch die zusätzlichen Spots in $[0\ 1\ 1]$ - bzw. $[0\ 1\ \bar{1}]$ -Richtung bestätigt. Die Struktur und die Zusammensetzung dieser zweiten Phase konnten jedoch in unseren Experimenten nicht eindeutig bestimmt werden.

Für die Präparation einer geordneten Galliumoxidschicht wurde die Oberfläche der wohlgeordneten $\text{Fe}_3\text{Ga}_{2-x}\text{As}_x$ -Legierung als Substrat verwendet. Die Deposition einer 7.5 ML dicken Ga-Schicht erfolgte bei 86 K. Der Anstieg der gespiegelten Heliumintensität während der Ga-Deposition zeigt oberhalb von 1.5 ML, dass das Wachstum nicht komplett in Form einer 3D-Inselbildung verläuft, sondern es finden wie im Fall des Eisenwachstums noch andere Prozesse statt, die zu einer gewissen Glättung der Oberfläche führen. Dennoch wurde weder mit LEED, noch mittels TEAS eine erkennbare Struktur beobachtet. TEAS Messungen zeigten, dass die anschließende Begasung der Ga-Schicht mit Sauerstoff bei 290 K zur Bildung einer amorphen Galliumoxidschicht führt, die sich durch Anlassen auf 820 K ordnet, aber gleichzeitig teilweise desorbiert. Auch andere Prozesse, wie das Eindringen von Ga in die Probe oder die Segregation von As oder Ga in die oberflächennahen Schichten sind möglich und können die Qualität der Galliumoxidschicht beeinträchtigen. Fe-Wachstum bei 300 K auf $\text{Ga}_2\text{O}_3/\text{Fe}_3\text{Ga}_{2-x}\text{As}_x/\text{GaAs}(100)$ findet auch durch 3D-Inselbildung statt, so dass die Oberfläche des 10 ML dicken Fe-Films vergleichsweise rau ist und somit zu keiner Beugungsstruktur bei LEED oder TEAS führt. Die Oberfläche des gewachsenen Schichtsystems $\text{Fe}/\text{Ga}_2\text{O}_3/\text{Fe}_3\text{Ga}_{2-x}\text{As}_x/\text{GaAs}(100)$ glättet sich durch das Anlassen auf 630 K.

Kapitel 5

Wachstum von Fe auf CoGa(100)

Das Wachstum magnetischer Filme ermöglicht es, extrem dünne Ferromagnetika zu stabilisieren, deren magnetische Eigenschaften sich von denen des Volumenkristalls unterscheiden. Wesentliche Gründe für diese Unterschiede sind die Wechselwirkung zwischen magnetischem Film und Substrat, die reduzierte Symmetrie an der Oberfläche, die geringere Koordinationszahl im Film und die Gitterspannungen, die meistens durch die Gitterfehlpassung zwischen dem Film und dem nicht magnetischen Substrat verursacht werden. Weiterhin wird die Morphologie magnetischer Filme von der Qualität des Substrates, Proben temperatur, Aufdampf rate, Schichtdicke, Anlassverfahren und Segregationseffekten beeinflusst.

Besonders geeignet für Untersuchungen in diesem Parameterfeld sind Eisenfilme, da sie epitaktisch auf einer Vielfalt von Substraten wachsen. Relativ glatte und wohlgeordnete Eisenfilme wurden unter anderem auf der Ag(100)-Oberfläche mit einer Fehlpassung von 0.8 % und auf der Au(100)-Oberfläche mit 0.6 % Fehlpassung gewachsen. Obwohl Fe ab einer Schichtdicke von 4 ML Fe auf der Ag(100)-Oberfläche bei 300 K lagenweise wächst [126, 127], zeigen STM-Messungen, dass die Oberfläche des Fe-Films von 3D-Inseln mit Höhen von bis zu 1 nm bedeckt ist [128]. Erst während des Ausheilens bei 600 K wird die Oberfläche glatter und die Rauigkeit nimmt bis zu 0.4 nm (\sim 3 ML) ab. Allerdings wird gleichzeitig mit der Glättung eine Segregation der Ag-Atome an die Oberfläche beobachtet und oberhalb von 650 K kommt es sogar zu einer Vermischung des Fe-Films mit dem Substrat [128]. Die Fe-Filme, die bei 300 K auf der Au(100)-Oberfläche gewachsen werden, sind etwas glatter als die auf der Ag(100)-Oberfläche gewachsenen [129, 130]. Oberhalb von 400 K wird eine Glättung der Oberfläche während des Anlassens des Fe-Films beobachtet, begleitet von der Segrega-

tion von Au-Atomen an die Oberfläche. Au-Atome wirken demnach als so genannte *surfactants* [131] und führen zur Glättung der Oberfläche. Oberhalb von 570 K diffundiert Eisen in das Au-Substrat [132]. Auf der Ag(100)-Oberfläche wurde eine in der Ebene remanente Magnetisierung für Eisenfilme mit einer Schichtdicke von 2.5 ML gefunden, während sie auf der Au(100)-Oberfläche schon bei einer Schichtdicke von 1 ML beobachtet wurde [133, 134].

Eine wichtige Voraussetzung für das Wachsen eines glatten, wohlgeordneten Fe-Films ist eine geringe Gitterfehlpassung zwischen diesem und dem Substrat. Ein zu Au und Ag alternatives Substrat, das diese Bedingung erfüllt, ist die Co_{50%}Ga_{50%}-Legierung, die eine bcc CsCl-Struktur mit der Gitterkonstante $a = 2.878 \text{ \AA}$ besitzt und eine Gitterfehlpassung zum bcc-Fe von nur 0.5% hat. Ihre hohe Schmelztemperatur (1460 K) ermöglicht – wie im Folgenden gezeigt werden wird – eine definierte Schichtpräparation bei höheren Substrattemperaturen.

In der vorliegenden Arbeit wird über die strukturellen und magnetischen Eigenschaften eines auf der CoGa(100)-Oberfläche gewachsenen Fe-Films berichtet. Das Wachstum und die Struktur der Fe-Filme wurden mittels Streuung thermischer Heliumatome (TEAS), Beugung niederenergetischer Elektronen (LEED) und Augerelektrospektroskopie (AES) verfolgt. Die magnetischen Eigenschaften wurden mittels magneto-optischen Kerreffekts (MOKE) untersucht. Das Wachstum von Fe auf der CoGa(100)-Oberfläche wurde schon durch PFLITSCH [94] anhand der oben aufgezählten Methoden untersucht. Er hat gezeigt, dass Eisen sowohl bei 300 K als auch bei 550 K lagenweise auf der CoGa(100)-Oberfläche wächst und einen wohlgeordneten bcc Fe-Film bildet, der bis 650 K thermisch stabil ist. LEED- und TEAS-Messungen zeigen, dass das Wachstum von Fe auf dieser Fläche bei 300 K zu einer unrekonstruierten bcc Fe(100)-Oberfläche führt, während die Oberfläche eines bei 550 K gewachsenen Fe-Films oberhalb von 7 ML eine klare $c(2 \times 2)$ -Überstruktur aufweist [94]. Weiterhin wurde bei 550 K eine Glättung der Oberfläche, auch nach Beendigung des Bedampfungsprozesses, beobachtet. Durch mehrmaliges Unterbrechen der Deposition mit „Glättungspausen“ bis zu einer Stunde zwischen zwei Bedampfungsperioden konnte ein Fe-Film bis zu einer Schichtdicke von 30 ML lagenweise gewachsen werden [94]. In dieser Dissertationsarbeit sollen noch einige detaillierte Fragen bezüglich des Wachstumsprozesses, der Struktur und der Morphologie der Fe-Filme geklärt werden. Dabei soll

geklärt werden wie das Wachstum in der Anfangsphase der Fe-Deposition verläuft und ob sich der Fe-Film Lage-für-Lage aufbaut oder durch Ausbilden von Doppel- bzw. Mehrfachlagen entsteht. Außerdem wurde hier auch nach einer Erklärung für die beobachtete Überstruktur bei 550 K gesucht, da eine Rekonstruktion des bcc-Fe(100)-Films für reines Eisen nicht zu erwarten ist. In dem folgenden Kapitel werden die strukturellen und morphologischen Eigenschaften von Fe auf der CoGa(100)-Oberfläche bei 300 bzw. 550 K vorgestellt und die während des Anlassens der Fe-Filme beobachteten Diffusionsprozesse untersucht.

5.1 Die reine CoGa(100)-Oberfläche

Wie schon im Abschnitt 3.2.2 beschrieben, ist die CoGa-Legierung eine intermetallische Verbindung, die in einer CsCl-Struktur mit einer Gitterkonstante von 2.88 Å kristallisiert. Demnach sollte die (100)-Oberfläche von CoGa eine quadratische Einheitszelle mit Kantenlängen von 2.88 Å aufweisen. STM- und LEED-Messungen [8] haben jedoch gezeigt, dass die Oberfläche rekonstruiert, d.h. die äußerste Atomlage weicht von der Struktur des Volumens ab. Die CoGa(100)-Oberfläche zeigt überwiegend eine $c(4 \times 2)$ -Rekonstruktion, manchmal jedoch zusammen mit $(\sqrt{5} \times \sqrt{5})R26.6^\circ$ -rekonstruierten Domänen.

5.1.1 Herstellung der reinen CoGa(100)-Oberfläche

Für die Wachstumsexperimente in dem vorliegenden Kapitel wurde eine und dieselbe Reinigungsprozedur befolgt, um die Anfangsbedingungen für das Fe-Wachstum so gut wie möglich reproduzieren zu können: Die Probe wurde mit Ar^+ -Ionen (800 eV) gesputtert, bis das AES-Spektrum innerhalb der Messgenauigkeit keine Verunreinigung mehr nachwies, dann wurde bis 800 K geheizt und die Probe einer Sauerstoffatmosphäre von 1×10^{-6} mbar für 2 min ausgesetzt. Durch weiteres Anlassen bis zu 1070 K desorbiert der oxidierte Kohlenstoff sowie die gebildete Galliumoxide. Unmittelbar nach dem Ausheilen der Probe bei 1070 K (für etwa 3 Minuten) wurde die Heizung ausgeschaltet um eine maximale Abkühlrate zu erreichen. Die hier beschriebene Reinigungsprozedur führt zu einer $c(4 \times 2)$ -Rekonstruktion, wie das bei 84 eV aufgenommene LEED-Bild (Abb. 5.1(a)) zeigt. Die dieser Rekonstruktion entsprechenden Beugungsreflexe sind zur Verdeutlichung in Abbildung 5.1(b) schematisch illustriert.

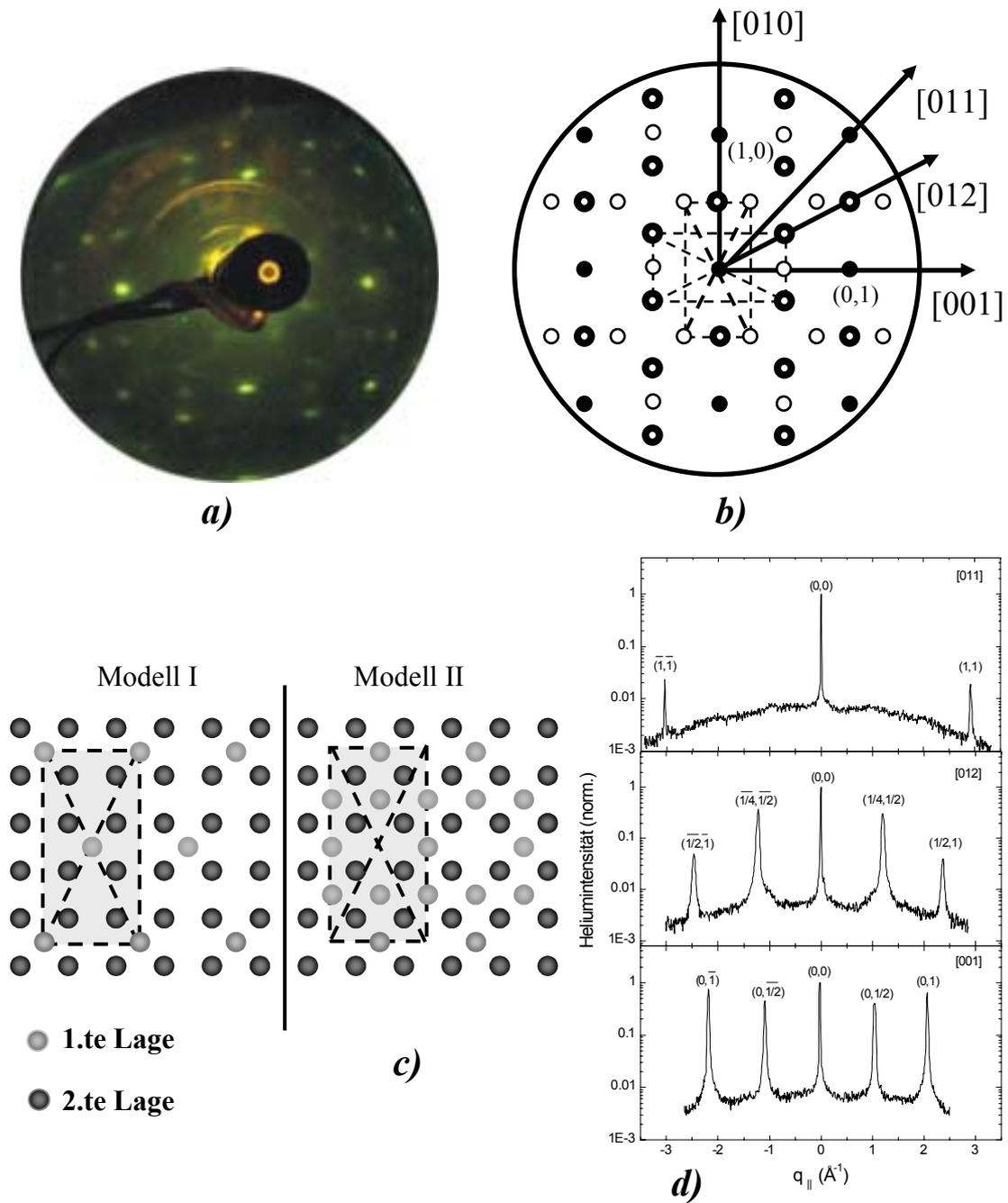


Abbildung 5.1: Struktur der CoGa(100)-Oberfläche: *a)* LEED-Bild mit einer $c(4 \times 2)$ -Rekonstruktion in zwei senkrecht zueinander stehenden Domänen ($E = 86$ eV); *b)* LEED-Schema der entsprechenden Beugungsreflexe: die Reflexe der (1×1) -Struktur (●) und die zusätzlichen Reflexe der $c(4 \times 2)$ -Rekonstruktion entsprechend einer Domäne (●) bzw. der senkrecht zu dieser stehenden Domäne (○); *c)* Zwei Modelle der $c(4 \times 2)$ -Rekonstruktion (Draufsicht); *d)* He-Beugungsspektren in $[001]$ -, $[012]$ - und $[011]$ -Richtung. Die Spektren sind jeweils auf die Intensität des $(0,0)$ -Reflexes normiert. Die He-Energie betrug 24.4 meV.

Das Beugungsbild kann durch die Modelle I und II die in Abbildung 5.1(c) dargestellt sind erklärt werden. Während im ersten Modell die rekonstruierte Lage durch eine Bedeckung mit Co- (bzw. Ga-) Atomen von $1/4$ ML zustande kommt, geht das zweite Strukturmodell von einer mit $3/4$ ML Co (bzw. Ga) bedeckten Oberfläche aus. Der Übersichtlichkeit halber ist hier nur jeweils eine Domäne dargestellt. In Wirklichkeit gibt es jeweils zwei senkrecht zu einander stehenden Domänen. Ob die äußerste Lage der CoGa(100)-Oberfläche mit Co- oder mit Ga-Atomen terminiert ist konnte im Rahmen dieser Arbeit nicht geklärt werden. Modellrechnungen an AES-Messungen führten zu der Annahme, dass die Oberfläche mit Co-Atomen terminiert ist [135].

Die in $[001]$ -, $[012]$ - und $[011]$ -Richtung gemessenen Helium-Beugungsspektren (siehe Abb. 5.1(d)) bestätigen die $c(4\times 2)$ -Rekonstruktion der reinen CoGa(100)-Oberfläche. Das Beugungsspektrum, gemessen in $[011]$ -Richtung, zeigt nur die Beugungsreflexe $(0,0)$ und $\pm(1,1)$ des Substrates. In der $[012]$ -Richtung beobachtet man neben dem $(0,0)$ -Reflex zusätzliche Reflexe bei $\pm(1/4, 1/2)$ und $\pm(1/2, 1)$, die der $c(4\times 2)$ -Rekonstruktion entsprechen. Das in $[001]$ -Richtung gemessene He-Beugungsspektrum zeigt neben den $(0,0)$ - und $\pm(0,1)$ -Reflexe der (1×1) -Struktur zusätzliche Reflexe bei $\pm(0, 1/2)$, die für die $c(4\times 2)$ -Rekonstruktion charakteristisch sind. Die Helium-Beugungsspektren zeigen sehr scharfe Reflexe, die auf eine atomar glatte Oberfläche mit breiten Terrassen und eine sehr geringe Stufendichte hinweisen. Dieses Ergebnis ist in Einklang mit den Ergebnissen von SCHMITZ [8] und GASSMANN [7], die mittels Rastertunnelmikroskopie (STM) Terrassen von über 3000 \AA nachgewiesen haben. Die STM-Bilder zeigten jedoch auch, dass die Stufendichte in der Nähe von Verunreinigungen und Defekten, welche Pinningzentren darstellen, drastisch erhöht ist. Die Stufenhöhe konnte zu etwa 2.9 \AA abgeschätzt werden. Dieser Wert stimmt sehr gut mit dem Gitterparameter einer CoGa-Einheitszelle überein, d.h. die Stufenkanten entsprechen Doppelstufen.

5.1.2 Einfluss der Präparation auf die Oberflächenstruktur

Auch wenn die oben beschriebene Präparation streng eingehalten wird, beobachtet man nach mehr als ca. 100 Reinigungszyklen zusätzliche Reflexe in den in $[012]$ -Richtung gemessenen He-Beugungsspektren (siehe Abb. 5.2(a)), die auf eine

allmähliche Änderung der CoGa(100)-Oberfläche hinweisen. Gemäß den STM-Messungen von SCHMITZ [8] entsprechen diese einer $(\sqrt{5} \times \sqrt{5})R26.6^\circ$ -Rekonstruktion mit zwei Domänen. Das in Abbildung 5.2(b) dargestellte Schema verdeutlicht die Lage der Reflexe entsprechend der $(\sqrt{5} \times \sqrt{5})R26.6^\circ$ -Rekonstruktion. In [001]-Richtung liegen die Reflexe der $(\sqrt{5} \times \sqrt{5})R26.6^\circ$ -Rekonstruktion an gleicher Stelle wie die der $c(4 \times 2)$ -Rekonstruktion und sind demnach nicht zu unterscheiden. In [012]-Richtung liegen die Beugungsreflexe der $(\sqrt{5} \times \sqrt{5})R26.6^\circ$ -Rekonstruktion bei $\pm(2/5, 1/5)$ und $\pm(4/5, 2/5)$ gegenüber der (1×1) -Struktur des unrekonstruierten CoGa(100)-Substrates. In Abbildung 5.2(a) erscheinen die $\pm(2/5, 1/5)$ -Reflexe jeweils als Schultern an der Seite der $\pm(1/4, 1/2)$ -Beugungsreflexe entsprechend der $c(4 \times 2)$ -Rekonstruktion, während die $\pm(4/5, 2/5)$ kaum sichtbar sind. Die Intensität der $\pm(2/5, 1/5)$ -Reflexe ist um einen Faktor 10 kleiner als die der $\pm(1/4, 1/2)$ -Reflexe, deshalb ist anzunehmen, dass die Gesamtfläche der $(\sqrt{5} \times \sqrt{5})R26.6^\circ$ -rekonstruierten Domänen auch klein ist gegenüber der der $c(4 \times 2)$ -rekonstruierten Domänen. Die AES-Messungen zeigen nach 100 Reinigungszyklen innerhalb einer Messgenauigkeit von $\pm 2\%$ keine Veränderung des Co/Ga-Verhältnis gegenüber einer erstmals präparierten CoGa(100)-Oberfläche.

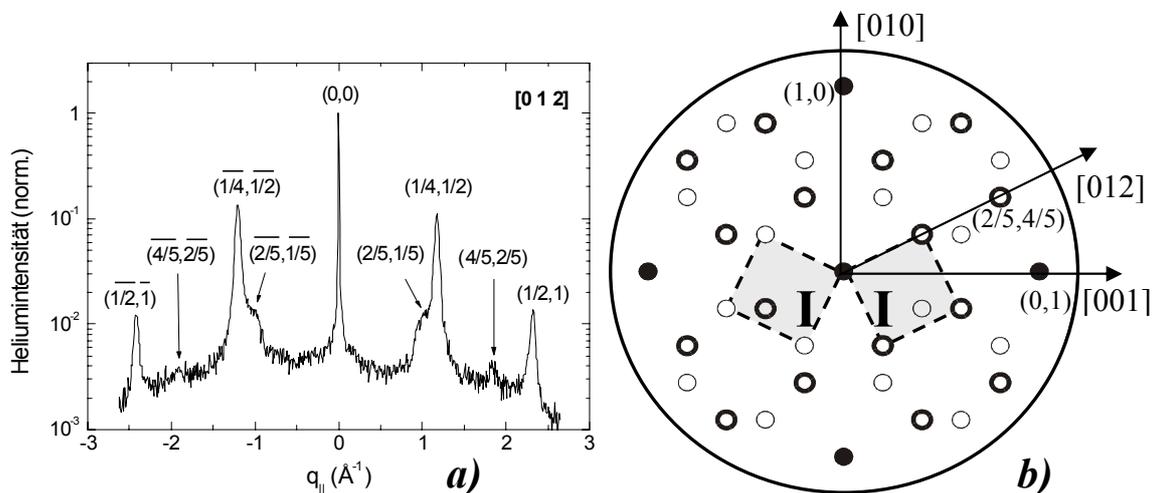


Abbildung 5.2: *a*) He-Beugungsspektrum gemessen in [012]-Richtung an der CoGa(100)-Oberfläche ($E = 24.4$ meV). Die Intensität ist auf die Höhe des (0,0)-Reflexes normiert; *b*) LEED-Schema der $(\sqrt{5} \times \sqrt{5})R26.6^\circ$ -Rekonstruktion: Eingezeichnet sind die Reflexe der (1×1) -Struktur (\bullet) und die zusätzlichen Reflexe der zwei rekonstruierten Domänen (\odot bzw. \circ).

Die strukturelle Änderung findet auch dann statt, wenn man während der thermischen Behandlung, beim Abkühlen der Probe, die Heizleistung nur verringert und nicht, wie vorher beschrieben, ganz abstellt. Im Folgenden wird beschrieben, wie sich die Struktur der CoGa(100)-Oberfläche als Funktion der Abkühlgeschwindigkeit der Probe nach Heizen bis 1070 K ändert. Dabei werden zwei Fälle unterschieden: *a*) „langsam“, wenn nach dem Anlassen die Heizung nur verringert wird und die Probe dadurch langsamer abkühlt als im Fall *b*) „schnell“, wo die Heizung komplett abgestellt wird. Abbildung 5.3(*a*) zeigt He-Beugungsspektren, gemessen in die [012]-Richtung an der reinen CoGa(100)-Oberfläche nach schnellem Abkühlen (Spektrum „S“), bzw. nach langsamem Abkühlen (Spektrum „L“). Während im ersten Fall die für die $c(4\times 2)$ -Rekonstruktion charakteristischen $\pm(1/4, 1/2)$ - und $\pm(1/2, 1)$ -Reflexe beobachtet werden, zeigt das Spektrum „L“ nur noch die $\pm(2/5, 1/5)$ - und $\pm(4/5, 2/5)$ -Reflexe entsprechend der $(\sqrt{5} \times \sqrt{5})R26.6^\circ$ -Rekonstruktion. Man erkennt auch ein durch diffuse Streuung deutlich erhöhtes Untergrundsignal im Spektrum „L“ gegenüber dem Spektrum „S“. Daraus kann man schließen, dass die $(\sqrt{5} \times \sqrt{5})R26.6^\circ$ -Rekonstruktion einen etwas höheren Unordnungsgrad aufweist als die $c(4\times 2)$ -Rekonstruktion. Die Abkühlraten, entsprechend den zwei Beugungsspektren, sind in Abbildung 5.3(*b*) verdeutlicht. Wäh-

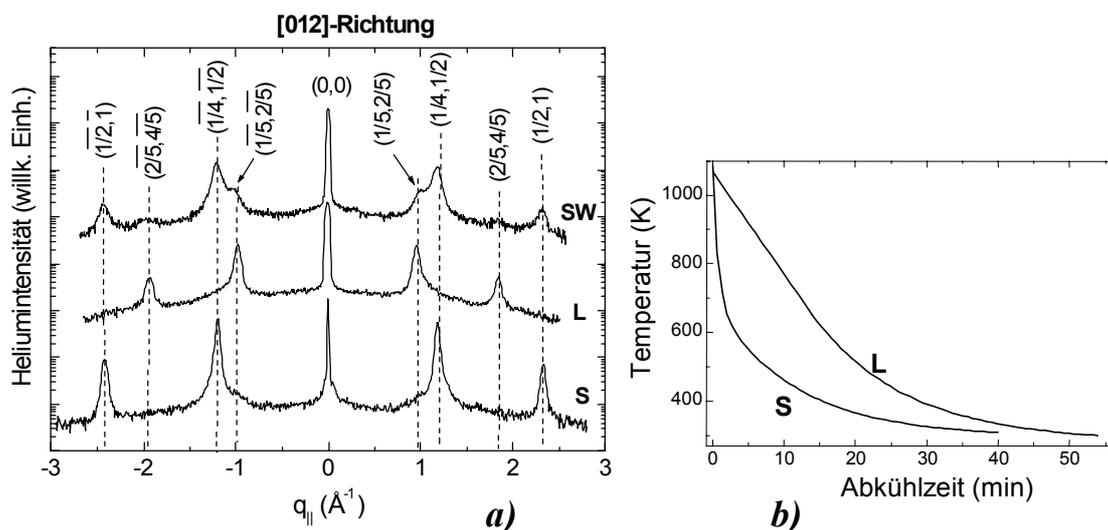


Abbildung 5.3: *a*) Beugungsspektren, gemessen in [012]-Richtung an der reinen CoGa(100)-Oberfläche nach schnellem Abkühlen (Spektrum S), nach langsamem Abkühlen (Spektrum L) und nach wiederholt schnellem Abkühlen (Spektrum SW) und *b*) Darstellung der Abkühlrate entsprechend dem schnellen (Kurve S) und dem langsamen Abkühlvorgang (Kurve L).

rend des schnellen Abkühlens (Kurve „S“) nimmt die Temperatur ungefähr exponentiell mit der Zeit ab, so dass die Abkühlrate bei 1050 K von etwa 600 K/min bis etwa 100 K/min bei 700 K sinkt. Beim langsamen Abkühlen (Kurve „L“) ist die zeitliche Abnahme der Temperatur mittels eines Temperaturreglers bei 30 K/min bis 700 K konstant gehalten, danach verläuft sie ähnlich wie in Kurve „S“ weiter. Wird die Probe nach einem langsamen Abkühlprozess erneut auf 1070 K angelassen, dann schnell abgekühlt, so erhält man nicht, wie erwartet, eine reine $c(4\times 2)$ -Rekonstruktion der Oberfläche, sondern es werden auch die für die $(\sqrt{5}\times\sqrt{5})R26.6^\circ$ -Rekonstruktion charakteristischen Reflexe $\pm(2/5,1/5)$ und $\pm(4/5,2/5)$ in $[012]$ -Richtung beobachtet (siehe Spektrum „SW“). Die Änderung der Struktur von der $c(4\times 2)$ - zu der $(\sqrt{5}\times\sqrt{5})R26.6^\circ$ -Rekonstruktion ist demnach nicht komplett reversibel und die $c(4\times 2)$ -Rekonstruktion kann nicht mehr komplett wiederhergestellt werden. Die Änderung der Oberflächenstruktur von der $c(4\times 2)$ - zu der $(\sqrt{5}\times\sqrt{5})R26.6^\circ$ -Rekonstruktion kann durch längere Reinigungszyklen (Sputter- bzw. Anlassperioden) beschleunigt werden. Dies lässt sich dadurch erklären, dass die Ga-Atome einerseits präferentiell von der Oberfläche gesputtert werden und andererseits wesentlich leichter desorbieren. Der erstgenannte Grund wird in Abbildung 5.4(a) anhand von zwei AES-Spektren, gemessen an einer für 30 Minuten (800 eV, 1 μA) gesputterten CoGa(100)-Oberfläche vor (i) und nach (ii) Anlassen auf 1070 K illustriert. Das peak-to-peak-Verhältnis der AES-

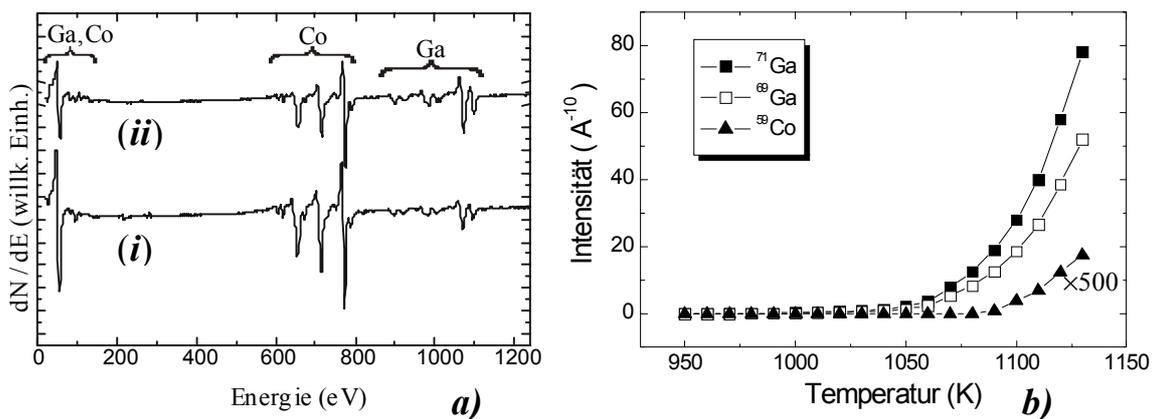


Abbildung 5.4: AES-Spektren von der CoGa(100)-Oberfläche, gemessen (i) vor dem Anlassen und (ii) nach dem Anlassen auf 1070 K. b) Thermische Desorptionskurven, aufgenommen während des Anlassens der CoGa(100)-Oberfläche bis 1130 K. Die Intensität des Co-Signals ist mit 500 multipliziert.

Übergänge von Co (775 eV) und Ga (1070 eV) beträgt etwa 5.0 bei der gesputterten gegenüber 1.4 bei der ausgeheilten Oberfläche. Um zu unterscheiden welche Teilchen beim Anlassen der Probe von der Oberfläche desorbieren wurden thermische Desorptionmessungen (TDS) mit einem Quadrupol-Massenspektrometer durchgeführt. In Abbildung 5.4(b) wird die Intensität der zwei Galliumisotope (^{69}Ga und ^{71}Ga) und des Kobaltisotops als Funktion der Anlasstemperatur dargestellt. Die Desorption der Ga-Atome beginnt bei 950 K, die der Co-Atome erst bei 1090 K. Bei 1130 K ist das ^{69}Co -Signal um mehr als den Faktor 10^3 kleiner als die Ga-Signale. Daraus kann man schließen, dass die Sputter- und Anlasszyklen zu einer Ga-Verarmung der CoGa(100)-Oberfläche und des gesamten CoGa-Kristall führen. Damit lässt sich die beobachtete strukturelle Änderung der Oberfläche mit einer Veränderung in der Oberflächensatzung erklären.

5.2 Wachstum von Fe auf CoGa(100) bei 300 K

Das Wachstum von Fe auf der CoGa(100)-Fläche bei Raumtemperatur ist schon teilweise von PFLITSCH [94] mittels TEAS und LEED untersucht worden. Die in Ref. [94] beschriebenen Messungen wurden bei einer Energie der einfallenden Heliumatome von 24.4 meV durchgeführt. Dieser Wert entspricht einer Phasenverschiebung $\phi = 13.9$ rad in Bezug auf die Streuung eines Heliumatoms zwischen zwei benachbarten α -Fe(100)-Ebenen. Da diese Phasenverschiebung zwischen der Anti-Phase- und der In-Phase-Interferenzbedingung liegt, ist eine eindeutige Interpretation der Wachstumskurven im Sinne einer strikten Nachweistrennung von Defektdichte (In-Phase) und Lagenverteilung (Anti-Phase) nicht möglich. In der vorliegenden Arbeit wurde das Wachstum von Fe auf der CoGa(100)-Oberfläche bei 300 K und 550 K ebenfalls mittels TEAS untersucht, diesmal sowohl unter In-Phase- als auch unter Anti-Phase-Interferenzbedingung. Die In-Phase-Interferenzbedingung ergibt sich aus Gleichung (2.17) für $\phi = 2n\pi$ und die Anti-Phase-Interferenzbedingung aus derselben Gleichung für $\phi = (2n+1)\pi$. In beiden Fällen wurde eine Stufenhöhe von 1.433 Å entsprechend der bcc Fe-Struktur angenommen. Wie in Abschnitt 2.1 beschrieben wurde, liefern die unter In-Phase Interferenzbedingung durchgeführten Messungen Informationen über die Dichte von Defekten einer Oberfläche (z. B. Stufenkanten), während unter Anti-Phase-Interferenzbedingung die Lagenverteilung an der Oberfläche untersucht werden kann.

5.2.1 Untersuchung des Wachstumsverhaltens

Die Deposition von Eisen auf der CoGa(100)-Oberfläche ist mittels TEAS wie folgt untersucht worden: Die gespiegelte Heliumintensität wurde als Funktion der Eisenbedeckung sowohl unter Anti-Phase als auch unter In-Phase-Interferenzbedingung aufgenommen (Abb. 5.5). Die Energie der einfallenden Heliumatome betrug dementsprechend 31.5 meV bzw. 20.1 meV, jeweils berechnet für die α -Fe(100)-Stufenhöhe von $h = 1.43 \text{ \AA}$. Die Intensität ist in beiden Fällen auf die gespiegelte Heliumintensität der reinen CoGa(100)-Oberfläche normiert.

Abbildung 5.5(a) zeigt, dass die gespiegelte Heliumintensität, gemessen während der Fe-Deposition unter Anti-Phase-Interferenzbedingung, periodisch oszilliert. Dieses Verhalten ist charakteristisch für ein Lage-für-Lage Wachstum. In dem Inset der Abbildung 5.5(a) wird die Ordnungszahl n der Oszillationsmaxima als Funktion der Aufdampfzeit dargestellt. Wird jeder kompletten Monolage ein Maximum zugeordnet (siehe Kap. 2.1), so ergibt sich mittels Anpassung einer linearen Kurve eine Oszillationsperiode von $(108.5 \pm 0.5) \text{ s}$, entsprechend einer Depositionsrate von etwa 0.55

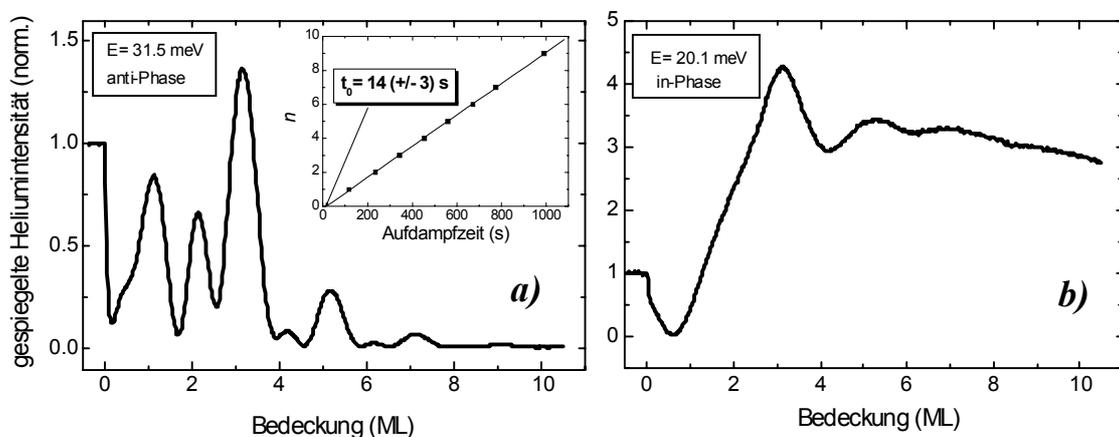


Abbildung 5.5: Gespiegelte Heliumintensität aufgenommen während des Wachstums von Fe auf der CoGa(100)-Oberfläche bei 300 K unter Anti-Phase- (a) und unter In-Phase-Interferenzbedingung (b). Beide Kurven sind als Funktion der Eisenbedeckung aufgetragen. Die Aufdampfrate betrug 0.55 ML/ min. Die gespiegelte Heliumintensität ist für beide Kurven auf die Intensität der reinen CoGa-Fläche normiert. Das Inset in (a) stellt die Anzahl der Oszillationen als Funktion der Aufdampfzeit dar, wobei die durchgezogene Linie eine lineare Anpassung der Messdaten repräsentiert.

ML/min. Gemäß dieser Anpassung befinden sich die Oszillationsmaxima nicht, wie erwartet, bei Vielfachen einer Monolage, sondern jeweils um $\Delta\theta_0 = 0.13 \pm 0.03$ ML zu höheren Bedeckungen hin verschoben, wobei sich der Messfehler hauptsächlich durch die Schwankungen der Verdampferparameter ergibt. Die in dieser Weise ermittelte Verschiebung ist kleiner als der in Ref. [94] gemessene Wert von etwa 0.25 ML. Im Gegensatz zu Ref. [94] wird hier kein Maximum bei einer Bedeckung von 0.25 ML beobachtet, vermutlich eine Konsequenz der hier eingestellten reinen Anti-Phase Interferenzbedingung, man sieht jedoch ein nicht aufgelöstes Maximum bei etwa 0.5 ML in Form einer „Schulter“ links an der ersten deutlichen Oszillation. Die Intensität nimmt in der Anfangsphase des Wachstums ab und erreicht bei etwa 0.18 ML ein Minimum. Danach zeigt sie einen Anstieg bis zu einer Bedeckung von ~ 1 ML, wo es ein Maximum von etwa 0.8 der Anfangsintensität erreicht. Bei ~ 3 ML erreicht die gespiegelte Heliumintensität einen Höchstwert sowohl unter Anti-Phase- als auch unter In-Phase Bedingung (siehe Abb.5.5). In beiden Fällen ist die Intensität viel höher als die der reinen CoGa(100)-Oberfläche. Daraus kann man schließen, dass das Reflexionsvermögen der Fe-Schicht größer ist als das der reinen CoGa(100)-Oberfläche und, dass bei dieser Bedeckung die Fe-Schicht relativ glatt und wohlgeordnet ist. Bei weiterem Bedampfen mit Eisen nimmt die Amplitude der Oszillationen stark ab. Ab der zweiten Monolage zeigt jede zweite Oszillation eine viel größere Amplitude als die vorhergehende. Dies führt zu der Annahme, dass der Eisenfilm die Tendenz hat in Doppellagen aufzuwachsen, d.h. das Wachstum der $(n+1)$ -ten Lage beginnt noch bevor die n -te Lage vollständig gefüllt ist. In Ref. [94] ist dieses Verhalten aufgrund der bei 4, 6 und 8 ML fehlenden Maxima erklärt worden. Wie man in der Abbildung 5.5(a) sieht, konnten hier die Oszillationen bei 4 und 6 ML aufgelöst werden. Bei 8 ML ist ein Maximum erst nach einer hundertfachen Vergrößerung sichtbar. Bei 10 ML ist jedoch keine Oszillation mehr zu erkennen und die Intensität beträgt nur noch 7×10^{-3} gegenüber der Intensität von der reinen CoGa(100)-Oberfläche. Die abnehmende Intensität ist durch eine zunehmende Anzahl von kleinen, durch flache Zwischenräume getrennte Inseln zu erklären. Diese führen zu einem Kohärenzverlust der unter Anti-Phase interferierenden Heliumstrahlen [136]. Zusätzlich führt die diffuse Streuung an Stufenkanten zu einer Abnahme der gespiegelten Heliumintensität [136].

Unter In-Phase-Interferenzbedingung (siehe Abb.5.5(b)) beobachtet man ein unterschiedliches Verhalten der gespiegelten Heliumintensität. Während unter Anti-Phase-Streuung das erste Minimum schon nach etwa 0.18 ML erscheint, wird unter In-Phase-Interferenzbedingung erst bei 0.6 ML ein Minimum beobachtet. Die Intensität nimmt dann bis 3 ML stetig zu, zeigt aber keine Oszillationen in diesem Bereich. Erst nachdem bei 3 ML ein Höchstwert von ~ 4.3 erreicht wird setzen auch die Oszillationen ein. In diesem Fall beträgt die Oszillationsperiode 2 ML und die Oszillationsamplitude nimmt mit zunehmender Bedeckung nur relativ leicht ab, so dass die gespiegelte Intensität auch nach 10 ML immer noch dreimal größer ist als die der reinen CoGa(100)-Oberfläche. In Vergleich zu der unter Anti-Phase-Bedingung aufgenommenen Wachstumskurve werden hier bei 4, 6 und 8 ML nicht Maxima, sondern Minima der Intensität beobachtet. Auch dieses Verhalten ist auf ein Doppellagenwachstum zurückzuführen. Da die unter In-Phase-Interferenzbedingung aufgenommene Heliumintensität im Prinzip unabhängig von der Terrassengröße oder -verteilung ist, ist die Abnahme hauptsächlich durch diffuse Streuung an den Stufenkanten zu erklären (siehe auch Abschnitt 2.1).

5.2.2 Struktur und Morphologie des Schichtsystems Fe/ CoGa(100)

Die strukturellen und morphologischen Eigenschaften der bei Raumtemperatur gewachsenen Fe-Filme wurden mittels LEED und TEAS untersucht. Abbildung 5.6 zeigt LEED-Bilder, aufgenommen bei einer primären Elektronenenergie von 93 eV für 1, 3, 6 und 10 ML Eisen. Alle Aufnahmen zeigen eine (1×1)-Struktur gegenüber einer unrekonstruierten CoGa(100)-Oberfläche. Da sich die Gitterkonstanten von bcc-Eisen und CoGa sehr wenig unterscheiden, entspricht das beobachtete Beugungsmuster auch dem erwarteten Beugungsbild einer α -Fe(100)-Oberfläche. Der Eisenfilm wächst also epitaktisch auf der CoGa(100)-Oberfläche und steht damit in folgenden Verhältnissen:

$$\text{Fe}(100)[100] \parallel \text{CoGa}(100)[100] \text{ und } \text{Fe}(100)[001] \parallel \text{CoGa}(100)[001].$$

Obwohl die vier LEED-Bilder ähnliche Beugungsmuster zeigen, unterscheiden sich diese bezüglich der Intensität und der Breite der beobachteten Beugungsreflexe. Das bei 1 ML aufgenommene LEED-Bild zeigt relativ scharfe Beugungsreflexe sowohl in [001]-, als auch in [011]-Richtung. Während aber die $(\pm 1, \pm 1)$ -Reflexe mit zunehmender Bedeckung keine erkennbaren Veränderungen zeigen, werden die $(0, \pm 1)$ -, bzw. $(\pm 1, 0)$ -Reflexe schwächer und stark verbreitert. Erhöht man die Primärenergie der Elektronen,

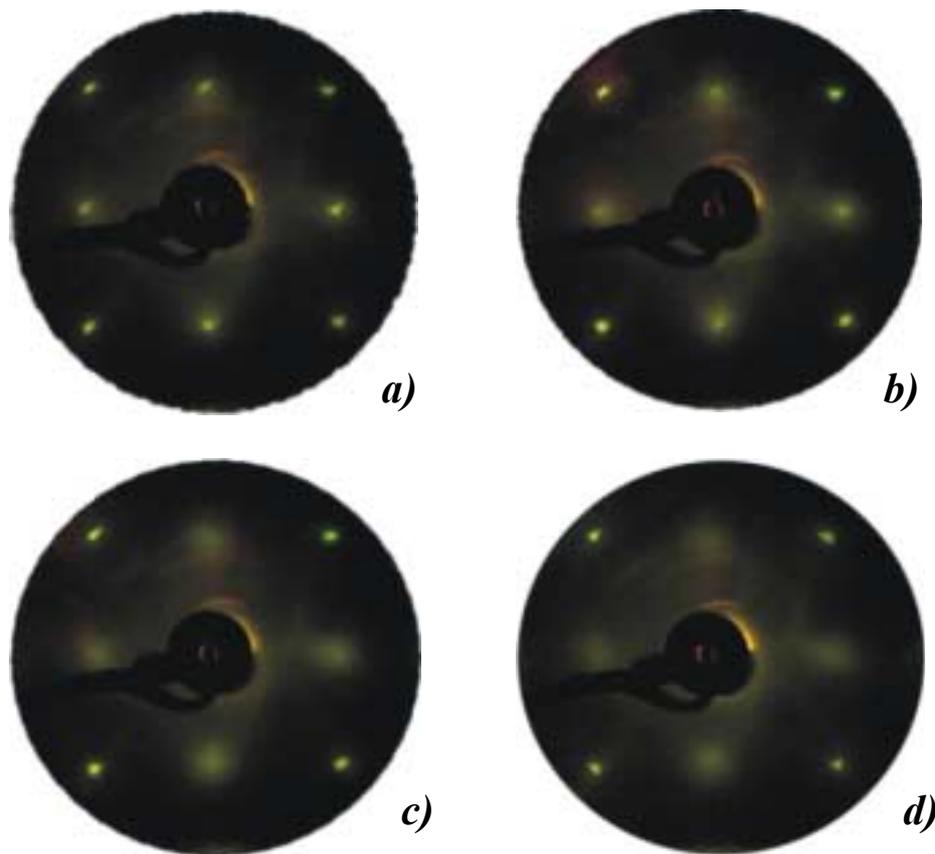


Abbildung 5.6: LEED-Bilder von α -Fe(100)-Filmen gewachsen bei 300 K auf CoGa(100), mit folgenden Schichtdicken: *a)* 1 ML, *b)* 3 ML, *c)* 6 ML und *d)* 10 ML. Die Elektronenenergie betrug 93 eV.

so werden die $(0,\pm 1)$ - und $(\pm 1,0)$ -Reflexe schärfer, gleichzeitig aber verschwinden aus dem LEED-Bild (nicht abgebildet) auch die $(\pm 1,\pm 1)$ -Reflexe. Diese Phasenverschiebung der $(0,\pm 1)$ - und $(\pm 1,0)$ -Reflexe gegenüber den $(\pm 1,\pm 1)$ -Reflexen ist wahrscheinlich auf eine gestufte Oberfläche zurückzuführen.

Um zusätzliche Information über die Struktur und die Morphologie der Fe(100)-Oberfläche zu gewinnen, wurden auch TEAS-Messungen durchgeführt. Abbildung 5.7(*a*) zeigt ein Helium-Beugungsspektrum, aufgenommen in $[001]$ -Richtung unter Anti-Phase Streubedingung nach der Deposition von 10 ML α -Fe(100) bei 300 K. Die Heliumintensität ist als Funktion des parallelen Wellenvektorübertrages aufgetragen. Man erkennt einen kohärent und einen diffus elastisch gestreuten Teil der Heliumintensität. Der kohärente Teil besteht aus den scharfen Beugungsreflexen bei $q_{\parallel} = \pm 2.18 \text{ \AA}^{-1}$ entsprechend den $(0,\pm 1)$ -Reflexen der ersten Ordnung von α -Fe(100) und der scharfen

Spitze bei $q_{\parallel} = 0 \text{ \AA}^{-1}$ entsprechend dem (0,0)-Reflex. Der diffus elastische Teil erscheint in Form eines breiten Fußes des gespiegelten Reflexes, der hauptsächlich durch Streuung an Stufenkanten entsteht.

Abbildung 5.7(b) zeigt das Helium-Beugungsprofil aufgenommen in [011]-Richtung ebenfalls unter Anti-Phase-Interferenzbedingung. Man erkennt auch hier einen breiten Fuß des gespiegelten Reflexes, aber keine Beugungsreflexe erster Ordnung, die

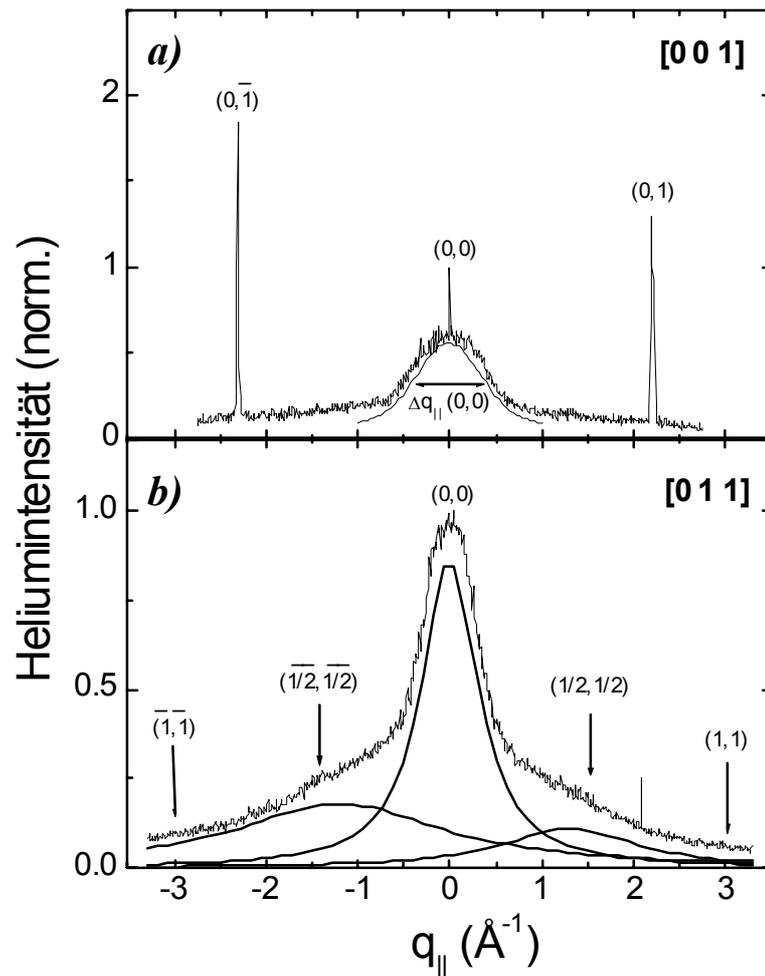


Abbildung 5.7: Heliumbeugungsspektren eines bei 300 K auf der CoGa(100)-Fläche gewachsenen 10 ML dicken Fe-Films, gemessen in **a)** [001]- und **b)** [011]-Richtung. Die Heliumintensität ist in beiden Fällen jeweils auf die Intensität des (0,0)-Reflexes normiert. An beide Spektren sind Lorentz-Kurven angepasst (durchgezogene Linien). Die Messungen wurden bei 300 K mit einer He-Energie von 31.5 meV durchgeführt.

für eine α -Fe(100)-Oberfläche bei $q_{\parallel} = \pm 3.08 \text{ \AA}^{-1}$ zu erwarten sind. Der Grund für die nicht mehr erkennbare erste Ordnung liegt wahrscheinlich in einer schwächeren Korruption in [011]-Richtung als in [001]-Richtung, die daher schwierig experimentell in die Streuebene zu orientieren ist. Auch die Asymmetrie des Beugungsspektrums bestätigt die leichte Fehlorientierung des Azimuts. Zusätzlich erscheinen zwei unerwartete „Schultern“ in den Flanken des gespiegelten Reflexes. Wird das Beugungsspektrum mit drei Lorentz-Kurven angepasst, so sieht man, dass die Maxima der beobachteten Schultern bei $q_{\parallel} = \pm (1.3 \pm 0.2) \text{ \AA}^{-1}$ liegen, also ungefähr dort, wo die zusätzlichen Reflexe einer $c(2 \times 2)$ -Überstruktur zu erwarten sind. Die Ursachen, die zur Anwesenheit dieser Überstruktur führen werden im Kapitel 5.4 diskutiert. Die Breite des mittels einer Lorentz-Funktion angepassten gespiegelten Reflexes beträgt etwa $\Delta q_{\parallel} \cong 0.69 \text{ \AA}^{-1}$ und lässt auf eine relativ stark gestufte Oberfläche mit vielen kleinen, kohärent streuenden Inseln schließen.

Wie in Kapitel 2.1 beschrieben, kann man die Interferenz von an unterschiedlichen Niveaus gestreuten Helium-Partialwellen zur Bestimmung der Stufenhöhe und der Lagenverteilung auf der Oberfläche heranziehen. In Abbildung 5.8 wird die gespiegelte Intensität als Funktion des senkrechten Wellenvektorübertrages q_{\perp} für einen 10 ML dicken Fe-Film, gewachsen auf der CoGa(100)-Oberfläche bei 300 K, dargestellt (graue Punkte). Man erkennt eine ausgeprägte Oszillation der Heliumintensität mit zunehmender Energie der einfallenden Heliumatome. Die Maxima und Minima entsprechen der In-Phase- bzw. Anti-Phase-Interferenzbedingung [137]. Die Intensität des ersten Maximums ist um etwa ein Hundertfaches größer als die des nachfolgenden Minimums, was auf eine ziemlich gestufte Oberfläche schließen lässt. Die Intensitätsmaxima werden bei höheren Werten des senkrechten Wellenvektorübertrages aufgrund des Debye-Waller Effektes stark gedämpft (siehe auch Kapitel 2.1). Aus der Lage der Maxima und Minima lässt sich die Stufenhöhe zu $h = 2\pi / \Delta q_{\perp} \cong 1.4 \pm 0.1 \text{ \AA}$ bestimmen. Dieser Wert stimmt sehr gut mit dem Abstand zweier (100)-Netzebenen eines bcc Fe-Kristalls überein. Die Interferenzkurve in Abbildung 5.8 kann gut mit einer von KRZYZOWSKI [52], ROMAINZYK [53] und TÖLKES [137] (siehe Kapitel 2.1) entwickelten Modellrechnung wiedergegeben werden (schwarze Kurve), wenn man von einer Lagenverteilung wie im Inset der Abbildung 5.8 ausgeht. Nach dieser Lagenverteilung soll die Oberfläche min-

destens drei nicht komplett bedeckte Lagen aufweisen und bestärkt somit die Annahme, dass der Eisenfilm durch Mehrfachlagenwachstum entsteht.

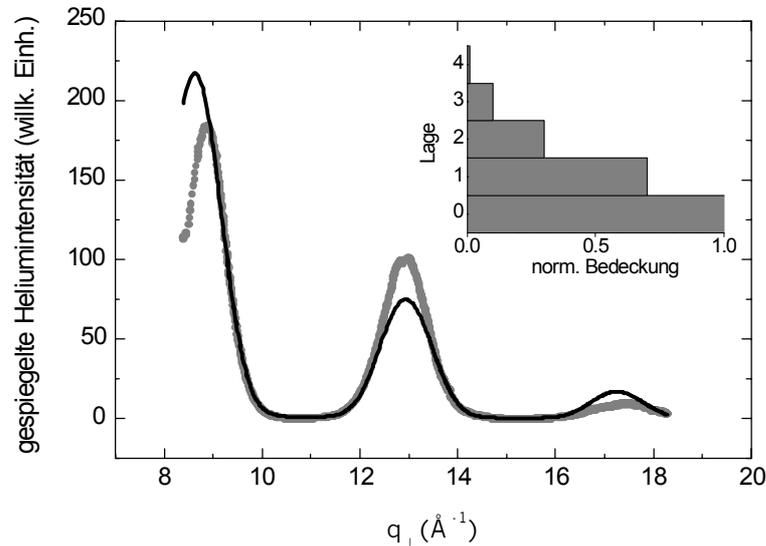


Abbildung 5.8: Helium-Interferenzkurve (graue Punkte) für eine bei 300 K mit 10 ML Fe bedeckte CoGa(100)-Fläche, mit der nach Gleichung 2.20 angepassten Simulationskurve (schwarze Linie) und der daraus bestimmten Lagenverteilung (Inset). Die experimentellen Daten wurden bei einem Gesamtstreuwinkel von 90° aufgenommen.

5.2.3 Diskussion und Zusammenfassung

Wie in Abbildung 5.5 dargestellt ist, zeigt die gespiegelte Heliumintensität sowohl unter Anti-Phase- als auch unter In-Phase-Interferenzbedingung während des Wachstums von Fe auf der CoGa(100)-Oberfläche bei 300 K ein oszillierendes Verhalten. Dieses Verhalten weist auf ein lagenweises Wachstum hin, es wurde bereits von PFLITSCH [94] beobachtet. Seine Interpretation des Wachstumsprozesses basiert unter anderem auf einer in der Wachstumskurve beobachteten Verschiebung der Oszillationen um $\frac{1}{4}$ ML zu höheren Bedeckungen. In Abschnitt 5.2.2 wird jedoch gezeigt, dass die Oszillationen, bei exakter Anti-Phase-Interferenz nur um etwa 0.13 ML zu höheren Bedeckungen verschoben sind. Wie man in Abbildung 5.5 leicht erkennt, hängt der Verlauf der gespiegelten Heliumintensität stark von der Streubedingung ab. Man sieht ein ganz unterschiedliches Verhalten unter Anti-Phase- als unter In-Phase-Interferenzbedingung. So sind z.B. die In-Phase-Oszillationen viel schwächer als die Anti-Phase-Oszillationen, und die Bestimmung der Positionen der entsprechenden Maxima ist dem-

nach mit einer etwas größeren Ungenauigkeit verbunden. Dazu tragen auch mitunter beobachtete Schwankungen der Verdampferparameter bei, die durch entsprechende Änderungen der Aufdampfrate den Intensitätsverlauf beeinflussen können. Während die Aufdampfrate in Ref. [94] etwa 0.9 ML/min betrug, wurde hier das Eisen mit einer Rate von 0.55 ML/min aufgedampft. Ein weiterer Grund für die Unstimmigkeit zwischen den gemessenen Verschiebungen kann auch darin liegen, dass man vermutlich von unterschiedlichen CoGa(100)-Oberflächen ausgeht. Wie in Kapitel 5.1.2 gezeigt wurde, gibt es eine zeitliche Veränderung sowohl der Rekonstruktion als auch der chemischen Zusammensetzung der Oberfläche, als Folge einer durch die Reinigungsprozedur bedingten Ga-Verarmung der CoGa(100)-Oberfläche. Qualitativ kann jedoch die Verschiebung der Maxima zu höheren Bedeckungen ähnlich wie in Ref. [94] interpretiert werden: Da man von einer rekonstruierten CoGa(100)-Oberfläche ausgeht, ist zu erwarten, dass die Fe-Atome in der Anfangsphase des Wachstums freie Plätze an der Oberfläche des CoGa-Kristalls einnehmen.

Eine genaue Interpretation der Wachstumskurven ist besonders bei kleinen Bedeckungen schwierig, da hier auch das wegen der chemischen Zusammensetzung lokal unterschiedliche Reflexionsvermögen der Oberfläche berücksichtigt werden muss. Wie man in Abbildung 5.5(b) erkennt, steigt die gespiegelte Heliumintensität, gemessen unter In-Phase-Interferenzbedingung, oberhalb von 0.5 ML stark an und erreicht bei etwa 3 ML den Höchstwert von 4.3 auf der normierten Skala. Dieses Verhalten wird in der Regel durch eine Abnahme der Defektdichte erklärt. Vergleicht man die LEED-Bilder des Schichtsystems Fe/CoGa(100), aufgenommen bei 1 ML (Abb.5.6(a)) und bei 3 ML (Abb.5.6(b)), so erkennt man eine Verbreiterung und Abschwächung der $(0,\pm 1)$ - und $(\pm 1,0)$ -Reflexe mit zunehmender Bedeckung. Dies deutet auf eine Zunahme der Defektdichte mit der Bedeckung hin. Demnach ist der beobachtete Anstieg der gespiegelten Heliumintensität eher auf eine starke Zunahme des Reflexionsvermögens zurückzuführen. Das Reflexionsvermögen des sich bildenden Fe-Films ist demzufolge größer als das des Substrates und erreicht einen Höchstwert bei etwa 3 ML. Dies führt zu der Annahme, dass das Substrat ab dieser Bedeckung nicht mehr zum gespiegelten He-Strahl beiträgt. Die gebildete Fe-Schicht bedeckt also das Substrat komplett. Weiteres Bedampfen mit Eisen führt zu einem oszillierenden Verhalten der In-Phase-Heliumintensität mit einer Periode von 2 ML, das sich aufgrund einer mit der Bedeckung oszillierenden

Stufendichte erklären lässt. Die Oszillationsperiode von 2 ML deutet auf eine höhere Stufendichte für geradzahlige vollständige Bedeckungen gegenüber ungeradzahligen vollständigen Bedeckungen hin. Die Oszillationen werden mit zunehmender Bedeckung gedämpft und können ab 9 ML nicht mehr aufgelöst werden. Dieser Effekt ist auf ein Aufrauen der Oberfläche zurückzuführen. Der Wachstumsprozess kann also qualitativ in zwei Etappen eingeteilt werden: ein heteroepiktaktisches Wachstum bis zu einer Eisenbedeckung von 3 ML gefolgt von homoepiktaktischem Wachstum bei höheren Bedeckungen. Die gespiegelte Heliumintensität, gemessen unter Anti-Phase-Interferenz, zeigt bis zu 3 ML starke Oszillationen mit einer Periode von einer Monolage und deutet somit auf ein beinahe ideales Lage-für-Lage-Wachstum des Eisens auf der CoGa(100)-Oberfläche bei 300 K hin. Oberhalb von 3 ML werden die Oszillationen aufgrund des Aufrauchens der Oberfläche stark gedämpft, jedoch unterschiedlich für die geradzahligen- (2-te-, 4-te-, 6-te- und 8-te Monolage), bzw. die ungeradzahligen (3-te-, 5-te-, 7-te und 9-te Monolage) vollständigen Bedeckungen, so dass bei 8 ML erst nach einer hundertfachen Vergrößerung das Maximum sichtbar wird und bei 10 ML überhaupt kein Maximum mehr zu erkennen ist. Die Tatsache, dass jedes zweite Maximum kleiner ist als das Vorhergehende, zeigt, dass der Fe-Film eher die Tendenz hat, in Doppellagen aufzuwachsen. Diese Annahme wird durch die unter In-Phase beobachtete Oszillationsperiode von 2 ML bestärkt. Wird die Amplitude der Oszillationen als Funktion der Bedeckung aufgetragen, so erkennt man in beiden Fällen Abnahmen, die ungefähr exponentiell verlaufen (siehe Abb. 5.9).

Dieses Verhalten deutet wiederum auf ein Mehrfachlagenwachstum hin. Es unterscheidet sich vom kinetisch bedingten 3D-Wachstum auch dadurch, dass die Fe-Atome nicht

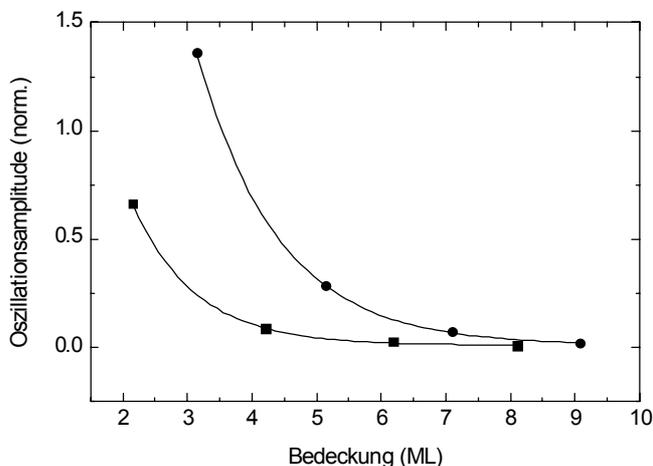


Abbildung 5.9: Amplituden der in Abbildung 5.4(a) dargestellten Oszillationen, aufgetragen als Funktion der Eisenbedeckung für geradzahlige- (■) und ungeradzahlige vollständige Bedeckungen (●). Die durchgezogenen Linien sind exponentielle Anpassungen an die Messdaten.

an der Auftreffstelle verharren, sondern genügend Mobilität besitzen, um 2D-Inseln zu bilden, die kohärent streuen und dazu führen, dass die gespiegelte Intensität nicht einfach exponentiell abnimmt. Die Annahme, dass der Fe-Film in dieser Weise entsteht, wird durch die in Abbildung 5.8 dargestellte Interferenzkurve, gemessen unmittelbar nach der Deposition von 10 ML Eisen, bestärkt. Die mit Hilfe eines Modells von TÖLKE [137] ermittelte Lagenverteilung (siehe Inset in Abb. 5.8) deutet auf eine Fe-Schicht mit mindestens drei nicht komplett bedeckten Lagen hin.

Die Struktur der bei 300 K auf CoGa(100) gewachsenen Fe-Filme wurde auch mittels LEED untersucht. Die Aufnahmen für Schichtdicken zwischen 1 und 10 ML (siehe Abb.5.6) zeigen jeweils eine (1×1)-Struktur gegenüber einer unrekonstruierten CoGa(100)-Oberfläche. Die daraus ermittelte Gitterkonstante beträgt $2.9 \pm 0.1 \text{ \AA}$ und stimmt sehr gut mit der der bcc-Struktur von α -Fe(100) überein. Die He-Beugungsspektren, gemessen an einem 10 ML dicken Fe-Film, bestätigen diese Struktur (siehe Abb.5.7). Gegenüber den LEED-Bildern zeigen die Helium-Beugungsspektren in [011]-Richtung jedoch zusätzliche Reflexe in Form eines modulierten Untergrundsignals. Diese werden mittels Anpassung mit Lorentzkurven bei etwa $\pm 1.4 \text{ \AA}^{-1}$ lokalisiert und deuten somit auf die Existenz einer relativ ungeordneten c(2×2)-Überstruktur. Sie ordnet sich bei 550 K und zeigt sowohl mit LEED als auch mittels TEAS (siehe Kapitel 5.4) scharfe Beugungsreflexe. In Ref. [94] wurde diese Überstruktur als eine Rekonstruktion der Fe(100)-Oberfläche interpretiert, in Kapitel 5.4 wird jedoch gezeigt, dass sie durch Ga-Segregation zustande kommt. Die unter Anti-Phase Streubedingung gemessene gespiegelte Heliumintensität beträgt bei einer Bedeckung von 10 ML nur $7 \cdot 10^{-3}$ auf der normierten Skala (Abb.5.5(a)) und ist somit als Folge starker Interferenzeffekte zu erklären. Diese wiederum entstehen aufgrund einer bei 10 ML bereits relativ stark gestuften Fe(100)-Oberfläche. Die in den Abbildungen 5.7(a) und 5.7(b) gezeigten Beugungsspektren, gemessen in [001]- bzw. [011]- Richtung, bestätigen diese Annahme. Sie zeigen jeweils einen breiten Fuß des gespiegelten (0,0)-Reflexes. Aus der Halbwertsbreite des Fußes kann in beiden Richtungen eine mittlere Terrassenbreite von etwa 10-20 Å abgeschätzt werden. Auch die mittels LEED beobachtete Verbreiterung der (0,±1)- und (±1,0)-Reflexe (siehe Abb.5.5(c), (d)) deuten auf eine stark gestufte Oberfläche hin.

Ein ähnliches Wachstumsverhalten ist auch im Fall des homoepitaktischen Wachstums von Fe auf der Fe(100)-Fläche beobachtet worden [138]. Auch hier nimmt die gespiegelte Heliumintensität als Folge des Aufrauhens der Oberfläche ab.

5.3 Thermische Stabilität des Schichtsystems Fe/CoGa(100)

Um den Temperaturbereich zu bestimmen, in dem die Fe-Filme stabil sind, wurden 6 ML Fe bei 300 K aufgedampft und die Probe mit einer Heizrate von etwa 20 K/min geheizt. Während des Anlassens von 300 auf 1000 K wurde die chemische Zusammensetzung der Oberfläche mittels AES analysiert. In Abbildung 5.10 sind die peak-to-peak Amplituden der AES-Übergänge von Fe (47 eV), Co (775 eV) und Ga(1070 eV) als Funktion der Temperatur dargestellt. Wie man sieht, nimmt das AES-Signal von Fe bei etwa 650 - 700 K ab, während die AES-Intensitäten von Co und Ga

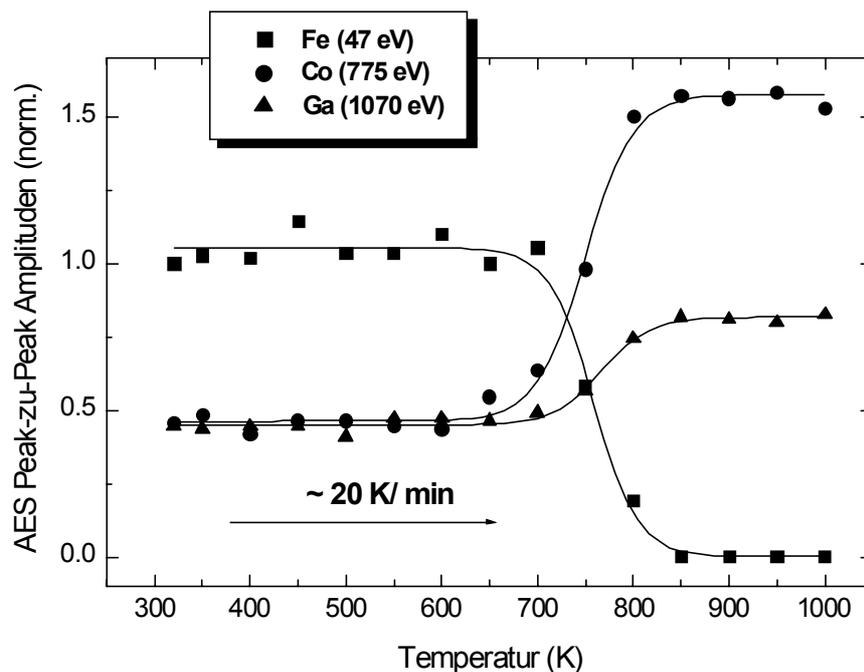


Abbildung 5.10: AES-Messungen an einer 6 ML dicken Fe-Schicht, aufgedampft auf eine CoGa(100)-Fläche bei 300 K, während des Anlassens auf 1000 K. Die Heizrate betrug etwa 20 K/min. Aufgetragen sind dabei die peak-to-peak Amplituden der AES-Übergänge von Fe bei 47 eV (■), von Co bei 775 eV (●) und von Ga bei 1070 eV (▲) als Funktion der Proben-temperatur. Alle drei Amplituden sind auf den Ausgangswert des Fe-Signals normiert. Die durchgezogenen Linien markieren den Verlauf der Messdaten.

dort zunehmen. Dieses Verhalten zeigt, dass Eisen in das CoGa-Substrat, bzw. Co und Ga in die Fe-Schicht diffundieren. Das Verschwinden des Fe-Signals bei 850 K führt zu der Annahme, dass sich der Fe-Film komplett in dem CoGa(100)-Kristall „gelöst“ hat. Diese Beobachtungen stimmen mit der in Ref. [94] Beschriebenen überein und bestätigen, dass der Fe-Film bis 650 K thermisch stabil ist.

5.4 Wachstum von Fe auf CoGa(100) bei 550 K

PFLITSCH [94] hat gezeigt, dass bei einer Temperatur von 550 K atomar glatte Eisenschichten auf der CoGa(100)-Oberfläche als Folge eines beinahe idealen Lagenwachstums präpariert werden können. Neben den Wachstumsprozessen und Struktureigenschaften der Eisenfilme, konzentriert sich diese Arbeit auf Messungen von Diffusionsprozessen (Segregation, Oberflächendiffusion), die während des Eisenwachstums stattfinden. In Ergänzung zu Ref. [94] wurden die Wachstumsprozesse bei 550 K, wie bereits bei Raumtemperatur (siehe Kap.5.3), sowohl unter ion-phase- als auch unter Anti-Phase-Interferenzbedingung untersucht.

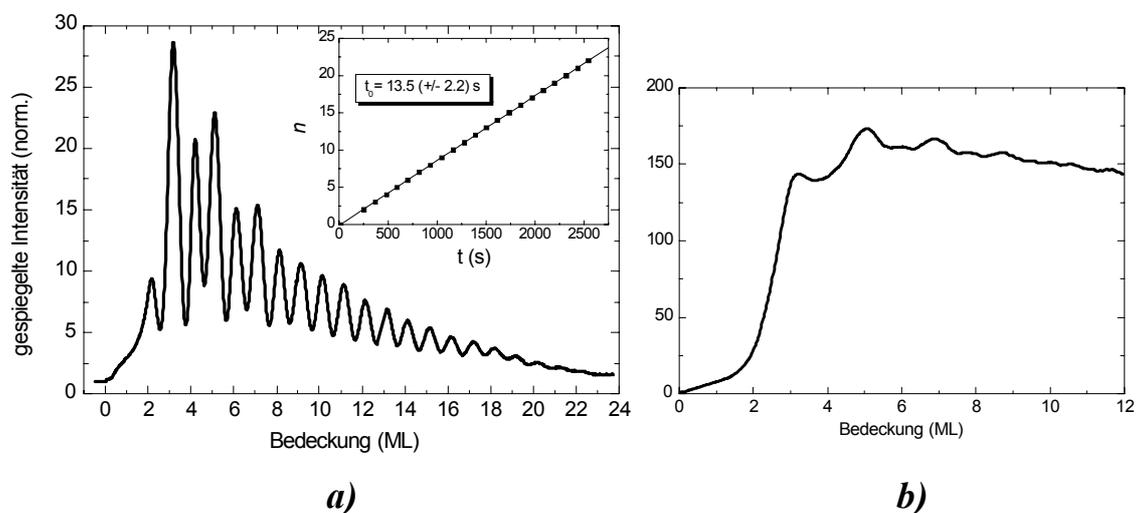


Abbildung 5.11: Gespiegelte Heliumintensität aufgenommen während des Wachstums von Fe auf CoGa(100) bei 550 K unter **(a)** Anti-Phase- und **(b)** unter In-Phase-Interferenzbedingung. Beide Kurven sind als Funktion der Eisenbedeckung aufgetragen. Die Aufdampftrate betrug 0.55 ML/min. Die gespiegelte Heliumintensität wurde jeweils auf die Intensität der reinen CoGa-Fläche normiert. Das Inset in **(a)** stellt die Anzahl n der Oszillationen als Funktion der Aufdampfzeit dar, wobei die durchgezogene Linie eine lineare Anpassung der Messdaten repräsentiert.

5.4.1 Wachstumsprozess von Fe auf CoGa(100) bei 550 K

Abbildung 5.11 zeigt die gespiegelte Heliumintensität, aufgenommen als Funktion der Eisenbedeckung während des Wachstums von Fe auf der CoGa(100)-Oberfläche bei 550 K unter (a) Anti-Phase- und (b) unter In-Phase-Interferenzbedingung. Die Intensität ist in beiden Fällen auf die gespiegelte Heliumintensität der reinen CoGa(100)-Oberfläche normiert. Die Energie der einfallenden Heliumatome betrug $E_{\text{in}} = 20.1 \text{ meV}$ für die In-Phase-, bzw. $E_{\text{anti}} = 31.5 \text{ meV}$ für die Anti-Phase-Interferenz.

Unter Anti-Phase-Interferenz beobachtet man deutliche Oszillationen bis zu einer Bedeckung von 22 ML. Dieses Verhalten deutet auf ein beinahe ideales Lage-für-Lage-Wachstum hin. Unter dieser Voraussetzung kann jeder kompletten Monolage ein Maximum der gespiegelten Heliumintensität zugeordnet werden. Davon ausgehend lässt sich die Depositionsrate mit großer Genauigkeit bestimmen. Dazu wurde die Ordnungszahl n der Oszillationsmaxima als Funktion der Zeit aufgetragen, ausgenommen das erste Maximum, das nicht komplett aufgelöst werden konnte. Die aufgetragenen Messpunkte wurden anschließend mit einer Geraden angepasst. Aus der Steigung dieser Geraden ergibt sich eine Depositionsrate von 0.52 ML/min. Wie im Fall des Wachstums bei 300 K, geht auch hier die Gerade nicht durch den Nullpunkt, sondern schneidet die Zeitachse bei $t_0 = 13.5 \pm 2.2 \text{ s}$. Dies zeigt, dass sich die Oszillationsmaxima nicht wie erwartet bei Vielfachen einer Monolage befinden, sondern jeweils um $\theta_0 = 0.12 \pm 0.02 \text{ ML}$ zu höhere Bedeckungen verschoben sind. Dieser Wert stimmt mit der bei 300 K, aber nicht mit der in Ref. [94] gemessenen Verschiebung überein. Mögliche Ursachen für diese Unstimmigkeit wurden im Abschnitt 5.3.3 diskutiert. Wie man in Abbildung 5.11(a) erkennt, steigt die gespiegelte Heliumintensität I_{anti} schon unmittelbar nach Beginn des Wachstums rasch an und erreicht nach einem ersten kleinen Maximum bei 2.12 ML fast die dreißigfache Intensität der reinen Oberfläche, bei einer Bedeckung von 3.12 ML. Bis zur siebten Monolage zeigt die Intensität ein ähnliches Verhalten wie während des Wachstums bei 300 K: Die Maxima bei 5 ML, bzw. bei 7 ML sind jeweils höher als die vorhergehenden Maxima, was auf die Tendenz des Eisenfilms zum Doppellagenwachstum zurückzuführen ist. Oberhalb von 7 ML nimmt die Amplitude der Oszillationen mit zunehmender Bedeckung ständig ab, bis etwa ab 22 ML kei-

ne deutlichen Oszillationen mehr zu erkennen sind. Dieses Verhalten deutet auf ein nicht ideales Lage-für-Lage-Wachstum hin, d.h. vor dem Auffüllen einer Lage wird die folgende bereits begonnen.

Auch unter In-Phase-Interferenzbedingung nimmt die gespiegelte He-Intensität gleich nach Beginn des Wachstums stark zu und erreicht bei ~ 5 ML etwa die dreihundertfache Intensität im Vergleich zur reinen CoGa(100)-Oberfläche. Dies zeigt, dass der Fe-Film bei dieser Bedeckung eine sehr glatte Oberfläche besitzt, aber auch, dass das Reflexionsvermögen des Fe-Films viel größer ist als das der reinen CoGa(100)-Oberfläche. Wie man sieht, zeigt die Intensität erst ab 3 ML ein oszillierendes Verhalten. Die Oszillationen sind jedoch schwach und werden mit zunehmender Bedeckung gedämpft. Infolgedessen sind ab etwa 9 ML keine Oszillationen mehr zu erkennen und die Intensität zeigt eine leichte und ungefähr lineare Abnahme. Offenbar nimmt die Stufendichte nur wenig zu, d.h. die Eisenoberfläche bleibt zumindest bis zu 12 ML Eisen immer noch atomar glatt und wohlgeordnet.

5.4.2 Struktur und Morphologie der Eisenfilme

Die Struktur der Eisenfilme wurde in Ref. [94] mittels LEED und TEAS in Abhängigkeit von der Schichtdicke untersucht. Die LEED-Aufnahmen zeigten eine (1×1) -Struktur für $\Theta < 7$ ML und eine $c(2\times 2)$ -Überstruktur für $\Theta > 7$ ML, wobei Θ die Eisenbedeckung darstellt. Die in $[011]$ -Richtung aufgenommenen Beugungsspektren zeigten jedoch schon bei 3 ML schwache und breite Reflexe halber Ordnung, die auf die Existenz einer relativ ungeordneten $c(2\times 2)$ -Überstruktur hinweisen. Diese Reflexe wurden mit zunehmender Eisenbedeckung immer schärfer und bestätigten somit die im LEED beobachtete Oberflächentransformation aus der (1×1) -Struktur (oder zum Teil ungeordneten $c(2\times 2)$ -Überstruktur) in eine geordnete $c(2\times 2)$ -Überstruktur ab Schichtdicken von etwa 7 ML. Während die (1×1) -Struktur einer α -bcc-Fe(100)-Oberfläche zugeordnet werden konnte, ist die beobachtete Überstruktur als eine Rekonstruktion der Eisenschicht interpretiert worden. Für reines Eisen ist jedoch ein derartiger Prozess nicht zu erwarten. Zur Erklärung dieses Effekts wurden im Rahmen der vorliegenden Arbeit daher zusätzliche Experimente durchgeführt, die im Kapitel 5.4.3 detailliert beschrieben werden.

5.4.2.1 Oberflächenstruktur

Abbildung 5.12(a) zeigt ein LEED-Bild, aufgenommen von einem auf der CoGa(100)-Oberfläche gewachsenen Fe-Film, mit einer Schichtdicken von etwa 24 ML, bei einer Primärenergie der Elektronen von 93 eV. Man sieht die für Schichtdicken > 7 ML typische $c(2\times 2)$ -Struktur, wie sie auch in Ref. [94] beobachtet wurde. Zur besseren Orientierung ist in Abbildung 5.12(b) ein LEED-Schema der beobachteten Struktur beigefügt, in welcher die TEAS-Messrichtungen eingezeichnet sind.

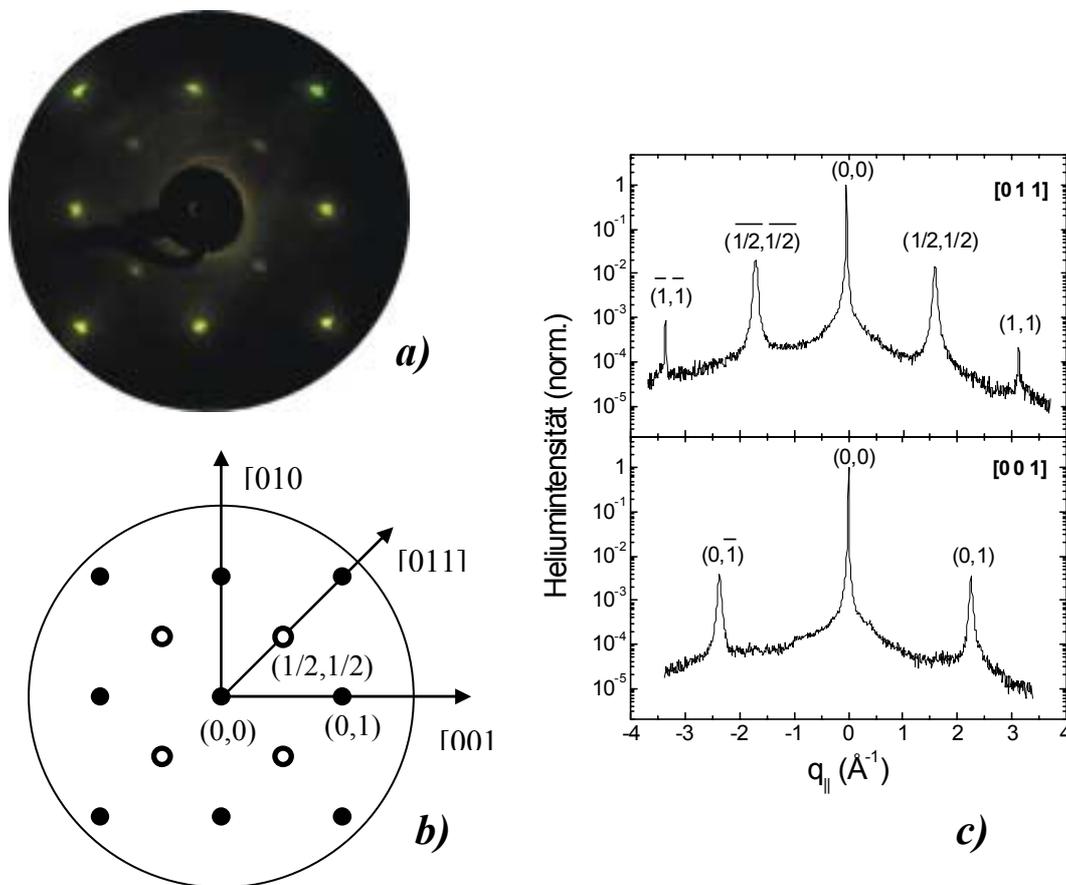


Abbildung 5.12: Oberflächenstruktur des Schichtsystems Fe/CoGa(100), gewachsen bei 550 K: **a)** LEED-Bild, aufgenommen für eine Fe-Bedeckung von 10 ML bei $E = 93$ eV; **b)** Schema der Reflexe: Die vollen Kreise entsprechen einer (1×1) -Struktur, die leeren Kreise symbolisieren zusätzliche Reflexe einer $c(2\times 2)$ -Überstruktur; **c)** He-Beugungsspektren gemessen in $[001]$ - und $[011]$ -Richtung für eine Fe-Bedeckung von 24 ML. Die Heliumintensität ist jeweils auf die Intensität des $(0,0)$ -Reflexes normiert. Die He-Energie betrug 22.6 meV.

Auch die in Abbildung 5.12(c) dargestellten Helium-Beugungsspektren, gemessen bei einer Energie von 22.6 meV in [001]- bzw. in [011]-Richtung, bestätigen die Existenz dieser Überstruktur. Das Beugungsmuster zeigt also eine quadratische Struktur, welche gegenüber der α -Fe(100)-Struktur um 45° gedreht ist. Die Gitterkonstante der unrekonstruierten α -Fe(100)-Oberfläche beträgt im reziproken Raum $a^* = 2.19 \text{ \AA}^{-1}$, bzw. $a = 2.87 \text{ \AA}$ im Realraum. Folglich beträgt die Gitterkonstante der beobachteten Überstruktur $b^* = 1.55 \text{ \AA}^{-1}$ im reziproken Raum und $b = 4.06 \text{ \AA}$ im Realraum. Hier soll noch bemerkt werden, dass diese Überstruktur auch beobachtet wird, wenn man den Eisenfilm bei 300 K wachsen lässt und anschließend bei 550 K ausheilt.

5.4.2.2 Die Verteilung der Eisenlagen

Wie im Abschnitt 5.4.1 gezeigt wurde, wächst der Eisenfilm bei 550 K bis zu Bedeckungen von mindestens 24 ML nahezu Lage-für-Lage auf. Demnach ist auch bei größeren Schichtdicken eine ziemlich glatte Oberfläche zu erwarten. Um dies zu überprüfen, wurde auch nach dem Fe-Wachstum bei 550 K eine Interferenzkurve aufgenommen. In Abbildung 5.13 ist die gespiegelte Heliumintensität als Funktion des senkrechten Wellenvektorübertrages dargestellt. Die Messung wurden mit einer 24 ML-

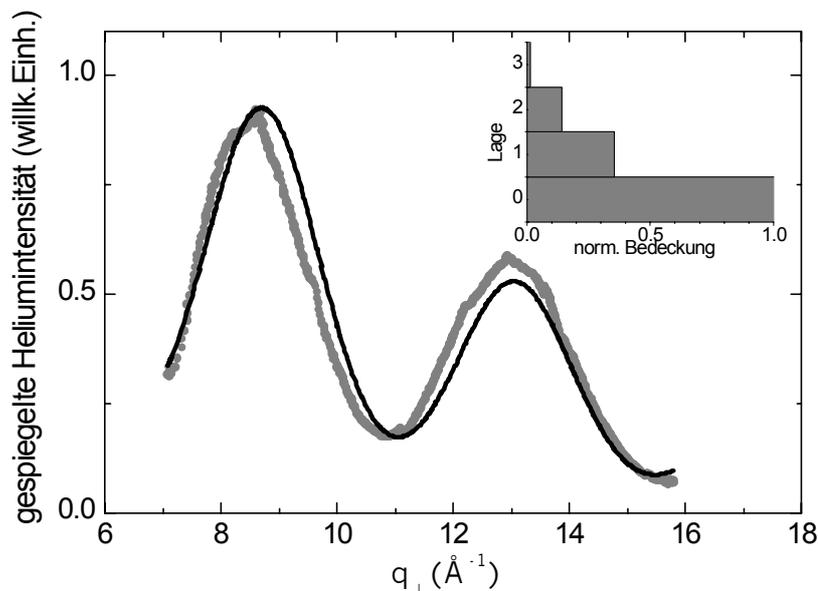


Abbildung 5.13: Helium-Interferenzkurve (graue Punkte) für eine bei 550 K mit 24 ML Fe bedeckte CoGa(100)-Fläche mit der nach Gleichung 2.20 angepassten Simulationskurve (schwarze Linie) und der daraus bestimmten Lagenverteilung (Inset).

dicken Fe-Schicht bei 300 K durchgeführt. Aus der Position der Maxima und Minima lässt sich die Stufenhöhe zu $h \cong 1.43 \pm 0.05 \text{ \AA}$ bestimmen. Dies entspricht auch in diesem Fall dem Abstand zweier (100)-Netzebenen eines bcc Fe-Kristalls. Wird die Interferenzkurve mittels der Gleichung 2.8 angepasst, so führt dies zu der in dem Inset der Abbildung 5.13 dargestellten Lagenverteilung. Dies zeigt mindestens drei unvollständige Lagen und deutet somit auf ein nicht ideales Lagenwachstum hin. Die Oberfläche bleibt jedoch auch bei diesen hohen Bedeckungen immer noch relativ glatt und wohlgeordnet. Gegenüber der He-Interferenzkurve in Abbildung 5.8 sieht man hier weniger ausgeprägte Oszillationen. Während in Abbildung 5.8 das Verhältnis zwischen den Maxima und den Minima der He-Intensität einen Höchstwert von etwa 200 erreicht, beträgt dieser Wert hier nur etwa 4.5 und deutet somit auf eine viel geringere Stufendichte hin als im Fall des Fe-Wachstums bei 300 K.

5.4.3 Chemische Zusammensetzung der Eisenfilme

In diesem Kapitel wird der Frage nachgegangen, ob die beobachtete $c(2 \times 2)$ -Struktur auf eine Rekonstruktion des Eisenfilms oder auf eine Überstruktur, verursacht von Fremdatomen, zurückzuführen ist. Um zwischen einer Rekonstruktion und einer durch Segregation von Fremdatomen entstandenen Überstruktur unterscheiden zu können, ist eine genaue Kenntnis der chemischen Zusammensetzung der Oberfläche erforderlich. Ohne diese Kenntnis ist eine zweifelsfreie Interpretation der beobachteten Überstruktur nicht möglich.

In der vorliegenden Arbeit wurde die chemische Zusammensetzung der Fe-Filme mittels AES untersucht. Dazu wurden AES-Spektren während des Wachstums von Fe auf der CoGa(100)-Oberfläche bei 550 K aufgenommen und die peak-to-peak Amplituden der AES-Übergänge von Fe bei 47 eV und 598 eV, von Co bei 775 eV und von Ga bei 1070 eV gemessen. Diese sind in Abbildung 5.14 als Funktion der Eisenbedeckung aufgetragen. Die Intensitäten der AES-Übergänge von Fe sind normiert auf die bei einer Bedeckung von 40 ML gemessenen Werte, während die Intensitäten der AES-Übergänge von Co und Ga auf deren Ausgangswerte normiert sind. Das Fe-Signal zeigt sowohl bei 47 eV, als auch bei 598 eV einen Anstieg der Intensität mit zunehmender Eisenbedeckung. Wie man sieht, weisen beide Kurven einen nahezu identischen Verlauf auf, mit einer Sättigung oberhalb von 20 ML. Die peak-to-peak Amplitude des Co-

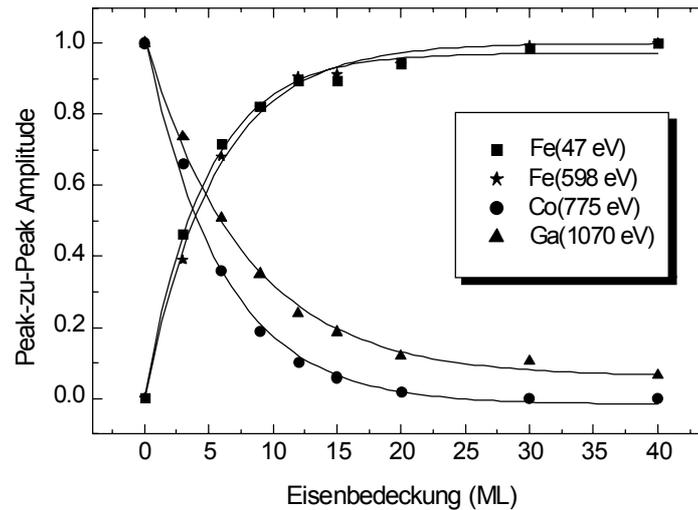


Abbildung 5.14: Peak-to-peak Amplitude der AES-Übergänge von Fe (47 eV, 598 eV), Co (775 eV) und Ga(1070 eV) als Funktion der Eisenbedeckung, aufgenommen während des Wachstums von Fe auf der CoGa(100)-Fläche bei 550 K. Das Eisen wurde mit einer konstanten Rate von 0.52 ML/ min aufgedampft.

Übergangs nimmt ab und verschwindet bei etwa 20 ML im Untergrundsignal, d.h. $I^{\text{Co}}(\Theta > 20 \text{ ML}) / I^{\text{Co}}(0) < 0.01$. Ein derartiges Verhalten ist gemäß Gleichung 2.32 zu erwarten. Dazu wird die mittlere freie Weglänge der Elektronen bei 775 eV anhand von Gleichung 2.34 zu 12.3 \AA ($\cong 8.6 \text{ ML}$) berechnet. Da für Fe-Bedeckungen $\Theta > 20 \text{ ML}$ kein Co-Signal detektiert wird, kann man schließen, dass sich bei 40 ML Fe kein Kobalt in den oberflächennahen Fe-Schichten befindet, also keine Co-Segregation stattfindet. Die mittlere freie Weglänge der Augerelektronen des Ga-Übergangs bei 1070 eV beträgt nach Gleichung 2.34 etwa 14.6 \AA . Dieser Wert ist nur um etwa 20% höher als bei 775 eV. Dennoch erkennt man auch bei 40 ML noch ein deutliches Ga-Signal. Die peak-to-peak Amplitude beträgt bei dieser Bedeckung $I^{\text{Ga}}(40 \text{ ML}) / I^{\text{Ga}}(0) \approx 0.06$ und deutet somit auf die Anwesenheit von Ga-Atomen in den oberflächennahen Fe-Schichten hin.

Diese Schlussfolgerung wird durch das in Abbildung 5.15 dargestellte AES-Spektrum (a), aufgenommen bei einer Schichtdicken von 40 ML Fe, unterstützt. Es zeigt neben dem für Eisen charakteristischen AES-Übergang bei $47.5 \pm 0.2 \text{ eV}$, zwei weitere AES-Übergänge, und zwar bei $52.7 \pm 0.2 \text{ eV}$ und bei $56.5 \pm 0.2 \text{ eV}$. Der erste davon befindet sich ungefähr an der gleichen Stelle wie der AES-Übergang von Co bei

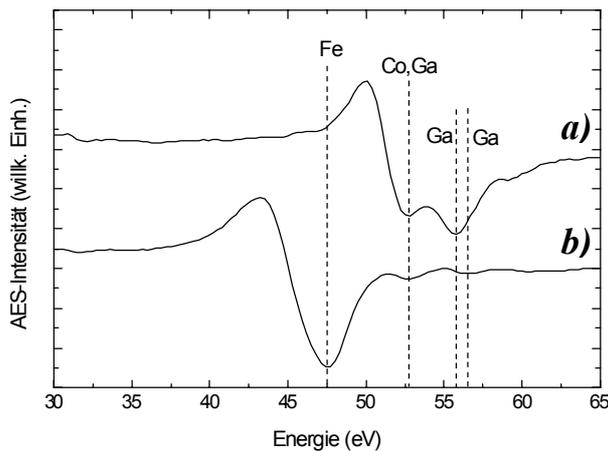


Abbildung 5.15: AES-Spektren der reinen (a) und der mit 40 ML Fe bei 550 K bedampften CoGa(100)-Oberfläche (b).

53 eV, entsprechend der reinen CoGa(100)-Oberfläche (siehe Spektrum (b)). Dieser überschneidet sich mit dem Ga-Übergang bei ~ 52 eV so dass die beiden nicht zu unterscheiden sind. Der zweite AES-Übergang stimmt gut mit dem an der reinen CoGa(100)-Oberfläche gemessenen Ga-Übergang bei 55 eV überein, ist jedoch gegenüber diesem um etwa 0.7 eV zu höheren Energien verschoben. Wie schon gezeigt, sind bei dieser Bedeckung keine hochenergetischen Co-Übergänge zu sehen, so dass eine Segregation von Kobalt ausgeschlossen werden kann und demnach auch keine niederenergetischen Co-Übergänge zu erwarten sind. Infolgedessen sind die in Spektrum (a) beobachteter zusätzlicher AES-Übergänge höchstwahrscheinlich Ga-Übergänge. Die Beobachtung der Ga-Übergänge sowohl im niederenergetischen als auch im hochenergetischen Bereich des AES-Spektrums bei 40 ML dicken Fe-Schichten weist auf eine Anreicherung der Fe-Schicht mit Gallium hin. Der Zusammenhang zwischen der Ga-Segregation und der $c(2 \times 2)$ -Überstruktur wird im Abschnitt 5.4.4 erläutert.

Energie (eV)	λ_{exp} (Å)	λ_{calc} (Å)
47	9.1 ± 0.5	5.5
598	10.3 ± 0.6	10.9
775	11.3 ± 0.7	12.4
1070	14.8 ± 0.8	14.6

Anschließend soll noch bemerkt werden, dass sich aus der in Abbildung 5.14 dargestellten Bedeckungsabhängigkeit der peak-to-peak Amplituden die mittlere freie Weglänge der Elektronen im Fe(100)-Film bei den gegebenen Energien bestimmen lässt. Zu diesem Zweck wird die Intensität des Fe-Signals mittels der Gleichung 2.33 und die Intensität des Co-Signals mittels der Gleichung 2.32 ange-

passt. Im Falle des Ga-Signals ist eine direkte Anpassung nach Gleichung 2.32 nicht möglich. Geht man aber davon aus, dass sich die segregierten Ga-Atome hauptsächlich auf der Oberfläche befinden, so kann man annehmen, dass diese zum gesamten Ga-Signal mit einem konstanten Wert von etwa $0.06 \cdot I^{\text{Ga}}(0)$ beitragen. Zieht man diesen Betrag vom Ga-Signal ab, so kann dieser auch mittels der Gleichung 2.32 angepasst werden. Die in dieser Weise bestimmten Werte der mittleren freien Weglänge der Elektronen im Fe(100)-Film bei den vier genannten Energien sind in der Tabelle 5.1 aufgelistet. In der letzten Spalte sind zum Vergleich auch die anhand der Gleichung 2.34 berechneten Werte eingetragen. Man erkennt eine sehr gute Übereinstimmung, außer bei 47 eV, wo der experimentell ermittelte Wert um etwa 65% höher ist als der berechnete. Dies zeigt, dass die empirische Gleichung 2.34 von SEAH und DENCH [68] zumindest bei höheren Energien sehr zuverlässige Werte für die mittlere freie Weglänge der Elektronen liefert.

5.4.4 Ga-Überstruktur oder Fe-Rekonstruktion?

Um zu klären, ob die Ga-Segregation für die beobachtete $c(2 \times 2)$ -Überstruktur verantwortlich ist, wurde ein weiteres Experiment durchgeführt: Die 40 ML dicke Fe-Schicht, gewachsen bei 550 K, wurde zehn Minuten lang bei 300 K einem Ar^+ -Ionenbeschuss mit 800 eV unter einem Auftreffwinkel von 45° ausgesetzt. Bei diesen Bedingungen werden schätzungsweise etwa 3 - 4 atomare Lagen von der Oberfläche entfernt. Das unmittelbar danach bei einer Energie von 93 eV aufgenommene LEED-Bild zeigt immer noch eine geordnete Struktur, jedoch keine erkennbaren $(\pm 1/2 \pm 1/2)$ -Reflexe, die der $c(2 \times 2)$ -Struktur entsprechen würden (Abb. 5.16(a)). Die breiten Reflexe in $[001]$ -, bzw. in $[010]$ -Richtung deuten, ähnlich wie im Fall der bei Raumtemperatur gewachsenen Fe-Schichten, auf ein Aufrauen der Oberfläche hin. Dies ist, bedingt durch den Ionenbeschuss ohne anschließende Ausheilphase, auch zu erwarten. Das von dieser Fläche aufgenommene AES-Spektrum zeigt weder im niederenergetischen (Abb. 5.17 -Spektrum (b)), noch im hochenergetischen Bereich (nicht abgebildet) erkennbare AES-Übergänge von Gallium. Zum Vergleich ist in Abbildung 5.17 (Spektrum (a)) noch einmal das AES-Spektrum der 40 ML dicken Fe-Schicht unmittelbar nach dem Wachstum auf der CoGa(100)-Oberfläche bei 550 K dargestellt. Man sieht, dass die AES-Übergänge von Ga bei 52.7 eV und 56.5 eV nach Ar^+ -Ionenbeschuss der Fe-

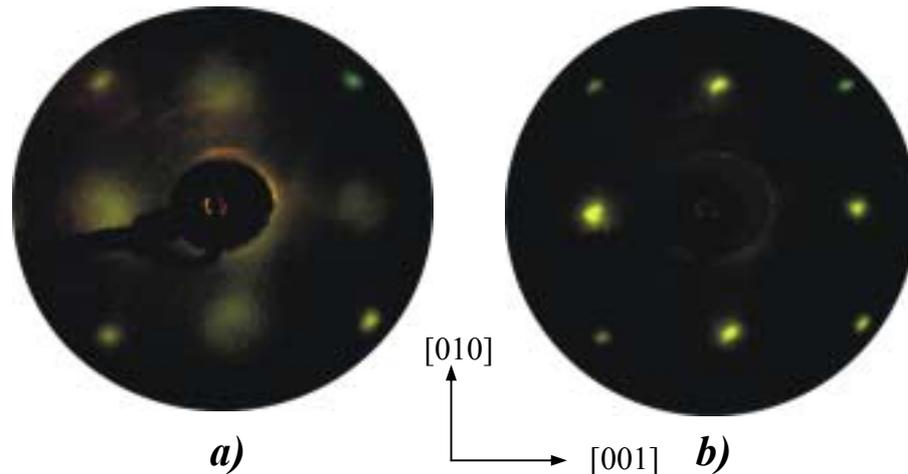


Abbildung 5.16: Bei 93 eV aufgenommene LEED-Bilder einer 40 ML dicken Eisenschicht, gewachsen auf der CoGa(100)-Fläche bei 550 K: **a)** nach Ar^+ -Ionenbeschuss bei 300 K und **b)** nach Ar^+ -Ionenbeschuss und anschließendem Ausheilen für 20 Minuten bei 550 K.

Schicht verschwinden. Da höchstens 3 - 4 Schichten von der Oberfläche entfernt worden sind, bestärkt dies die Vermutung, dass Ga-Atome während des Wachstums an der Oberfläche des Fe-Films verweilen. Da das Verschwinden der $c(2 \times 2)$ -Überstruktur auch als Folge der durch den Ionenbeschuss verursachten Unordnung erklärt werden könnte, lässt sich dies nicht direkt mit der Abwesenheit des Galliums an der Oberfläche korrelieren. Deswegen wurde anschließend die Fe-Schicht für 20 Minuten auf 550 K angelassen und dann auf Raumtemperatur abgekühlt. Auch diesmal zeigt das AES-Spektrum (Abb.5.17- Spektrum (c)) keine Ga-Übergänge. Würde man nun im LEED-Bild wieder eine $c(2 \times 2)$ -Struktur beobachten, so wäre dies als eine Rekonstruktion der Fe-Schicht zu interpretieren. Das in Abbildung 5.16(b) dargestellte LEED-Bild zeigt jedoch nur die scharfen Reflexe entsprechend einer (1×1) -Struktur. Das Ausheilen einer reinen Fe-Schicht bei 550 K, also in Abwesenheit der Ga-Atome, führt demnach nicht zu einer Rekonstruktion der Fe(100)-Oberfläche, wie es zunächst der Fall zu sein scheint, wenn man eine bei 300 K gewachsene Eisenschicht bei 550 K ausheilt. Demzufolge ist die unmittelbar nach dem Wachstum beobachtete $c(2 \times 2)$ -Struktur auf eine Ga-Überstruktur zurückzuführen. Sind die segregierten Ga-Atome über mehrere Lagen an der Oberfläche verteilt, so kann man sogar von einer Oberflächenlegierung sprechen. Eine Legierung, bestehend aus Gallium und Eisen, die eine $c(2 \times 2)$ -Struktur gegenüber der α -Fe(100)-

Oberfläche zeigt, ist α -Fe₃Ga mit der (100)-Fläche parallel zu der Fe(100)-Oberfläche [87].

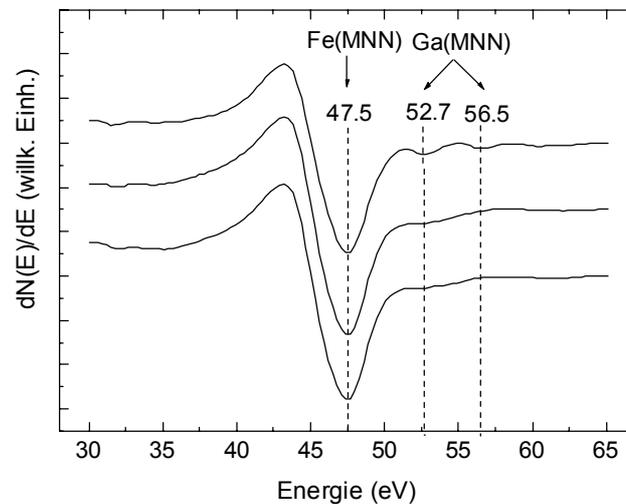


Abbildung 5.17: AES-Spektren einer 40 ML dicken Fe-Schicht gewachsen auf der CoGa(100)-Fläche bei 550 K: **a)** unmittelbar nach der Deposition, **b)** nach Ar⁺-Ionenbeschuss bei 300 K für 10 Minuten (U= 800 eV und 1 μ A) und **c)** nach Ar⁺-Ionenbeschuss und anschließendem Ausheilen bei 550 K für 20 Minuten.

Zum Schluss soll noch geklärt werden, inwieweit die Ga-Segregation das lagenweise Wachstum beeinflusst. Zu diesem Zweck wurden weitere 10 ML Fe bei 550 K auf der 40 ML dicken, wie oben präparierten Ga-freien Fe-Schicht aufgedampft. Die Struktur und die Schärfe der Beugungsreflexe im LEED bleiben nahezu unverändert. Dies deutet auf ein lagenweises Wachstum auch in Abwesenheit des Galliums an der Oberfläche hin. Daraus kann man schließen, dass das beobachtete Lage-für-Lage-Wachstum von Fe auf der CoGa(100)-Oberfläche bei 550 K hauptsächlich durch eine hohe Mobilität der Fe-Atome und weniger durch die Ga-Segregation bestimmt wird.

5.4.5 Oberflächendiffusion in den Fe-Schichten

Abbildung 5.18 zeigt den Verlauf der gespiegelten Heliumintensität als Funktion der Aufdampfzeit während des Wachstums von Fe auf der CoGa(100)-Oberfläche bei 550 K (Bereich I). Der Shutter des Eisenverdampfers wurde nach dem Aufdampfen von 5 ML Eisen geschlossen und die gespiegelte Heliumintensität weiter bei 550 K als Funktion der Zeit aufgenommen (Bereich II). Die gespiegelte Heliumintensität ist in beiden Fällen unter Anti-Phase-Interferenzbedingung gemessen worden. Man sieht,

dass die Intensität auch nach Beendigung der Deposition weiter ansteigt und nach etwa 30 Minuten Ausheilen fast das Doppelte der Intensität, gemessen unmittelbar nach der Deposition, erreicht. Dieser Effekt wurde schon von PFLITSCH [94] beobachtet und lässt sich durch die an der Oberfläche der Eisenschicht ablaufenden Diffusionsprozesse erklären. Er zeigt, dass das Wachstum von Fe auf der CoGa(100)-Oberfläche bei 550 K nicht im thermodynamischen Gleichgewicht stattfindet, es ist eine von der Proben temperatur abhängige Zeitspanne erforderlich, um den Fe-Film in den dabei bestmöglich geordneten Zustand zu bringen. Die Oberflächendiffusion ermöglicht es hierbei, die gesamte freie Oberflächenenergie zu minimieren.

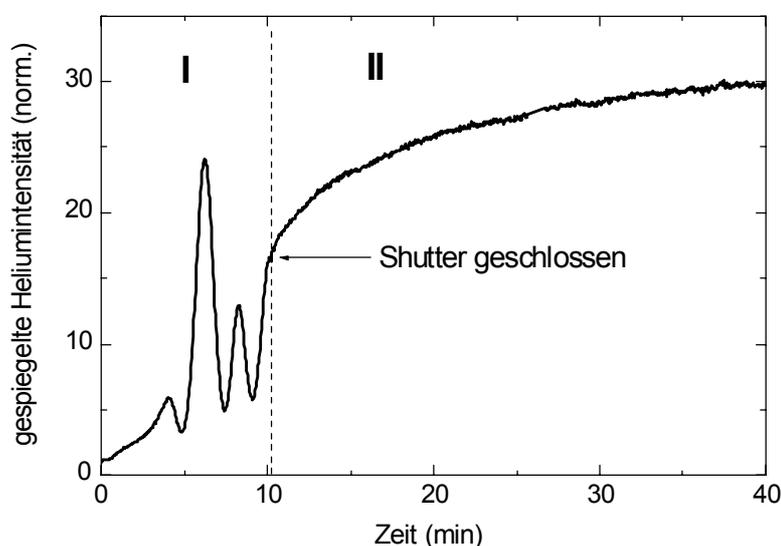


Abbildung 5.18: Gespiegelte Heliumintensität als Funktion der Zeit, während des Wachstums von Fe auf der CoGa(100)-Fläche bei 550 K (Bereich I) bzw. während des Anlassens einer 5 ML dicken Fe-Schicht bei 550 K (Bereich II). Die Energie der He-Atome betrug 31.5 meV (Anti-Phase-Interferenzbedingung). Die Aufdampf rate lag bei 0.52 ML/ min. Der Shutter des Verdampferofens wurde nach der Deposition von 5 ML Fe geschlossen.

Es ist zu erwarten, dass der Verlauf der gespiegelten Heliumintensität unter anderem von der Anlasstemperatur abhängt. Um diese Abhängigkeit zu untersuchen, wurde die Proben temperatur unmittelbar nach der Deposition von 5 ML Eisen bei 550 K auf verschiedene Werte zwischen 550 und 600 K erhöht und die gespiegelte Heliumintensität unter Anti-Phase-Interferenzbedingung als Funktion der Zeit aufgenommen. In Abbildung 5.19 wird die Heliumintensität am Beispiel von drei der Anlasstemperaturen, und zwar bei 550, 575 und 600 K, dargestellt. Sie ist jeweils auf die unmittelbar nach der Deposition gemessene normiert und zeigt bei allen drei Temperaturen ein qualitativ

ähnliches Verhalten: Sie nimmt ständig zu und erreicht nach einer gewissen Zeit eine Sättigung. Diese ist bei den drei Temperaturen fast gleich hoch. Die drei Kurven zeigen jedoch unterschiedliche Anfangssteigungen der Heliumintensität. Während die Sättigung bei 550 K (Kurve (a)) erst nach ~ 80 Minuten erreicht wird, zeigt die Intensität bei 575 K (Kurve (b)) nach etwa 35 Minuten und bei 600 K (Kurve (c)) schon nach ungefähr acht Minuten einen nahezu konstanten Wert. Je höher also die Anlasstemperatur T ist, desto größer ist die Diffusionskonstante D bzw. desto schneller erreicht die Fe-Schicht ihr thermisches Gleichgewicht. Die Abhängigkeit der Intensität von der Zeit in Abbildung 5.19 lässt sich für die drei Temperaturen durch folgende Funktion anpassen (schwarze Linien):

$$I(t)/I(0) = A_0 - A_1 e^{-t/\tau_1} - A_2 e^{-t/\tau_2} \quad (5.1)$$

wobei A_0 , A_1 , A_2 Konstanten darstellen. Die Form der Funktion $I(t)$ deutet auf die Existenz zweier Diffusionsprozesse mit den Zeitkonstanten τ_1 und τ_2 hin, die umgekehrt proportional zu den Diffusionskonstanten D_1 und D_2 sind:

$$\tau_1 \propto 1/D_1 \quad \text{und} \quad \tau_2 \propto 1/D_2 \quad (5.2)$$

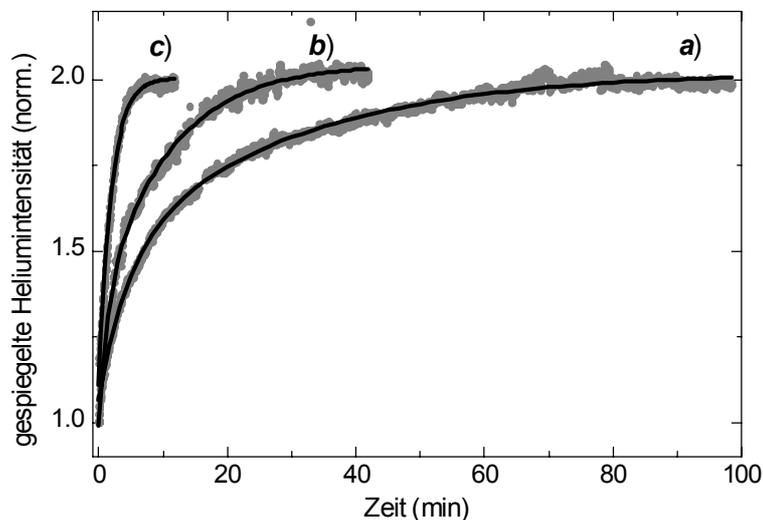


Abbildung 5.19: Anlassen einer 5 ML dicken Fe-Schicht, gewachsen auf der CoGa(100)-Fläche bei 550 K. Dargestellt (graue Punkte) ist die gespiegelte Heliumintensität als Funktion der Zeit bei folgenden Oberflächentemperaturen: a) 550 K, b) 575 K und c) 600 K. Die jeweilige Temperatur wurde unmittelbar nach Ende der Deposition innerhalb von 20 Sekunden eingestellt. Die schwarze Linien sind Anpassungskurven an die experimentellen Messdaten (siehe Text).

Wird eine Arrhenius-Abhängigkeit der Diffusionskonstanten $D_{1,2}$ von der Anlasstemperatur angenommen

$$D_1 = D_{01} \cdot e^{-E_{a1}/k_B T} \text{ bzw. } D_2 = D_{02} \cdot e^{-E_{a2}/k_B T} \quad (5.3)$$

so lassen sich die Zeitkonstanten τ_1 und τ_2 als

$$\tau_1 = \tau_{01} \cdot e^{E_{a1}/k_B T} \text{ bzw. } \tau_2 = \tau_{02} \cdot e^{E_{a2}/k_B T} \quad (5.4)$$

schreiben. Dabei bezeichnen E_{a1} und E_{a2} die Aktivierungsenergien der beiden Diffusionsprozesse. D_{01} , D_{02} , τ_{01} und τ_{02} stellen präexponentielle Faktoren dar und k_B ist die Boltzmann-Konstante. Aus den Anpassungskurven in Abbildung 5.19 lassen sich dann die Zeitkonstanten τ_1 und τ_2 bei allen gemessenen Anlasstemperaturen bestimmen. Diese wurden in dieser Weise für zwei weitere Temperaturen bestimmt und sind in Abbildung 5.20 logarithmisch als Funktion der reziproken Anlasstemperatur $1/T$ aufgetragen. Aus der Steigung der Anpassungsgeraden in Abbildung 5.20 ergeben sich die Aktivierungsenergien für die zwei Diffusionsprozesse zu $E_{a1} \cong E_{a2} = 1.6 \pm 0.1$ eV. Die Anpassungsgeraden schneiden die Ordinatenachse in den Punkten $\ln(\tau_{01}) = -28.1$ und $\ln(\tau_{02}) = -26.1$. Dementsprechend ergeben sich $\tau_{01} \cong 0.6$ ps und $\tau_{02} \cong 5.5$ ps als Richtwerte. Diese Ergebnisse lassen auf die Existenz eines „kurzzeitigen“, bzw. eines „langzeitigen“ Diffusionsprozesses schließen.

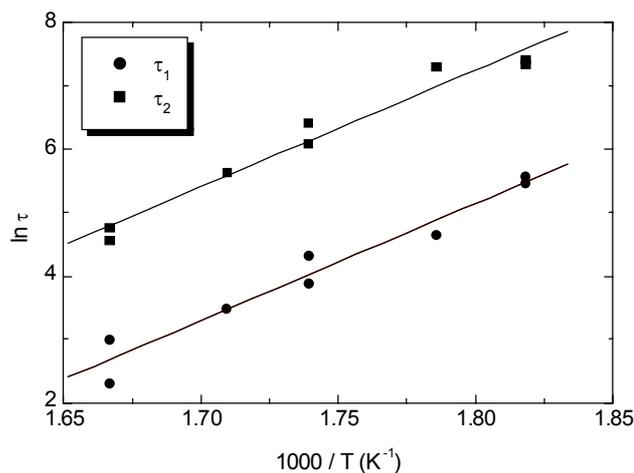


Abbildung 5.20: Berechnete Zeitkonstanten τ_1 und τ_2 für zwei unterschiedliche Diffusionsprozesse auf der Oberfläche des Schichtsystems Fe/CoGa(100), aufgetragen als Funktion der Anlass-temperatur mit den daran angepassten Arrheniuskurven (durchgezogene Linien).

Der Verlauf der gespiegelten Heliumintensität während des Ausheilens hängt nicht nur von der Anlasstemperatur, sondern auch von der aufgedampften Eisenmenge ab. Bei einer Bedeckung $\Theta > 3$ ML zeigt die Intensität während des Ausheilens bei 550 K folgendes Verhalten: Sie steigt unmittelbar nach Beenden der Deposition an und erreicht nach einer gewissen Zeit einen Sättigungswert (siehe Abb.5.19). Ein anderes Verhalten findet man bei kleineren Bedeckungen. Bei 2 ML Eisen zeigt die gespiegelte Heliumintensität eine drastische Abnahme an (Abbildung 5.21). Das kann bei dieser Bedeckung nicht nur durch eine Veränderung der Lagenverteilung, sondern auch aufgrund einer Veränderung des Reflexionsvermögens durch Ga-Segregation oder andere Diffusionsprozesse bewirkt werden.

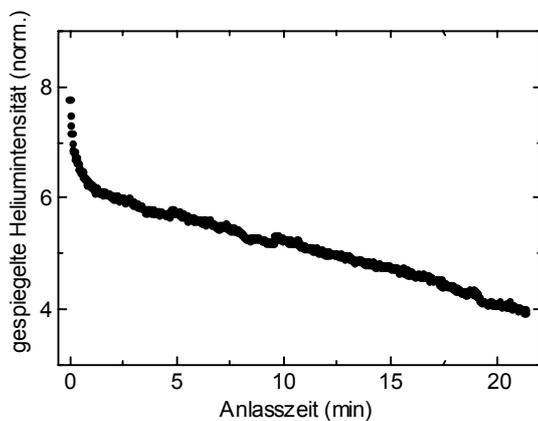


Abbildung 5.21: Gespiegelte Heliumintensität gemessen an einer 2 ML dicken Fe-Schicht, gewachsen auf der CoGa(100)-Fläche bei 550 K, während des Ausheilens der Eisenschicht bei 550 K. Die Energie der He-Atome betrug 31.5 meV (Anti-Phase-Interferenzbedingung).

5.4.6 Magnetische Eigenschaften

In einer separaten UHV-Kammer, ausgestattet mit einem MOKE (magneto-optischer Kerr-Effekt)-System, einer LEED-Optik und einem AES-Spektrometer, wurden die magnetischen Eigenschaften von 0-10 ML dicken Fe-Filmen, gewachsen bei 550 K auf der CoGa(100)-Oberfläche, von Dr. T. Balster untersucht. Es wurden sowohl polare (senkrecht zur Probenoberfläche) als auch longitudinale (in der Probenebene) Kerr-Effekt-Messungen durchgeführt. Hierzu wurden Hysteresisschleifen aufgenommen, in welchen die Kerr-Elliptizität ε in Abhängigkeit von der angewandten Magnetfeldstärke H aufgetragen ist. Dabei ist ε proportional zu der Magnetisierung M .

Abbildung 5.22 zeigt longitudinale MOKE-Messungen der Kerr-Elliptizität ε für Fe-Bedeckungen zwischen 1 und 8 ML. Das Magnetfeld ist in die [010]-Richtung gerichtet. Bis zu einer Fe-Bedeckung von 1 ML konnte kein ferromagnetisches Verhalten

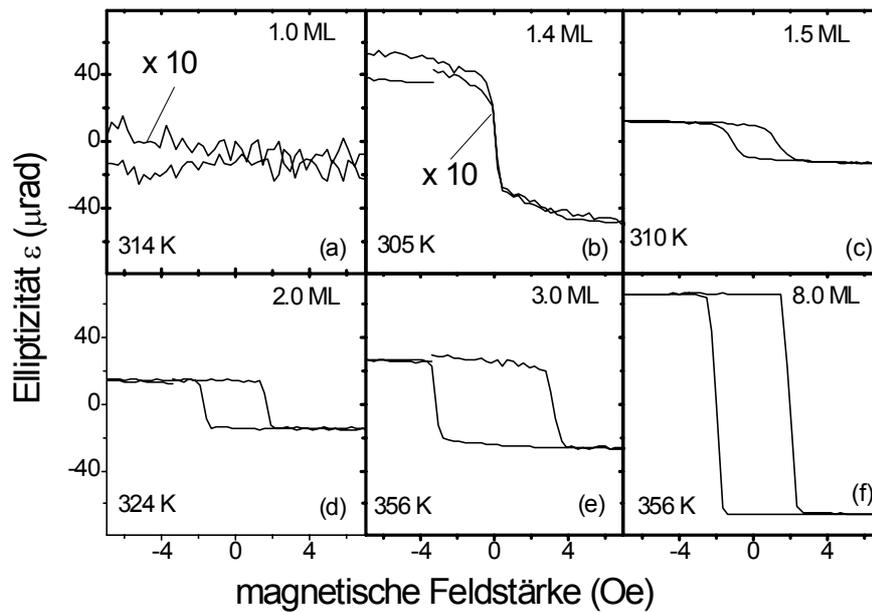


Abbildung 5.22. MOKE-Hysteresisschleifen, gemessen in der Ebene an Fe-Filmen, gewachsen bei 550 K auf der CoGa(100)-Oberfläche, für folgende Fe-Bedeckungen: **a)** 1 ML, **b)** 1.4 ML, **c)** 1.5 ML, **d)** 2 ML, **e)** 3 ML und **f)** 8 ML. Die Skala der Elliptizität ε ist in (a) und in (b) um den Faktor 10 vergrößert. Die Fe-Filme, gewachsen mit Schichtdicken von 3 ML und 8 ML, sind vor der Messung jeweils bei 600 K ausgeheilt worden.

beobachtet werden, was durch die Abwesenheit der Hysteresisschleife bei 1 ML illustriert wird. Bei 1.4 ML erkennt man eine remanente Elliptizität $\varepsilon_r > 0$, d.h. es gibt auch eine remanente Magnetisierung M_r . Die Koerzitivfeldstärke H_c ist jedoch zu gering, so dass es nicht aufgelöst werden kann. Erst ab 1.5 ML erkennt man Hysteresisschleifen, in denen ε_r und M_r deutlich aufgelöst sind. Beide Größen nehmen mit steigender Fe-Bedeckung zu. Gleichzeitig steigt auch die Koerzitivfeldstärke H_c , jedoch nur bis 3 ML, danach nimmt sie mit wachsender Schicht leicht ab. Hier soll noch bemerkt werden, dass die 3 und 8 ML dicken Fe-Filme vor der Messung bis 600 K angelassen wurden. Für die senkrechte (polare) Konfiguration zeigen die Messungen keine Hysteresisschleifen. Die leichte Achse der Magnetisierung liegt also parallel zu der Oberfläche des Fe-Films.

Abbildung 5.23 zeigt die Abhängigkeit der remanenten Elliptizität ε_r und der Koerzitivfeldstärke H_c von der Proben temperatur für Fe-Bedeckungen von 1.7 und 3.0 ML. Aus der Temperaturabhängigkeit von ε_r bei 1.7 ML (Abb. a), lässt sich die Curie-

Temperatur zu $T_c = 525$ K bestimmen. Die Koerzitivfeldstärke nimmt bis 400 K nahezu linear ab. Oberhalb von 400 K wird die Abnahme schwächer und ab 460 K kann die Koerzitivfeldstärke nicht mehr aufgelöst werden. Die Curie-Temperatur für einen Fe-Film mit einer Bedeckung von 1.1 und 1.3 ML lässt sich zu $T_c = 300$ K abschätzen. Für die 3 ML dicke Fe-Schicht (*b*) nimmt ϵ_r mit der Temperatur nur leicht ab, so dass die Curie-Temperatur oberhalb von 600 K liegt. Sie kann somit nicht bestimmt werden, da das Anlassen zu noch höheren Temperaturen zur Änderung der Oberflächenzusammensetzung führen würde. Für H_c beobachtet man auch hier eine nahezu lineare Abnahme, diesmal bis 600 K. Ein Verschwinden von H_c ist erst bei noch höheren Temperaturen, also außerhalb des Messbereiches, zu erwarten. Die Koerzitivfeldstärke hängt auch davon ab wie gut der Fe-Film geordnet ist.

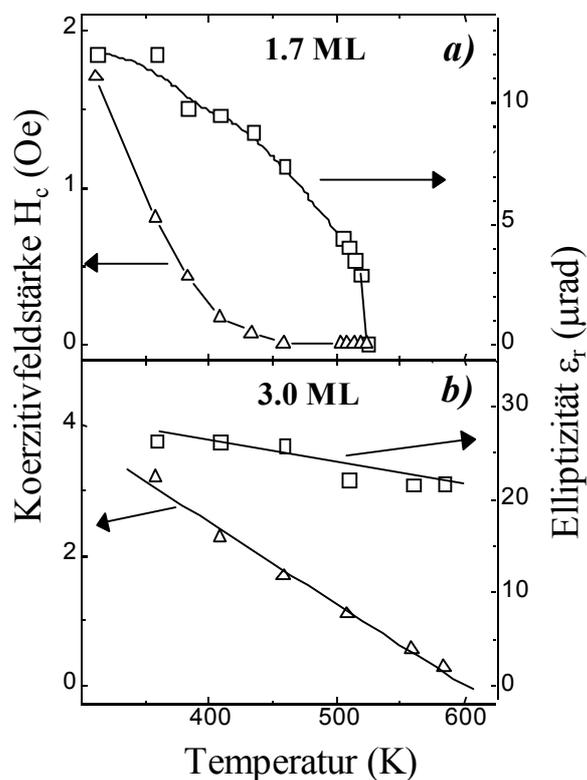


Abbildung 5.23: Temperaturabhängigkeit der Koerzitivfeldstärke H_c und der remanenten Elliptizität ϵ_r , entsprechend einer remanenten Magnetisierung M_r , für Fe-Filme gewachsen auf der CoGa(100)-Oberfläche mit Schichtdicken von *a*) 1.7 ML und *b*) 3.0 ML. Die Fe-Filme wurden bei 550 K deponiert und anschließend bei 600 K für 10-20 min ausgeheilt.

5.4.7 Diskussion und Zusammenfassung

Untersucht wurden das Wachstum, die strukturellen und die magnetischen Eigenschaften dünner Fe-Filme auf der CoGa(100)-Oberfläche bei 550 K sowie die Diffusionsprozesse, die in diesen Filmen zwischen 550 und 600 K stattfinden.

Die während des Wachstums bei 550 K unter Anti-Phase-Interferenzbedingung gemessene gespiegelte Heliumintensität zeigt, wie auch im Fall des Fe-Wachstums bei 300 K, ein oszillierendes Verhalten (Abbildung 5.5(a)). Die Oszillationen sind bis zu einer Bedeckung von etwa 22 ML deutlich zu erkennen und deuten auf ein nahezu ideales Lagenwachstum hin. Die Amplitude der Oszillationen nimmt in der Anfangsphase des Wachstums stark zu und erreicht bei einer Bedeckung von etwa 3 ML einen Höchstwert, der fast dreißig Mal größer ist als die Intensität von der reinen CoGa(100)-Oberfläche. Dies deutet auf eine atomar glatte und wohlgeordnete Fe(100)-Oberfläche hin, aber auch auf ein größeres Reflexionsvermögen des Eisens gegenüber dem des Substrates. Die Oszillationen werden danach mit zunehmender Bedeckung gedämpft und sind ab 23 ML nicht mehr zu erkennen. Dieser Effekt lässt sich sowohl aufgrund eines Kohärenzverlustes, durch Bildung von kleinen 2D-Inseln, als auch durch eine Zunahme der Stufendichte an der Oberfläche erklären [136].

Noch empfindlicher gegenüber Oberflächendefekten ist die gespiegelte Heliumintensität gemessen unter In-Phase-Interferenzbedingung (Abbildung 5.5(b)). Sie zeigt einen starken Anstieg in der Anfangsphase der Deposition und erreicht das Dreihundertfache(!) der Intensität von der CoGa(100)-Oberfläche. Auch dieser Anstieg ist durch das stark zunehmende Reflexionsvermögen geprägt, so dass eine Aussage über die Defektdichte an der Oberfläche schwierig ist. Die sehr hohe Intensität bei 3 ML lässt jedoch einen glatten und wohlgeordneten Fe-Film vermuten. Bei höheren Bedeckungen zeigt die Intensität nur eine schwache Abnahme, die Stufendichte ändert sich also nicht wesentlich während fortgesetzter Fe-Deposition. Sowohl die LEED-Bilder als auch die He-Beugungsspektren, aufgenommen von einem bis zu 24 ML dicken Fe-Film, zeigen eine wohlgeordnete und glatte Oberfläche. Sie zeigen jedoch anstelle der für die bcc α -Fe(100)-Fläche erwarteten (1×1) -Struktur eine $c(2 \times 2)$ -Überstruktur. Mittels LEED- und AES-Messungen konnte gezeigt werden, dass diese Überstruktur durch eine Segregation von Ga-Atomen induziert wird. Sie befinden sich in den oberflächennahen Fe-

Schichten und wirken möglicherweise am Beginn des Eisenschichtenwachstums als so genannte *surfactants*.

Die Ga-Atome und dementsprechend die $c(2\times 2)$ -Überstruktur konnten mittels Ar^+ -Ionenbeschuss bei 300 K von der 40 ML dicken Eisenschicht entfernt werden. Durch Anlassen der Probe bei 550 K wurde eine wohlgeordnete (1×1) -Struktur entsprechend der bcc Fe(100)-Fläche hergestellt. Weiteres Bedampfen mit 10 ML Eisen führt zu keiner erkennbaren erneuten Ga-Anwesenheit an der Oberfläche und die LEED-Reflexe zeigen nur eine (1×1) -Struktur. Demgemäß erfolgt das weitere epitaktische Lagenwachstum auch in Abwesenheit der Ga-Atome.

Mittels TEAS-Messungen wurde eine Oberflächendiffusion nachgewiesen. Die unter Anti-Phase-Interferenzbedingung aufgenommene gespiegelte Heliumintensität zeigt unmittelbar nach der Deposition von 5 ML Fe bei 550 K einen deutlichen Anstieg und nimmt erst nach etwa 80 Minuten einen maximalen Wert an (Abbildung 5.18a). Dieses Verhalten wurde bei Eisenbedeckungen $\Theta > 3$ ML beobachtet. Es deutet auf eine hohe Oberflächenmobilität der Fe-Atome und/oder der Ga-Atome hin, die zur Glättung der Oberfläche führt. Bei nur 2 ML ist durch Anlassen hingegen eine Abnahme der Heliumintensität beobachtet worden. Dies kann teils durch diffusionsbedingte Veränderung in der Lagenverteilung und, damit verbunden, durch eine mögliche Abnahme des Reflexionsvermögens durch die Ga-Segregation erklärt werden. Untersuchungen an dem 5 ML dicken Fe-Film zeigen ebenfalls eine starke Abhängigkeit der Anti-Phase Heliumintensität und dementsprechend der Diffusionsprozesse von der Anlasstemperatur (Abbildung 5.19). Die Aktivierungsenergien dieser Prozesse konnten mittels Anpassung der Anlasskurven ermittelt werden. Dabei wurde angenommen, dass zwei Diffusionsprozesse zu dem beobachteten Anstieg der Heliumintensität führen. Die aus den Anpassungsgeraden berechneten Aktivierungsenergien zeigen ungefähr gleiche Werte: $E_{a1} \approx E_{a2} = 1.6 \pm 0.1 \text{ eV}$. Die Diffusionskonstanten unterscheiden sich jedoch um eine Größenordnung, wie aus der Berechnung der Zeitkonstanten τ_1 und τ_2 hervorgeht. Demnach handelt es sich hier um einen „kurzzeitigen“ und ein „langzeitigen“ Diffusionsprozess.

Magnetooptische Kerr-Effekt-(MOKE) Messungen an 1 - 8 ML dicken Fe-Filmen, gewachsen bei 550 K auf der CoGa(100)-Oberfläche zeigen, dass sich die leichte Magnetisierungsachse senkrecht zur Probenoberfläche befindet. Bei Raumtemperatur zeigen die Fe-Filme für Schichtdicken größer als 1.3 ML ein ferromagnetisches Verhalten. Die Curie-Temperatur steigt schnell von 300 K, für 1.1-1.3 ML, bis 525 K für 1.7 ML. Bei Schichtdicken, die größer als 2 ML sind, liegt die Curie-Temperatur oberhalb von 600 K und kann wegen der thermischen Instabilität der Fe-Filme bei diesen Temperaturen nicht gemessen werden. Auch für das Fe-Wachstum auf der Au(100)-Oberfläche wurde ein ferromagnetisches Verhalten der Fe-Filme unterhalb von 2 ML beobachtet [132]. Im Prinzip sollten jedoch mindestens 2 ML vorliegen um ein solches Verhalten beobachten zu können. Das ferromagnetische Verhalten unterhalb von 2 ML lässt sich erklären, wenn man annimmt, dass eine Kopplung der Fe-Atome mit Co-Atomen an der Fe/CoGa-Grenzfläche stattfindet. Zu demselben Ergebnis könnte jedoch auch ein nicht ideales Lagenwachstum in der Anfangsphase der Deposition führen.

Kapitel 6

Wachstum von Ga auf CoGa(100)

Gallium ist eines der wenigen Metalle, das nicht in einer einfachen Struktur kristallisiert. Die α -Ga-Phase ist unter normalen Bedingungen die einzig stabile und hat eine basis-zentrierte orthorhombische Struktur mit acht Atomen in der Einheitszelle [139] (siehe auch Kap.3.2). Außergewöhnlich ist die α -Ga-Phase aufgrund der Koexistenz von kovalenten und metallischen Bindungen in ihrer kristallinen Struktur [88, 140]. Während die Oberflächen von Halbleitern die Tendenz haben zu rekonstruieren, zeigen Metalloberflächen gewöhnlich keine Rekonstruktion. Daher stellt sich die Frage, welche der zwei Bindungen des α -Ga, die kovalente oder metallische, sich bei den unterschiedlichen Oberflächenorientierungen durchsetzt. Wegen der sehr niedrigen Schmelztemperatur ($T_S = 302.9$ K) und des niedrigen Dampfdrucks während des Schmelzens ist Gallium auch für Untersuchungen in der Nähe der Schmelztemperatur gut geeignet. Unter Hochdruck können zwei weitere Phasen, Ga II und Ga III, stabilisiert werden [141]. Bei normalem Atmosphärendruck sind zusätzliche metastabile Phasen, bezeichnet mit β [89], γ [91], δ [90] und ϵ [141] identifiziert worden (siehe Tabelle 3.2).

Das epitaktische Wachstum und die strukturellen Eigenschaften von Gallium im Monolagenbereich sind vor allem auf Si(100)- [142-147] bzw. auf Si(111)-Oberflächen [148-150] intensiv untersucht worden. Wachstumsexperimente wurden jedoch auch auf Oberflächen wie Ge(100) [151], GaN(0001) [152], NaCl [153] oder Ni(100) [96] durchgeführt. Untersuchungen an Ga/Si(100)-Systemen sind von großem Interesse, da eine Vielzahl geordneter Ga-Phasen auf der Si(100)-Oberfläche bis zu Ga-Bedeckungen von einer Monolage existiert. Sie konnten mittels RHEED, LEED und STM nachgewiesen werden [142-147]. Das Wachstum von Gallium auf der Si(111)-Oberfläche führt im

Submonolagenbereich zu einer $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})R30^\circ$ -Überstruktur und wird zur chemischen Passivierung verwendet [149, 150]. Auch das Wachstum von Ga-Nanoteilchen auf SiO₂-Fasern wurde unter Bestrahlung mit 1 μ s-Pulsen eines Diodenlasers mit einer Wellenlänge von 1.55 μ m und einer maximalen Leistung von 17 mW bei einer Rate von 1 kHz untersucht [154].

Im vorliegenden Kapitel wird erstmalig das Wachstum von Gallium auf der CoGa(100)-Oberfläche untersucht. Als Methoden werden die Streuung thermischer Heliumatome (TEAS), die Augerelektronenspektroskopie (AES) und die Beugung niederenergetischer Elektronen (LEED) verwendet. Das Wachstumsverhalten und die Struktur des Ga/CoGa(100)-Schichtsystems bei niedrigen Temperaturen sind Themen des Abschnitts 6.1. In Abschnitt 6.2 werden sowohl die thermische Stabilität als auch die an der Oberfläche des Ga/CoGa(100)-Schichtsystems stattfindenden Phasenumwandlungen analysiert.

6.1 Wachstum von Ga auf CoGa(100) bei 160 K

Aufgrund der niedrigen Schmelztemperatur (302.9 K) des Galliums wurde in den folgenden Wachstumsexperimenten das CoGa-Substrat mittels flüssigen Stickstoffs bis zu einer Temperatur von 160 K abgekühlt. Sowohl das Wachstumsverhalten als auch die Struktur und die Morphologie des sich bei 160 K bildenden Ga-Films werden analysiert.

6.1.1 Wachstumsverhalten

Abbildung 6.1 zeigt den Verlauf der gespiegelten Heliumintensität, normiert auf die gespiegelte Heliumintensität der reinen CoGa(100)-Oberfläche, als Funktion der Bedeckung, aufgenommen während des Ga-Wachstums auf der CoGa(100)-Oberfläche bei 160 K und bei einer Energie der He-Atome von 13 meV. Man bemerkt, abhängig von der Ga-Bedeckung, zwei unterschiedliche Wachstumsmodi. Die gespiegelte Intensität zeigt in der Anfangsphase des Wachstums ein oszillierendes Verhalten mit einer nahezu periodischen Anordnung der Maxima. Wie in Kapitel 3.3 gezeigt wurde, kann aufgrund dieses Verhaltens eine Eichung der Aufdampfrate durchgeführt werden. Dabei wird im Folgenden die während einer Oszillationsperiode aufgedampfte Ga-Menge als

1 Monolage definiert. Somit liegen die ersten beiden deutlichen Maxima bei 1 ML und bei 2 ML, während das dritte Maximum etwas verschoben ist und sich bei 3.2 ML befindet. Dieses Verhalten deutet auf ein bis etwa 3.2 ML epitaktisches, jedoch nicht ideales Lagenwachstum des Galliums auf der CoGa(100)-Oberfläche hin. Zu Beginn des Wachstums nimmt die gespiegelte Intensität rasch ab und zeigt, ähnlich wie beim Fe-Wachstum auf der CoGa(100)-Oberfläche bei 300 und 550 K (siehe Kap.5), ein unaufgelöstes Maximum in Form einer Schulter, bei etwa 0.25 ML. Die Intensität geht dann durch ein Minimum bei etwa 0.65 ML und erreicht bei 1 ML einen Höchstwert, der etwa 90% der Intensität der reinen CoGa(100)-Oberfläche beträgt. Bei 2 ML steigt die Intensität bis 4.4 gegenüber der Anfangsintensität und bei etwa 3.2 ML erreicht sie sogar ein absolutes Maximum, das 6.5 Mal größer ist als die Intensität von der reinen CoGa(100)-Oberfläche. Dies weist auf ein höheres Reflexionsvermögen der mit Gallium bedeckten Oberfläche gegenüber der reinen CoGa(100)-Oberfläche hin. Oberhalb von 3.2 ML nimmt die gespiegelte Intensität kontinuierlich ab und erreicht bei 11 ML einen immer noch relativ hohen Wert von etwa 3.0 gegenüber der reinen CoGa(100)-Oberfläche. Ab 3.2 ML hat das CoGa-Substrat offenbar keinen Einfluss mehr auf das Ga-Wachstum, d.h. die Ga-Schicht ist geschlossen, so dass das weitere Wachstum homoepitaktisch verläuft. Ein rein dreidimensionales Wachstum ist hier auszuschließen, da die Intensitätsabnahme viel schwächer ist als die nach Gleichung (2.23) erwartete. Unwahrscheinlich ist aufgrund der Abwesenheit der Oszillationen auch ein lagenweises Wachstum des Galliums auf der CoGa(100)-Oberfläche.

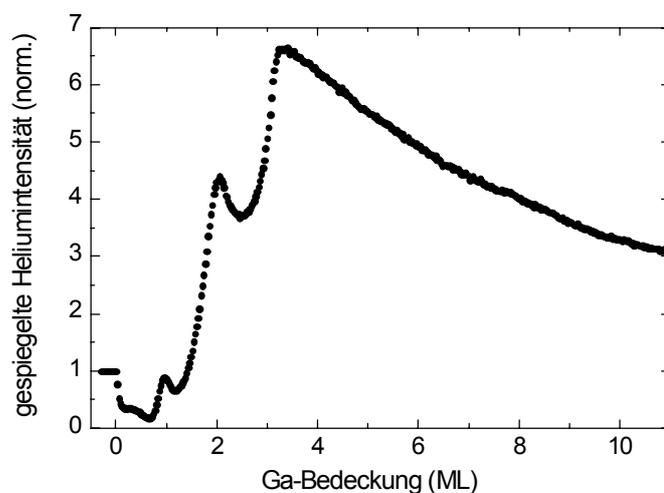


Abbildung 6.1: Gespiegelte normierte Heliumintensität als Funktion der Bedeckung, aufgenommen während des Wachstums von Ga auf der CoGa(100)-Oberfläche bei 160 K. Die Aufdampftrate betrug etwa 0.2 ML/min.

Um das Wachstumsverhalten des Galliums besser zu verstehen, wurde es auch mittels AES untersucht. In Abbildung 6.2 sind die peak-to-peak Amplituden, normiert auf die Anfangswerte der reinen CoGa(100)-Oberfläche, der AES-Übergänge von Co (775 eV) und Ga (1070 eV) aufgetragen, gemessen während des Wachstums von Ga auf der CoGa(100)-Oberfläche bei 160 K in Abhängigkeit von der Bedeckung. Da bis zu einer Ga-Bedeckung von 3.2 ML das Wachstum lagenweise erfolgt, ist in diesem Bereich nach Gleichung (2.32) eine exponentielle Abnahme des Co-Signals zu erwarten. Tatsächlich wird in Abbildung 6.2 bis etwa 3.5 ML eine Abnahme des Co-Signals beobachtet, die qualitativ mit einer exponentiellen Kurve angepasst werden kann. Ab etwa 3.5 ML weichen die peak-to-peak Amplituden des Co-Übergangs von dieser Kurve stark ab. Dieses Verhalten deutet auf eine Segregation von Kobalt in die Ga-Schicht während der Ga-Deposition. Als Konsequenz für die erste Begründung wäre die effektive Aufdampftrate kleiner und die effektiven Bedeckungen mit Gallium würden sich oberhalb von 3.5 ML von den in Abbildung 6.1 und Abbildung 6.2(a) angegebenen Werten unterscheiden. Ein merkwürdiges Verhalten wird auch in der Abhängigkeit des Ga-Signals von der Bedeckung beobachtet: Man sieht eine deutliche Abnahme des Ga-Signals mit zunehmender Bedeckung, obwohl ein Anstieg dessen zu erwarten ist. Die Abnahme des Ga-Signals kann dadurch erklärt werden, dass der primäre Elektronen-

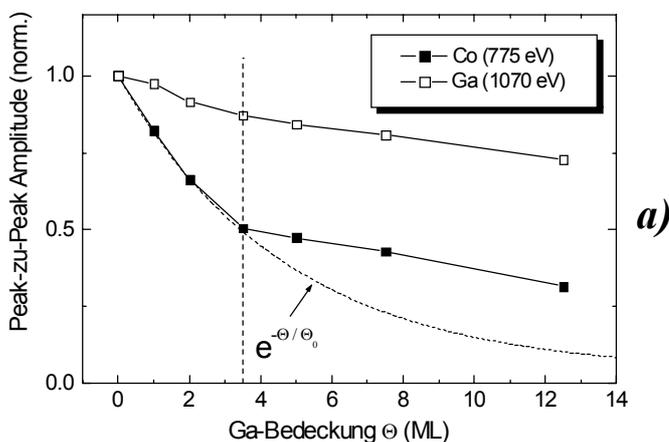
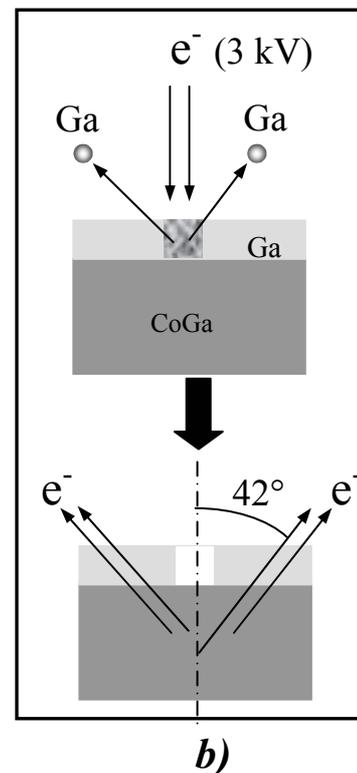


Abbildung 6.2: *a)* Die auf den Anfangswert normierte peak-to-peak Amplituden der AES-Übergänge von Co (775 eV), bzw. von Ga (1070 eV) als Funktion der Ga-Bedeckung, gemessen während des Wachstums von Ga auf der CoGa(100)-Oberfläche bei 160 K; *b)* Schematische Darstellung des elektroneninduzierten Desorptionsprozesses (oben) und der unter 42° emittierten Augerelektronen. (unten).



strahl lokal eine Desorption des aufgedampften Galliums induziert (Elektronenstoßdesorption). Das aufgedampfte Gallium kann somit an der Stelle des auftretenden Elektronenstrahls nicht nachgewiesen werden. Das detektierte Ga-Signal besteht dann ausschließlich aus den unter 42° (gegenüber der Oberflächennormalen) austretenden Augerelektronen, die von den Ga-Atomen des Substrates abstammen und nimmt mit zunehmender Ga-Bedeckung aufgrund der Abschirmung durch die Ga-Schicht ab. Zur Verdeutlichung sind die hier beschriebenen Prozesse in Abbildung 6.2(b) schematisch dargestellt.

Um die Reinheit der Ga-Schicht zu überprüfen, wurde anschließend auch die chemische Zusammensetzung der Oberfläche untersucht. Abbildung 6.3(b) zeigt ein AES-Spektrum am Beispiel einer 4 ML dicken Ga-Schicht. Neben den charakteristischen AES-Übergängen von Gallium und Kobalt werden keine weiteren AES-Übergänge, die auf eine Verunreinigung mit Fremdelementen hinweisen würden, beobachtet. Zum Vergleich ist in Abbildung 6.3(a) ein AES-Spektrum der reinen CoGa(100)-Oberfläche dargestellt. Die peak-to-peak Amplitude des AES-Übergangs von Ga(1070 eV) ist bei der mit 4 ML Ga bedeckten CoGa(100)-Oberfläche um etwa 5% geringer als bei der reinen Fläche. Die peak-to-peak Amplitude von Co(775 eV) nimmt gegenüber der reinen CoGa(100)-Oberfläche um 50% ab. Um den Verlauf der Abnahme des Co- und Ga-Signals quantitativ zu verstehen, müsste man erstens die genauen lokalen Auswirkungen des Primärstrahls kennen.

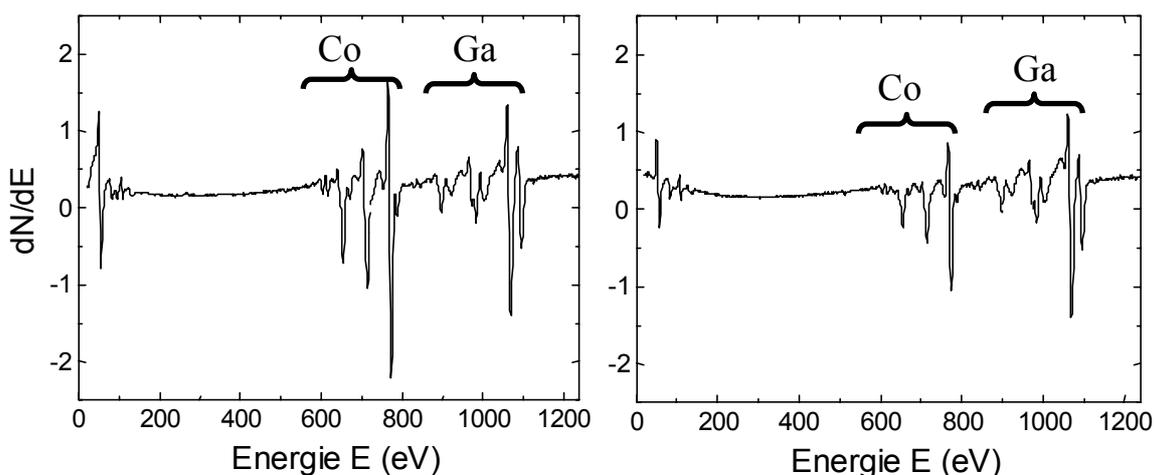


Abbildung 6.3: AES-Spektren gemessen *a)* an der reinen CoGa(100)-Oberfläche und *b)* an dem Ga/CoGa(100)-Schichtsystem für eine Ga-Bedeckung von 4 ML, deponiert bei 160 K.

6.1.2 Struktur und Morphologie des Schichtsystems Ga/ CoGa(100)

Die strukturellen Eigenschaften der bei 160 K aufgedampften Ga-Schichten wurden mittels TEAS und LEED bis zu einer nominellen Bedeckung von 10 ML untersucht. Oberhalb einer Monolage zeigen die LEED-Aufnahmen typischerweise eine (1×1)-Struktur in Bezug auf eine unrekonstruierte CoGa(100)-Oberfläche (siehe Abb. 6.4). Im Realraum entspricht dies einer quadratischen Struktur mit der Seitenlänge von 2.88 Å.

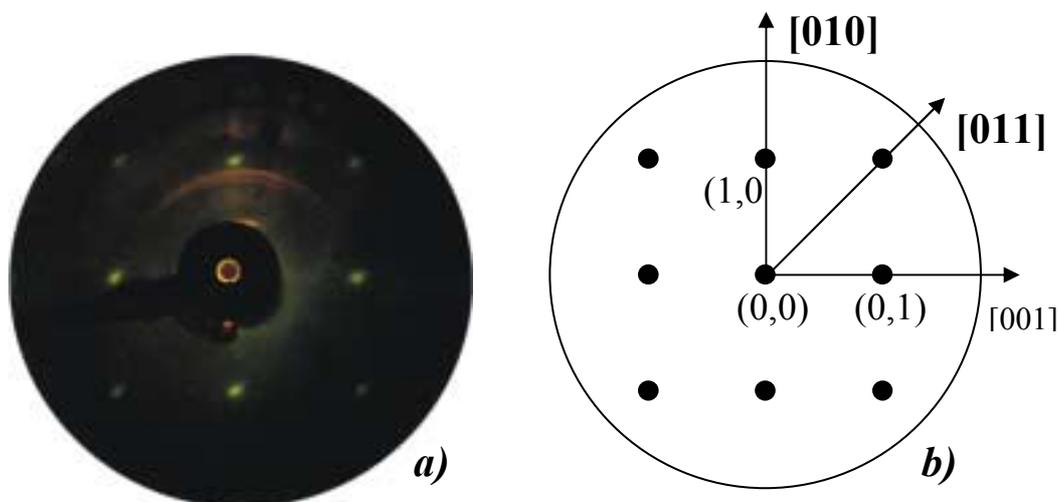


Abbildung 6.4: Typisches LEED-Bild eines Ga/CoGa(100)-Schichtsystems, gewachsen bei 160 K für Ga-Bedeckungen $\Theta = 1 \div 10$ ML (a) und ein Schema der entsprechenden Reflexe (b). Die Elektronenenergie betrug 116 eV.

Die in [001]- und [012]-Richtung bei einer Ga-Bedeckung von 1 ML gemessenen He-Beugungsspektren (siehe Abb. 6.5) zeigen jedoch zusätzliche Beugungsreflexe gegenüber dem LEED-Bild. Wie man sieht, sind die für die $c(4 \times 2)$ -Rekonstruktion charakteristischen Beugungsreflexe $\pm(0, 1/2)$ und $\pm(0, 1)$ in [001]-Richtung bzw. $\pm(1/4, 1/2)$ und $\pm(1/2, 1)$ in [012]-Richtung vorhanden. In [001]-Richtung erscheinen weitere Reflexe einer zusätzlichen Oberflächenstruktur. Sie wird im Folgenden als **R**-Struktur bezeichnet. Die entsprechenden Beugungsreflexe sind in den Abbildungen 6.5 und 6.7 durch R_1^+ und R_1^- bzw. durch R_2^+ und R_2^- gekennzeichnet und liegen bei $q_{\parallel}(R_1^{\pm}) = \pm(0.73 \pm 0.01) \text{ \AA}^{-1}$ bzw. bei $q_{\parallel}(R_2^{\pm}) \approx 2q_{\parallel}(R_1^{\pm}) = \pm(1.46 \pm 0.01) \text{ \AA}^{-1}$. Werden R_1^+ und R_1^- als Beugungsreflexe erster Ordnung bezüglich der **R**-Struktur

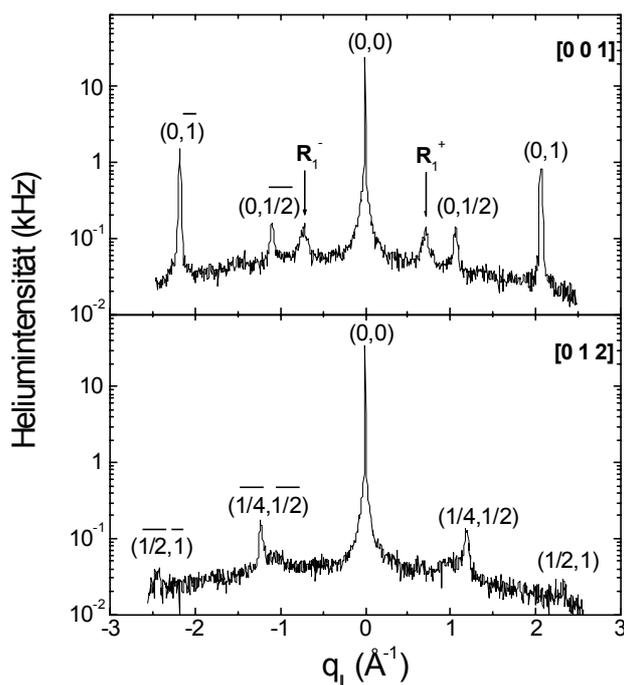


Abbildung 6.5: He-Beugungsspektren gemessen in [001]- (oberes Bild) bzw. in [012]-Richtung (unteres Bild) am Ga/CoGa(100)-Schichtsystem unmittelbar nach der Deposition von 1 ML Ga bei 160 K. Die Energie der He-Atome betrug 13 meV.

bezeichnet, so sind R_2^+ und R_2^- als Beugungsreflexe zweiter Ordnung zu betrachten. Dementsprechend sind auch die Reflexe R_3^+ und R_3^- dritter Ordnung der Überstruktur bei etwa $\pm 2.19 \text{ \AA}^{-1}$, also ungefähr an derselben Stelle, wo sich die $(0, \pm 1)$ -Beugungsreflexe der (1×1) -Struktur des Substrates befinden, zu erwarten. Um diese voneinander unterscheiden zu können, wurde das Beugungsprofil des $(0, 1)$ -Reflexes mit einer verbesserten Winkelauflösung aufgenommen. Dies ist in Abbildung 6.8(a) dargestellt und zeigt den R_3 -Reflex in Form einer Schulter an der linken Seite des $(0, 1)$ -Reflexes. Die Lage der R_3^\pm -Reflexe lässt sich aus der Anpassung des Beugungsprofils mittels zweier Lorentz-Kurven zu $q_{\parallel}(R_3^\pm) = \pm 2.20 \text{ \AA}^{-1}$ ermitteln. Der Grund weshalb im LEED-Bild ($E_p = 116 \text{ eV}$) neben den Beugungsreflexen der (1×1) -Struktur keine weiteren Reflexe beobachtet werden liegt wahrscheinlich, ähnlich wie bei AES, an einer elektroneninduzierte Desorption des aufgedampften Galliums. Infolgedessen beobachtet man nur das LEED-Bild des CoGa-Substrates.

Charakteristisch für die $c(4 \times 2)$ -Struktur sind unter anderem die in [012]-Richtung gemessenen Beugungsreflexe. Um die kontinuierliche Entwicklung der $c(4 \times 2)$ -Struktur während des Ga-Wachstums beobachten zu können, wurde die Intensi-

tät des $(1/4, 1/2)$ -Reflexes in $[012]$ -Richtung als Funktion der Ga-Bedeckung verfolgt (siehe Abb. 6.6). Wie man sieht, nimmt die Intensität in der Anfangsphase stark ab und erreicht ein Minimum bei etwa 0.3 ML. Die Intensität ist hier ausschließlich durch das Untergrundsignal gegeben und es gibt keine $c(4\times 2)$ -rekonstruierten Domänen mehr. Die Intensität steigt jedoch mit zunehmender Bedeckung wieder an und erreicht ein Maximum bei etwa 0.9 ML. Allerdings beträgt sie hier nur etwa 10% der Anfangsintensität. Nach einer leichten Abnahme kommt es zwischen 1 und 2 ML zu einem nahezu konstanten Verlauf. In diesem Bereich beträgt die Intensität nur noch $\sim 6\%$ der Anfangsintensität, sie ist jedoch immer noch etwa dreimal höher als das Untergrundsignal. Daraus kann man schließen, dass die für die reine CoGa(100)-Oberfläche charakteristische $c(4\times 2)$ -Struktur oberhalb einer Ga-Bedeckung von 1 ML wiederhergestellt wird. Dieses Verhalten kann mit einem Aufschwimmen von Co-Atomen an die Oberfläche während des Ga-Wachstums erklärt werden.

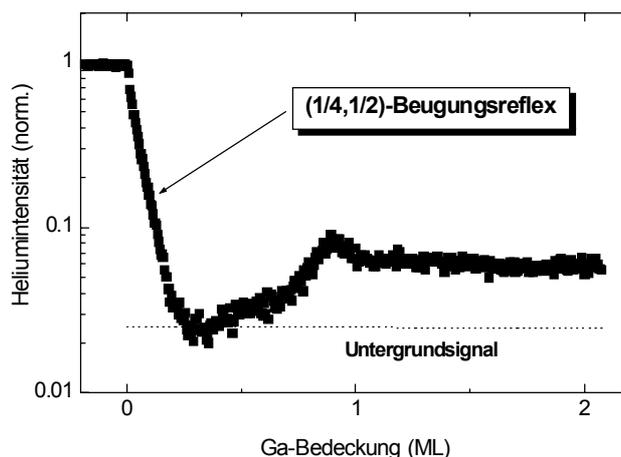


Abbildung 6.6: He-Intensität des $(1/4, 1/2)$ -Beugungsreflexes als Funktion der nominellen Ga-Bedeckung, aufgenommen während des Wachstums von Ga auf der CoGa(100)-Oberfläche bei 160 K. Die gepunktete Linie markiert die Höhe des Untergrundsignals. Die Intensität ist normiert auf den Anfangswert. Die Energie der He-Atome betrug 13 meV.

Abbildung 6.7 zeigt He-Beugungsspektren, gemessen in $[001]$ -Richtung am Ga/CoGa(100)-Schichtsystem unmittelbar nach dem Wachstum bei 160 K, bei nominellen Bedeckungen von 1 ML (b), 2 ML (c), 3.2 ML (d) und 4 ML (e). Zum Vergleich wird auch das Beugungsspektrum (a) von der reinen CoGa(100)-Oberfläche dargestellt.

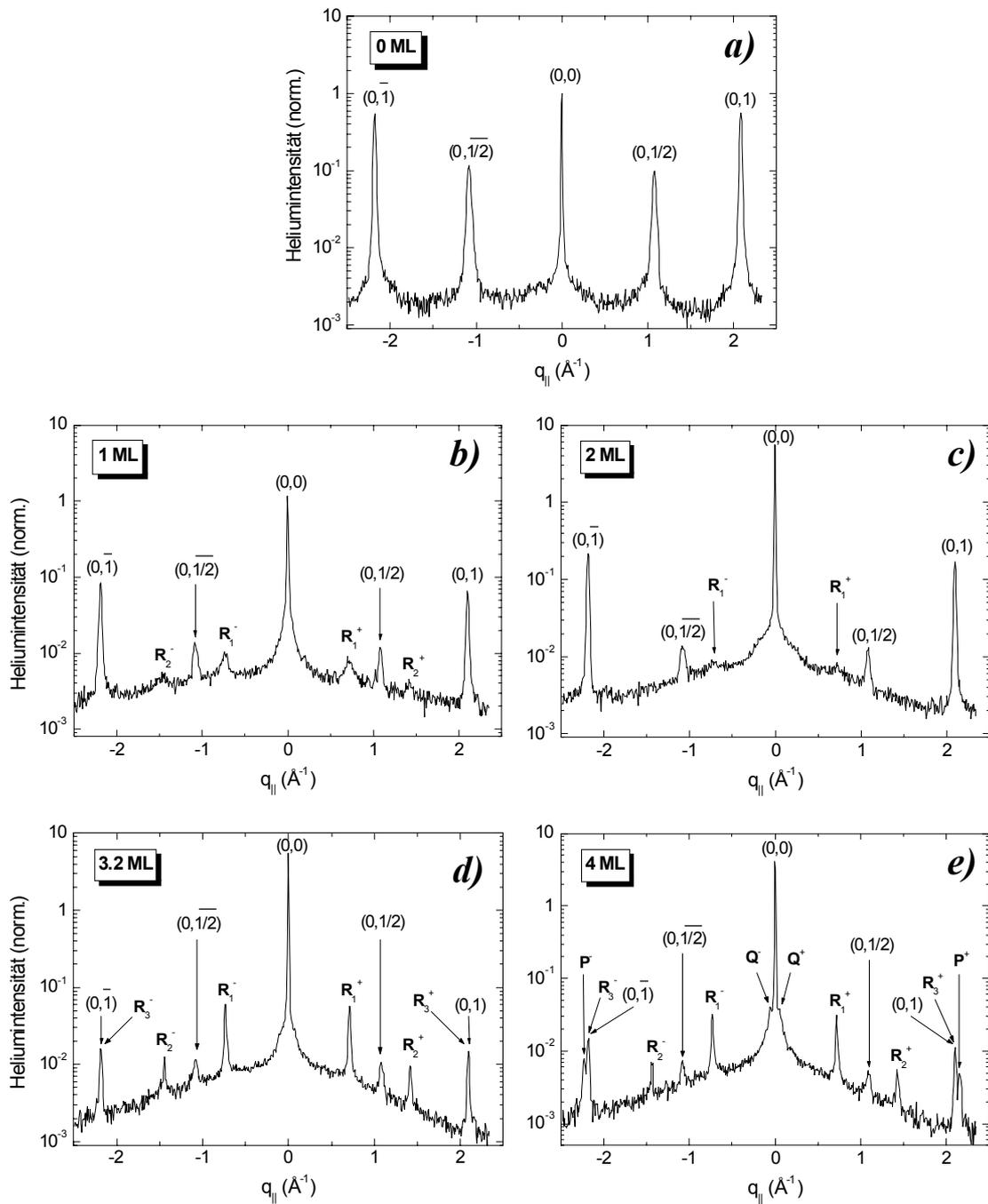


Abbildung 6.7: He-Beugungsspektren gemessen in $[001]$ -Richtung am Ga/CoGa(100)-Schichtsystem bei Ga-Bedeckungen von 0 ML (reine CoGa(100)-Oberfläche) (a), 1 ML (b), 2 ML (c), 3.2 ML (d) und 4 ML (e), aufgedampft bei 160 K. Die Energie der He-Atome betrug 24 meV.

Die Heliumintensität ist in allen Spektren auf die Intensität des (0,0)-Reflexes entsprechend der reinen CoGa(100)-Oberfläche normiert und auf einer logarithmischen Skala aufgetragen. Wie auch in Abbildung 6.1 gezeigt wurde, erreicht die gespiegelte Intensität bei 1 ML ungefähr den Anfangswert entsprechend der reinen CoGa(100)-Oberfläche. Die Höhe der Beugungsreflexe erster Ordnung nimmt hingegen etwa sechsmal und die der halben Ordnung sogar etwa achtmal ab gegenüber der reinen Oberfläche. Die diesen Reflexen verloren gegangene Intensität findet sich jedoch in den zusätzlichen Beugungsreflexen, $R_{1,2,3}^{\pm}$, sowie im erhöhten Untergrundsignal wieder. Wie man sieht, steigt das Untergrundsignal mit zunehmender Bedeckung weiter an. Dies ist teilweise auch der Grund, weshalb bei 2 ML die R_1^{\pm} -Reflexe kaum noch zu erkennen sind und die R_2^{\pm} -Reflexe ganz verschwinden. Dazu kommt noch eine im Vergleich zu (b) leichte Abnahme der absoluten Intensität dieser Reflexe. Im Fall der R_1^{\pm} -Reflexe beträgt die Intensitätsabnahme etwa 15%. Gleichzeitig steigt die Intensität der $\pm(0,1)$ -Reflexe etwa um das Doppelte, während die der $\pm(0,1/2)$ -Reflexe keine Veränderung zeigen. Ab 3.2 ML beträgt die Intensität der $\pm(0,1)$ -Reflexe nur noch $\sim 3\%$ der Intensität gemessen an der reinen CoGa(100)-Oberfläche. Auch die $\pm(0,1/2)$ -Reflexe sind relativ schwach, aber immer noch deutlich zu erkennen. Daraus kann man schließen, dass auch bei 4 ML Domänen mit einer $c(4\times 2)$ -Rekonstruktion existieren. Bei 3.2 ML ist die Überstruktur am besten ausgeprägt: Sowohl die gespiegelte Intensität

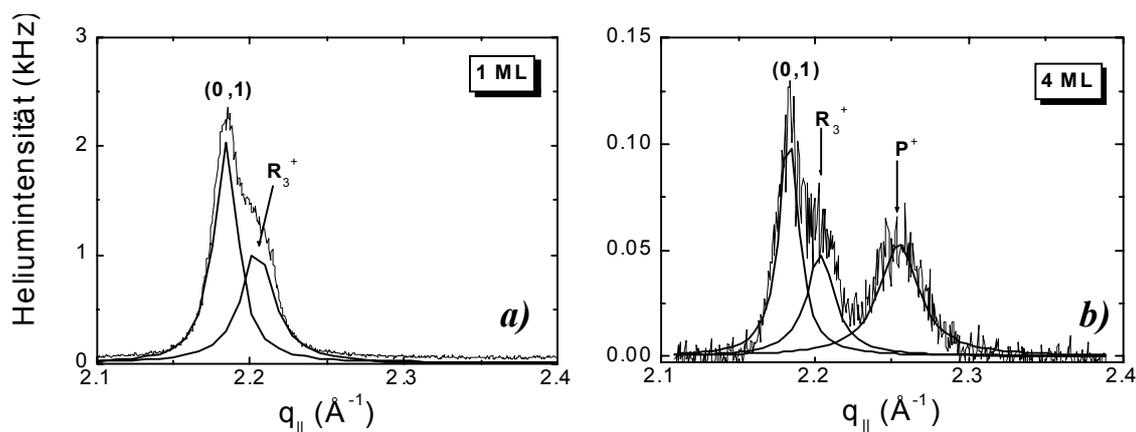


Abbildung 6.8: He-Beugungsprofile, gemessen am Ga/CoGa(100)-Schichtsystem bei Ga-Bedeckungen von **a)** 1 ML und **b.** 4 ML. Unter den Messkurven sind die angepassten Lorentz-Kurven eingezeichnet.

als auch die Intensität der Beugungsreflexe $R_{1,2,3}^{\pm}$ erreichen Höchstwerte. Bei dieser Bedeckung bemerkt man im Beugungsspektrum (siehe Abb. 6.7(d)) jeweils eine Schulter an der linken Seite des $(0, \bar{1})$ -Reflexes bzw. an der rechten Seite des $(0, 1)$ -Reflexes. Diese Schultern werden noch deutlicher und erscheinen als scharfe Beugungsreflexe bei einer Bedeckung von 4 ML (siehe Abb. 6.7(e)). Sie werden im Folgenden durch P^+ und P^- und die diesen zugeordnete Oberflächenstruktur als **P**-Struktur bezeichnet.

Zur Bestimmung der genauen Lage der P^{\pm} -Beugungsreflexe wurde auch hier das Beugungsprofil des $(0, 1)$ -Reflexes bei einer höheren Winkelauflösung aufgenommen und analysiert (siehe Abb. 6.8(b)). Das Beugungsprofil kann mit drei Lorentz-Kurven angepasst werden. Demnach liegen die entsprechenden Beugungsreflexen bei $q_{\parallel}(0, \pm 1) = \pm 2.18 \text{ \AA}^{-1}$, $q_{\parallel}(R_3^{\pm}) = \pm 2.20 \text{ \AA}^{-1}$ und $q_{\parallel}(P^{\pm}) = \pm 2.25 \text{ \AA}^{-1}$. Noch komplizierter wird die Struktur durch die bei 4 ML beobachteten Schultern links und rechts des gespiegelten Reflexes (Abb. 6.7(e)). Aufgrund verbesserter Winkelauflösung sind diese in Abbildung 6.9(b) noch deutlicher zu erkennen. Sie sind durch Q^+ und Q^- gekennzeichnet und liegen bei $q_{\parallel}(Q^{\pm}) = \pm(0.55 \pm 0.05) \text{ \AA}^{-1}$. In Abbildung 6.9(a) wird zum Vergleich das Beugungsprofil des gespiegelten Reflexes bei 1 ML dargestellt. In beiden Fällen ist die Intensität zur Verdeutlichung logarithmisch aufgetragen.

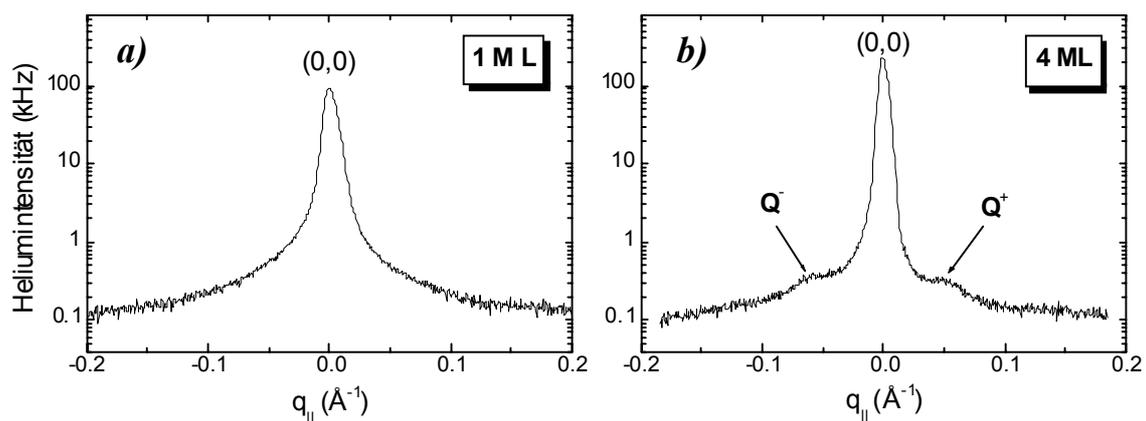


Abbildung 6.9: He-Beugungsprofile des $(0,0)$ -Reflexes einer Ga/CoGa(100)-Oberfläche, gemessen bei Ga-Bedeckungen von 1 ML (a) und 4 ML (b).

Um ein zweidimensionales Bild der Beugungsreflexe herzustellen, wurde der Azimutwinkel φ zwischen 0° und 45° variiert und alle 3° ein Beugungsspektrum (insgesamt 16 Spektren) aufgenommen. Abbildung 6.10 zeigt die von einer 3 ML dicken Ga-Schicht in dieser Weise aufgenommenen Beugungsspektren, jedoch nur für Richtungen, in denen deutliche Reflexe zu beobachten sind, d.h. für **a**) $\varphi = 0^\circ$ ([001]-Richtung), **b**) $\varphi = 18^\circ$ ([013]-Richtung) und **c**) $\varphi = 27^\circ$ ([012]-Richtung). Das in [001]-Richtung aufgenommene Beugungsspektrum wurde schon im vorhergehenden Abschnitt analysiert. In [013]-Richtung sieht man einen deutlichen Reflex bei $(2.30 \pm 0.01) \text{ \AA}^{-1}$ und einen noch erkennbaren Reflex bei etwa 0.77 \AA^{-1} . Diese entsprechen vermutlich der **R**-Struktur. An dieser Stelle muss bemerkt werden, dass alle 16 Beugungsspektren zumindest eine schwache Schulter im Bereich zwischen 0.7 und 0.9 \AA^{-1} aufweisen. Im Inset der Abbildung 6.10 ist die Intensität dieser Reflexe (Schultern) in Abhängigkeit von dem Azimutwinkel dargestellt. Man bemerkt ein Maximum für $\varphi = 0^\circ$ und eins zwischen 24° und 27° . Das erste Maximum entspricht dem R_1 -Beugungsreflex, das zweite Maximum befindet sich bei etwa 0.82 \AA^{-1} in [012]-Richtung (siehe Spektrum (c)).

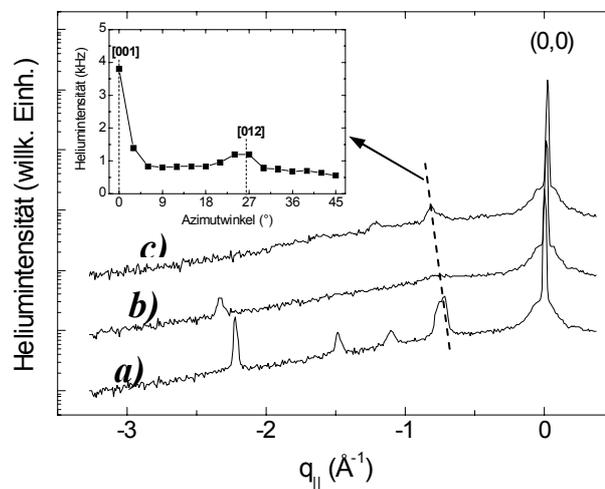


Abbildung 6.10: He-Beugungsspektren, gemessen an einer mit 3 ML Ga bedeckten CoGa(100)-Oberfläche bei Azimutwinkeln φ von: *a*) 0° (\equiv [001]-Richtung), *b*) 18° (\equiv [013]-Richtung) und *c*) 27° (\equiv [012]-Richtung). Intensität der entlang der gestrichelten Linie beobachteten Reflexe als Funktion des Azimutwinkels (Inset).

Die restlichen Schultern oder Reflexe, die zwischen 0.7 und 0.9 \AA^{-1} beobachtet werden, könnten demnach auch als Folge einer Verbreiterung dieser zwei Beugungsreflexe entstanden sein. In $[012]$ -Richtung ist auch ein deutlicher Reflex bei $(1.22 \pm 0.01) \text{ \AA}^{-1}$ entsprechend der $c(4 \times 2)$ -Struktur zu beobachten. Es ist möglich, dass einige Beugungsreflexe aufgrund der schwachen Korrugation der Oberfläche von dem relativ hohen Untergrundsignal überdeckt werden. Insofern liefern die He-Beugungsspektren ein unvollständiges zweidimensionales Beugungsbild und die Struktur der Oberfläche lässt sich in dieser Weise nicht genau bestimmen. Die He-Beugungsreflexe der **R**-Struktur in $[001]$ -Richtung, zusammen mit dem $(0,1/3)$ -Reflex in $[013]$ -Richtung deuten jedoch auf eine etwas verspannte (3×1) -Struktur in Bezug zum CoGa-Substrat. Die Gitterkonstanten dieser Struktur betragen $a = 2.85 \text{ \AA}$ und $b = 8.55 \text{ \AA}$. Vergleicht man diese mit den bekannten kristallinen Phasen des Galliums, so bemerkt man eine relativ gute Übereinstimmung mit β -Ga, das eine monokline Struktur mit den Gitterkonstanten $a = 2.77 \text{ \AA}$, $b = 8.05 \text{ \AA}$, $c = 3.33 \text{ \AA}$ und $\beta = 92^\circ$ besitzt [89]. Die hier mit **R** bezeichnete Struktur kann somit als eine β' -Phase des Galliums gesehen werden. Die für Ga-Bedeckungen $\Theta > 3$ ML beobachtete **P**-Struktur kann als eine weitere Verspannung der β' -Phase erklärt werden und wird hier als β'' -Phase bezeichnet. Die Gitterkonstanten der **P**-Struktur lassen sich aus der Lage der P^\pm -Reflexe zu $a = 2.80 \text{ \AA}$ und $b = 8.40 \text{ \AA}$ ermitteln. Offenbar versucht die Ga-Schicht mit zunehmender Bedeckung die Gitterparameter des β -Ga anzunehmen.

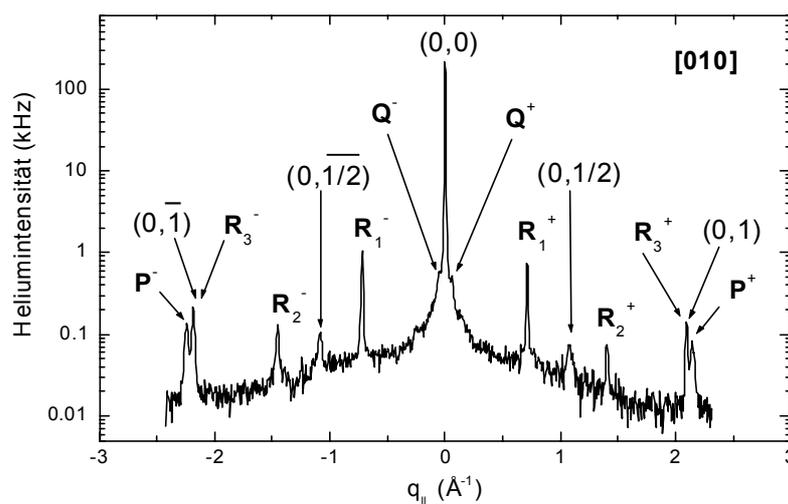


Abbildung 6.11: He-Beugungsspektrum gemessen in $[010]$ -Richtung an einem Ga/CoGa(100)-Schichtsystem, bei einer Ga-Bedeckung von 4 ML. Die Energie der He-Atome betrug 13 meV.

In Abbildung 6.11 wird das in [010]-Richtung des CoGa(100)-Kristalls gemessene He-Beugungsspektrum, dargestellt. Dies weist dieselben Beugungsreflexe wie das in [001]-Richtung aufgenommene Beugungsspektrum auf (siehe Abb. 6.7-(e)). Die Existenz der Beugungsreflexe $(0, \pm 1/2)$ und $(0, \pm 1)$ lässt vermuten, dass es auch Ga-Domäne gibt, in denen die Ga-Atome die Struktur der CoGa(100)-Oberfläche angenommen hat. Daraus kann man schließen, dass sowohl die $c(4 \times 2)$ -Struktur als auch die β' -Ga-Struktur in zwei senkrecht zueinander stehenden Domänen an der Oberfläche existieren.

Informationen über die Morphologie des Ga/CoGa(100)-Schichtsystems lassen sich aus der in Abbildung 6.12 dargestellten Interferenzkurve gewinnen. Sie zeigt die gespiegelte Heliumintensität in Abhängigkeit von dem senkrechten Wellenvektorübertrag q_{\perp} , gemessen für eine Galliumbedeckung von 10 ML. Wie man sieht, zeigt die Interferenzkurve keine Maxima und Minima der gespiegelten Heliumintensität, sondern lediglich eine kontinuierliche Abnahme aufgrund des Debye-Waller-Effektes (siehe Kap.2.1.5). Die Interferenzeffekte und dementsprechend die Anzahl der Stufen an der Oberfläche ist demnach sehr gering, d.h. die Oberfläche ist extrem glatt. Auch bei niedrigeren Bedeckungen zeigen die Interferenzkurven kein oszillatorisches Verhalten.

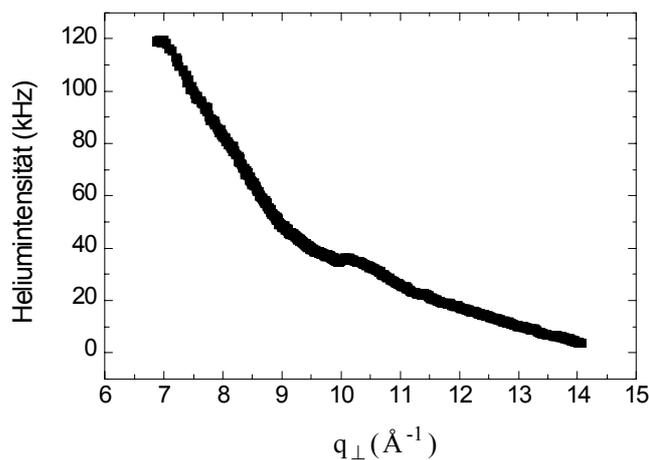


Abbildung 6.12: Interferenzkurve gemessen an dem Ga/CoGa(100)-Schichtsystem bei einer Ga-Bedeckung von 10 ML, unmittelbar nach dem Wachstum bei 160 K.

6.2 Anlassen des Schichtsystems Ga/ CoGa(100)

6.2.1 Thermische Stabilität

Zunächst wird die thermische Stabilität der bei 160 K aufgedampften Ga-Schichten mittels AES untersucht. Abbildung 6.13(a) zeigt den Verlauf der peak-to-peak Amplituden der AES-Übergänge von Co (775 eV) und Ga (1070 eV) und Abbildung (b) den Verlauf des peak-to-peak Verhältnisses von Co (775 eV) zu Ga (1070 eV) jeweils als Funktion der Proben temperatur, gemessen bei einer Ga-Bedeckung von 10 ML. Wie in Kapitel 6.1.1 gezeigt wurde (Abb. 6.2(b)) stammt das AES-Signal von Ga aus dem CoGa-Substrat und nicht von der aufgedampften Ga-Schicht. Da die emittierten Augerelektronen von beiden Übergängen (Co und Ga) die aufgedampfte Schicht passieren müssen, erhält man jedoch Informationen auch über diese Ga-Schicht. Sowohl das Co- als auch das Ga-Signal bleiben bis zu einer Temperatur von 420 K nahezu konstant und deuten damit auf eine in diesem Temperaturbereich stabile Ga-Schicht hin. Mit der Darstellung des peak-to-peak Verhältnisses in (b) ist die durch Schwankungen der Elektronenemission verursachte Streuung der Messdaten minimiert und man bemerkt bei 230 K einen kleinen, jedoch reproduzierbaren Anstieg des Co zu Ga-Verhältnisses von 0.59 auf 0.63, also um etwa 5%. Er ist vermutlich auf eine Umordnung der Oberflächenatome zurückzuführen und wird im Folgenden anhand der He-Streudaten weiter diskutiert. Obwohl die Schmelztemperatur des reinen Galliums bei etwa 303 K liegt, kommt es zu einer deutlichen Veränderung des Co- bzw. des Ga-Signals erst oberhalb von 420 K. Das Co-Signal steigt stark an, erreicht bei etwa 750 K das Doppelte des Anfangswertes, und deutet damit auf die Segregation von Co an die Oberfläche hin. Andererseits kann es durch eine Abnahme der Ga-Schichtdicke erklärt werden. Der leichte Anstieg des Ga-Signals spricht für diese letztere Annahme. Da das Aufdampfen von Gallium zu einer Abnahme des Ga-Signals führte (siehe Abschnitt 6.1.1), ist hier der Anstieg des Co-Signals mit dem Verschwinden von Ga-Adatomen von der Oberfläche zu korrelieren. Dies kann sowohl durch eine Diffusion der Ga-Atome in das Substrat als auch durch Desorption geschehen. Bestärkt wird diese Annahme durch den Anstieg des Co/Ga-Peakverhältnisses. Man sieht bis etwa 560 K einen deutlichen Anstieg, gefolgt von einem Plateau bis 750 K. Es kommt also in diesem Temperaturbereich zu einer Art Gleichgewicht der an der Oberfläche stattfindenden Diffusionsprozesse.

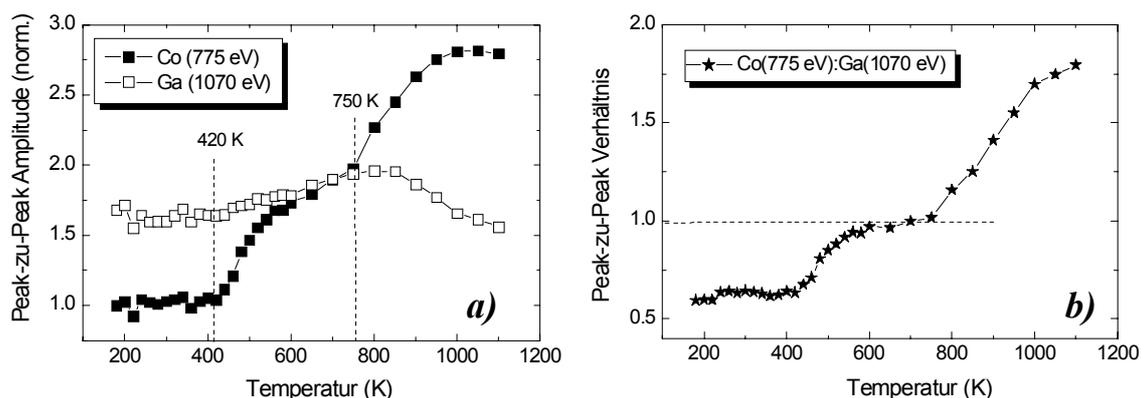


Abbildung 6.13: AES-Messungen an einer mit 10 ML Ga bedeckten CoGa(100)-Oberfläche während des Anlassens auf 1100 K: *a)* peak-to-peak Amplituden von Co (775 eV) und Ga(1070 eV), normiert auf den Anfangswert des Ga-Signals und *b)* peak-to-peak Verhältnis von Co(775 eV) zu Ga(1070 eV), gemessen in Abhängigkeit von der Anlasstemperatur. Die Heizrate betrug 20 K/min.

Das peak-to-peak Verhältnis von Co zu Ga bei 750 K beträgt 1.0 und ist somit viel kleiner als das Verhältnis, das der reinen CoGa(100)-Oberfläche bei derselben Temperatur entspricht (Co:Ga \approx 1.47). Daraus kann man schließen, dass zumindest ein Teil des deponierten Galliums noch in den oberflächennahen Schichten verweilt.

Oberhalb von 750 K steigt das Co-Signal erneut an, während das Ga-Signal zwischen 750 und 850 K nahezu konstant bleibt und danach deutlich abnimmt. Dieses Verhalten deutet auf eine Ga-Desorption hin und passt zum Verlauf der an der reinen CoGa(100)-Oberfläche gemessenen Desorptionskurve (siehe Kap. 8). Bei 1100 K erreicht das Co zu Ga-Verhältnis \sim 1.8. Auch dieser Betrag ist kleiner als der an der reinen CoGa(100)-Oberfläche bei dieser Temperatur gemessene (Co:Ga = 2.1) und weist auf eine Ga-Anreicherung an der CoGa(100)-Oberfläche hin. Zusammenfassend sei bemerkt, dass obwohl die AES-Signale vom CoGa-Substrat stammen, man trotzdem Hinweise über das thermische Verhältnis der Ga-Schicht erhält.

6.2.2 Phasenübergänge

Zunächst soll der Einfluss der Anlasstemperatur auf die Oberflächenstruktur des Ga/CoGa(100)-Schichtsystems untersucht werden. Dazu wurde die Probe unmittelbar nach dem Wachstum von 10 ML Ga auf der CoGa(100)-Oberfläche bei 160 K mit 15 K/min geheizt und die gespiegelte Heliumintensität in Abhängigkeit von der Temperatur bis 550 K aufgenommen (Abb. 6.14). Man bemerkt ein ziemlich komplexes Verhalten der Heliumintensität: Sie nimmt bis ~ 220 K ab, steigt dann bis ~ 240 K stark an und zeigt weiterhin eine kontinuierliche Abnahme bis sie bei ~ 420 K im Untergrundsignal verschwindet. Im Temperaturbereich zwischen 160 und 220 K lässt sich die Abnahme aufgrund des Debye-Waller-Effektes erklären. Von 220 bis 240 K steigt die Intensität um etwa 50% an und weist auf eine strukturelle Phasenumwandlung hin. Wie schon im vorhergehenden Abschnitt gezeigt wurde, nimmt in diesem Temperaturbereich gleichzeitig auch der Co-Anteil um 5% der Oberfläche zu. Oberhalb von 240 K nimmt die Intensität wiederum als Folge des Debye-Waller-Effektes bis ~ 320 K deutlich ab. Bei 360 K beträgt sie noch etwa 10% des Anfangswertes. Oberhalb von ~ 430 K sinkt die gespiegelte Heliumintensität ganz in das Untergrundsignal hinein. Dies ist auch die

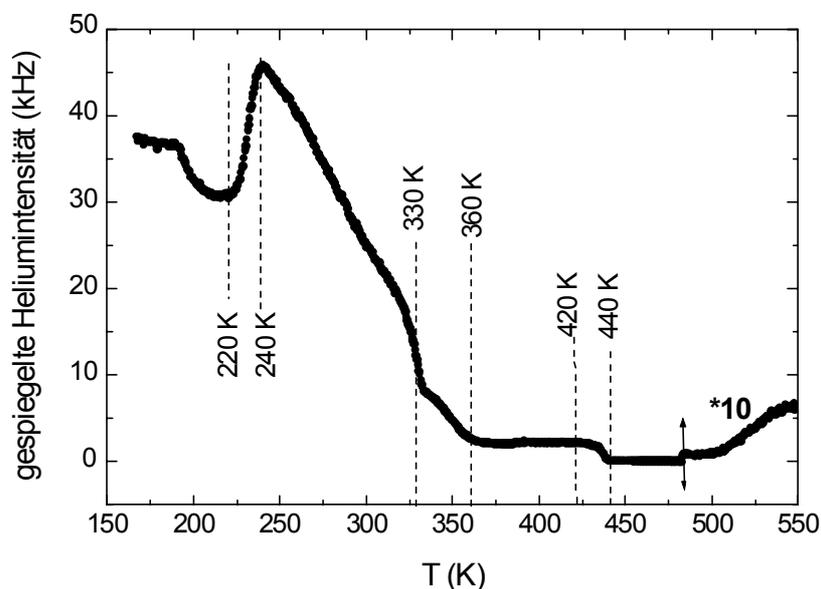


Abbildung 6.14: Gespiegelte Heliumintensität als Funktion der Anlasstemperatur, gemessen am Ga/CoGa(100)-Schichtsystem bei einer nominellen Ga-Bedeckung von 10 ML. Oberhalb von 480 K ist die Intensität mit einem Faktor 10 multipliziert aufgetragen. Die Heizrate betrug 15 K/min und die Energie der He-Atome 13 meV.

Temperatur wo auch mittels AES eine starke Zunahme des Co-Anteils beobachtet wurde. Die gespiegelte Heliumintensität nimmt oberhalb von 500 K wieder zu und ist deutlich vom Untergrund zu unterscheiden.

Um die Natur dieses Verhaltens näher zu untersuchen, wurden auch Beugungsspektren bei verschiedenen Temperaturen gemessen. Abbildung 6.15 zeigt die in $[001]$ -Richtung aufgenommenen Spektren, gemessen an einer bei 160 K auf der CoGa(100)-Oberfläche gewachsenen 3 ML dicken Ga-Schicht, und zwar für 160 K (a), 200 K (b), 240 K (c) und 270 K (d). Im Spektrum (b) ist gegenüber dem Spektrum (a) keine Veränderung in der Beugungsstruktur des Ga/CoGa(100)-Systems zu bemerken, lediglich die Intensität der Beugungsreflexe nimmt gemäß dem Debye-Waller-Effekt etwas ab (siehe auch Abb. 6.14). Bei 240 K werden keine Reflexe der \mathbf{R} -Struktur mehr beobachtet und nur die für die $c(4\times 2)$ -Rekonstruktion charakteristischen $(0, \pm 1/2)$ - und $(0, \pm 1)$ -Beugungsreflexe sind noch zu erkennen. Diese werden schwächer mit zunehmender Temperatur und sind bei 270 K kaum noch zu erkennen. Das Verschwinden der Beugungsreflexe der durch Gallium induzierten Überstruktur kann demnach den in Abbildung 6.14 beobachteten Phasenübergang erklären und stimmt mit dem Anstieg des AES peak-to-peak Verhältnisses von Co zu Ga in diesem Temperaturbereich (siehe Abb. 6.13(b)) gut überein.

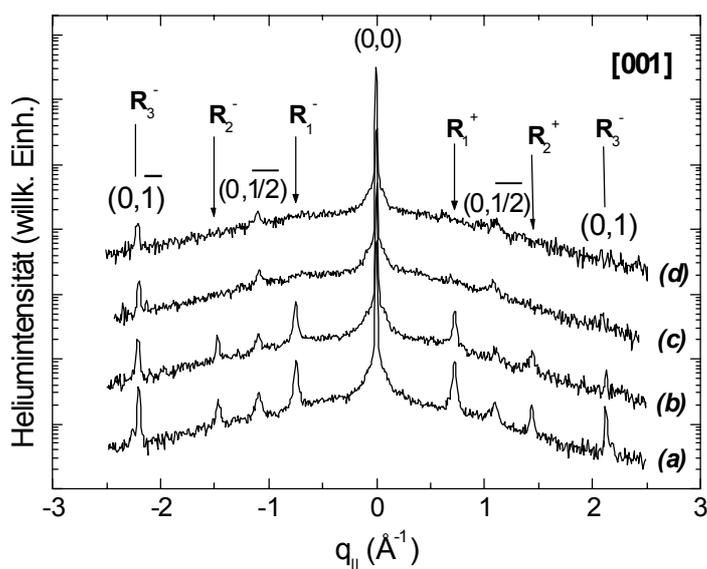


Abbildung 6.15:

He-Beugungsspektren gemessen an einer mit 3 ML Ga bedeckten CoGa(100)-Oberfläche bei Proben-temperaturen von 160 K (a), 200 K (b), 240 K (c) und 270 K (d). Die Heliumintensität ist logarithmisch aufgetragen.

Um den Temperaturbereich, in dem dieser Phasenübergang stattfindet, genauer zu bestimmen, wurde die Intensität des R_1 -Reflexes der Überstruktur \mathbf{R} kontinuierlich als Funktion der Anlasstemperatur verfolgt (siehe Abb. 6.16(a)). Wie man sieht, nimmt die Intensität gemäß dem Debye-Waller-Effekt bis 220 K ungefähr linear ab und verschwindet oberhalb von 240 K. Die gespiegelte Heliumintensität ist bei 280 K immer noch relativ hoch (siehe Abb. 6.14). Mit zunehmender Temperatur zeigt sie einen wie in Abbildung 6.16(b) dargestellten Verlauf an. Auch hier sieht man eine ungefähr lineare Abnahme der Intensität bis etwa 330 K. Danach fällt die Intensität drastisch ab und geht ab 360 K gegen Null. Die Abnahme der gespiegelten Heliumintensität oberhalb 360 K (Abb. 6.14 und Abb. 6.16(b)) zeigt, dass keine weiteren Ordnungsprozesse in der Ga-Schicht stattfinden und hier ein Ordnung/Unordnung- Phasenübergang stattfindet.

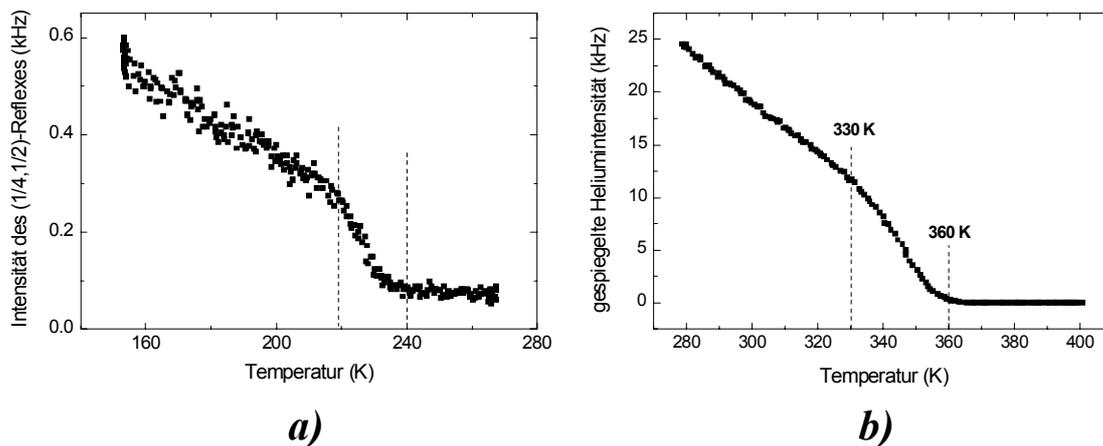


Abbildung 6.16: Temperaturabhängigkeit der He-Intensität des $(1/4, 1/2)$ -Beugungsreflexes (a) und der gespiegelten Heliumintensität (b), gemessen an einer mit 3 ML Ga bedeckten Co-Ga(100)-Oberfläche. Die Heizrate betrug 15 K/min und die Energie der He-Atome 13 meV.

6.3 Diskussion und Zusammenfassung

Im vorliegenden Kapitel wurden das Wachstum und die strukturellen Eigenschaften von Ga auf der CoGa(100)-Oberfläche mittels TEAS, AES und LEED als Funktion der Bedeckung und der Temperatur untersucht. Die bei 160 K aufgenommenen Wachstumskurven zeigen bis zu einer Bedeckung von 3.2 ML zwar ein periodisches, in der Amplitude jedoch stark zunehmendes Oszillationsverhalten der gespiegelten Heliumintensität und deuten somit auf ein nicht ideales Lagenwachstum hin. In diesem Bereich ändern sich die Oberflächeneigenschaften dramatisch. Das Reflexionsvermögen steigt mit zunehmender Bedeckung und erreicht ein Maximum bei 3.2 ML. Die He-Intensität beträgt hier etwa ein Sechsfaches gegenüber der reinen CoGa(100)-Oberfläche. Ab 3.2 ML beobachtet man ein ganz unterschiedliches Wachstumsverhalten. Die gespiegelte Heliumintensität nimmt kontinuierlich ab, zeigt jedoch auch bei 11 ML einen immer noch relativ hohen Wert an. Dieses Verhalten deutet weder auf ein ideales lagenweises Wachstum noch auf ein ideales 3D-Wachstum hin. Die Beobachtung von Beugungsreflexen der $c(4 \times 2)$ -Struktur ($\Theta > 3$ ML) lässt vermuten, dass es Ga-Domäne gibt, in denen die Ga-Atome die Struktur der darunter liegenden rekonstruierten CoGa(100)-Oberfläche angenommen haben. Neben diesen erscheinen im He-Beugungsspektrum bei 1 ML und dann bei 4 ML Reflexe zweier weiterer Oberflächenstrukturen. Beide können relativ gut mit der (100)-Fläche des β -Ga erklärt werden. Sie zeigen eine rechteckige Struktur mit den Gitterkonstanten von $a = 2.85$ Å und $b = 8.55$ Å bzw. $a = 2.80$ Å und $b = 8.40$ Å, die um 4-6% (β') und um 1-4% (β'') größer sind als die Gitterparameter der β -Ga(100)-Fläche. Demnach können die zwei beobachteten Strukturen als β' - bzw. β'' -Phase bezeichnet werden. Die Heliumbeugungsspektren zeigen in [001]- und [010]-Richtung identische Beugungsstrukturen, was zu der Annahme führt, dass die zwei beobachteten Strukturen, **R** und **P**, in zwei senkrecht zu einander stehenden Domänen existieren. Die Intensität der Beugungsreflexe ist gegenüber der gespiegelten Heliumintensität sehr gering und deutet auf eine schwach korrigierte Oberfläche hin. Dies wird auch durch die He-Interferenzkurven bestätigt. Sie zeigen keine Oszillationen, sondern lediglich eine kontinuierliche Abnahme der gespiegelten Heliumintensität aufgrund des Debye-Waller-Effektes. Dieses Verhalten deutet wiederum auf eine relativ glatte Oberfläche hin.

Bei 160 K zeigt die Oberfläche des Ga/CoGa(100)-Schichtsystems für eine Ga-Bedeckung von 3 ML die Koexistenz von $c(4\times 2)$ - und β' -Ga(100)-Domänen. Das Anlassen auf höhere Temperaturen führt zu strukturellen Umwandlungen dieser Oberfläche. Ein erster Phasenübergang wird etwa zwischen 220 und 240 K beobachtet. Dabei verschwinden die für β' -Ga(100) charakteristischen Beugungsreflexe, gleichzeitig aber steigt die gespiegelte Intensität deutlich an. Die Beugungsreflexe entsprechend der $c(4\times 2)$ -Domänen werden schwächer, sind jedoch immer noch deutlich sichtbar. Der Phasenübergang macht sich auch in den AES-Messungen durch eine Erhöhung von etwa 5% des peak-to-peak Verhältnisses von Co(775 eV) zu Ga(1070 eV) bemerkbar.

Zwischen 330 K und 360 K kommt es zu einer drastischen Abnahme der gespiegelten Intensität, die nicht komplett aufgrund des Debye-Waller-Effektes erklärt werden kann. Das peak-to-peak Verhältnis von Co(775 eV) zu Ga(1070 eV) bleibt zwischen 240 und 420 K nahezu konstant, d.h. die Zusammensetzung der Oberfläche bleibt unverändert. Da die Schmelztemperatur des Galliums bei etwa 303 K liegt, ist es wahrscheinlich, dass die Oberfläche mit zunehmender Temperatur ungeordneter wird. Man kann daher schließen, dass die Oberfläche in diesem Temperaturbereich einen *Ordnung/Unordnung-Phasenübergang* erleidet.

Oberhalb von 360 K ist die gespiegelte Intensität sehr gering, ist jedoch noch von dem Untergrundsignal zu unterscheiden. Erst bei etwa 420 K nimmt sie erneut ab und verschwindet oberhalb von 440 K im Untergrundsignal. Diese Änderung wird diesmal auch durch einen deutlichen Anstieg des AES-Signals von Co(775 eV) begleitet und kann somit teils durch Desorption des Galliums und teils durch Interdiffusion, erklärt werden.

Kapitel 7

Wachstum und Charakterisierung des Schichtsystems Fe/ β -Ga₂O₃/ CoGa(100)

Wie bereits in der Einleitung und in Kapitel 4 erwähnt, spielen Metalloxide insbesondere in der heterogenen Katalyse eine wichtige Rolle, wobei sie als Trägermaterial für katalytisch aktive Metalle dienen. Sie werden ferner als passivierende Schichten, sowie zur Herstellung von Halbleiterbauteilen verwendet. Zur Zeit werden dünne Aluminium- und Galliumoxidschichten als Tunnelbarrieren zwischen ferromagnetische Metallschichten in magnetischen Tunnelkontakte (TMR- tunneling magnetoresistance) [1, 2] eingesetzt, die potentielle Anwendung in so genannten MRAM (Magnetic Random Access Memory)-Bausteine finden [3, 4]. Das Galliumoxid wird insbesondere als Sensor für Sauerstoff bei hohen Temperaturen [155] oder als aktives Medium in Katalysatoren [156] verwendet.

Eine zur Herstellung wohlgeordneter, ultradünner Ga₂O₃-Filme geeignete und einfache Methode ist die Oxidation von Oberflächen der intermetallischen Verbindung CoGa [7, 8, 94, 157, 158]. Während sich bei Raumtemperatur eine amorphe Galliumoxidschicht auf der CoGa(100)-Oberfläche bildet, lassen sich durch Anlassen auf Temperaturen von 700-900 K gut geordnete, homogene und atomar glatte β -Ga₂O₃-Schichten mit einer Schichtdicke von 10-15 Å präparieren [159]. Neulich wurde gezeigt, dass die bestgeordneten β -Ga₂O₃-Schichten durch Oxidation bei Temperaturen von 800-900 K erzeugt werden [94]. Die β -Phase des Ga₂O₃ ist isomorph zur θ -Phase des Al₂O₃ und weist eine monokline Struktur auf, mit den Gitterkonstanten $a = 3.04$ Å, $b = 5.80$ Å, $c = 12.23$ Å und $\beta = 103.7^\circ$ [160, 161].

In diesem Kapitel wird das Wachstum von Fe auf β -Ga₂O₃/CoGa(100) beschrieben. Da die Oxidation bei hohen Temperaturen in Ref. [94] detailliert untersucht wurde, wird hier nur kurz auf die Struktur der bei 800 K präparierten β -Ga₂O₃-Schicht eingegangen. Weiterhin wird das Wachstumsverhalten von Eisen bei 300 K sowie bei 600 K untersucht, und die bei diesen Temperaturen gebildeten Fe/ β -Ga₂O₃/CoGa(100)-Mehrfachschichten werden bezüglich ihrer Struktur und Morphologie charakterisiert. Dabei werden die LEED- und TEAS-Messungen von den in einer anderen Apparatur von Frau C. Elsaesser durchgeführten STM (Rastertunnelmikroskopie) Experimenten ergänzt. Die chemische Zusammensetzung der oberflächennahen Schichten, sowie die thermische Stabilität des Schichtsystems Fe/ β -Ga₂O₃/CoGa(100) wurde mittels AES untersucht.

7.1 Wachstum von β -Ga₂O₃ auf CoGa(100) bei 800 K

Die CoGa(100)-Oberfläche wird, wie in Kap. 5.1 beschrieben, präpariert und weist folglich eine $c(4\times 2)$ -Rekonstruktion mit zwei senkrecht zueinander stehenden Domänen auf (siehe Abb. 5.1). Abbildung 7.1 zeigt ein AES-Spektrum, gemessen nach der Oxidation der CoGa(100)-Oberfläche bei 800 K mit 150 L O₂ ($1\cdot 10^{-6}$ mbar, 150 s). Man erkennt die charakteristischen AES-Übergänge von Kobalt, Gallium und Sauerstoff, jedoch keine weiteren Übergänge, die auf eine Verunreinigung mit Fremdelementen hindeuten würden.

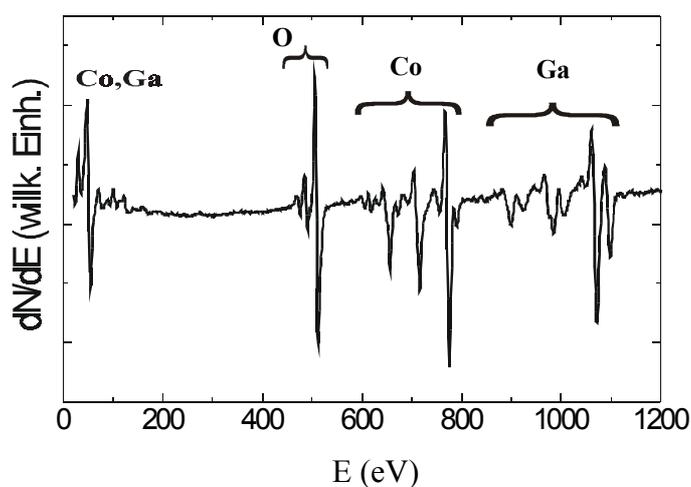


Abbildung 7.1: AES-Spektrum von β -Ga₂O₃/CoGa(100).

Abbildung 7.2(a) zeigt ein LEED-Bild, aufgenommen nach der Oxidation der CoGa(100)-Oberfläche bei 800 K mit 150 L O₂. Bei dieser Begasung ist die CoGa(100)-Oberfläche mit Sauerstoff gesättigt [94]. Das LEED-Bild zeigt eine (2×1)-Struktur gegenüber der unrekonstruierten CoGa(100)-Oberfläche, mit zwei senkrecht zueinander stehenden Domänen. Diese sind zur Verdeutlichung in dem in Abbildung 7.2(b) dargestellten Schema der Reflexe eingezeichnet. Die Einheitszelle weist Gitterkonstanten von $a = 2.9 \pm 0.1 \text{ \AA}$ und $b = 5.8 \pm 0.1 \text{ \AA}$ auf und deutet damit auf eine wohlgeordnete β -Ga₂O₃-Schicht hin [7, 8, 94, 157, 158]. TEAS-Messungen bestätigen diese Struktur. Abbildung 7.2(c1-c3) zeigt He-Beugungsspektren der bei 800 K oxidierten CoGa(100)-Oberfläche, gemessen in [001]-, [012]- und [011]-Richtung. In [001]-Richtung sind die Beugungsreflexe bei $\pm(0,1/2)$ und $\pm(0,1)$ sichtbar, die zusammen mit den in [011]-Richtung beobachteten $\pm(1,1)$ -Reflexen auch für die reine CoGa(100)-Oberfläche charakteristisch sind (vgl. Abb. 5.1). Ein wesentlicher Unterschied ist in [012]-Richtung bemerkbar. Gegenüber der reinen CoGa(100)-Fläche werden hier keine Reflexe bei $\pm(1/4,1/2)$ beobachtet, was auf eine komplett mit Oxid bedeckte CoGa(100)-Oberfläche schließen lässt. In [011]-Richtung zeigt das Beugungsspektrum eine relativ zum gespiegelten Reflex hohe Intensität der $\pm(1,1)$ -Reflexe und deutet damit auf eine in dieser Richtung starke Korrugation der Oberfläche hin. In allen drei gemessenen Richtungen beobachtet man scharfe (0,0)-Reflexe, die auf eine relativ große mittlere Terrassenbreite zurückzuführen sind.

Die Topographie einer bei 900 K oxidierten Oberfläche liefert das STM-Bild in Abbildung 7.2(d). Man erkennt senkrecht zueinander stehen Domänen mit einer gestreiften Struktur. Der Abstand zwischen den Streifen beträgt $b = 5.8 \pm 0.1 \text{ \AA}$. Entlang der Streifen ist die Struktur nicht aufgelöst. Frühere STM-Untersuchungen haben aber gezeigt, dass die zweidimensionale Einheitszelle der Oberfläche eine (2×1)-Struktur hat und die Gitterkonstante entlang der Streifen $a = 2.9 \pm 0.1 \text{ \AA}$ beträgt [8, 158].

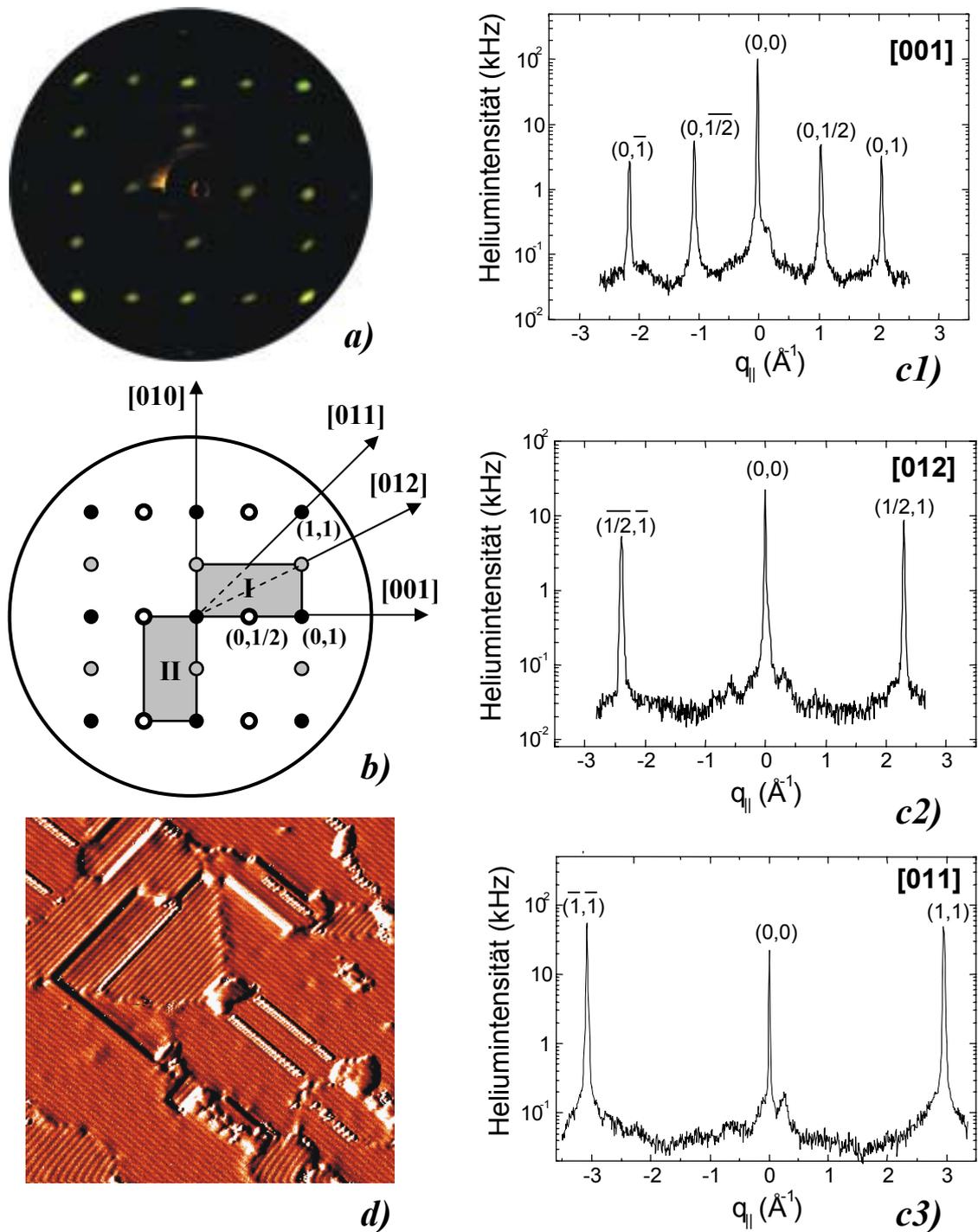


Abbildung 7.2: Oberflächenstruktur einer mit 150 L O_2 bei 800 K oxidierten CoGa(100)-Oberfläche: **a)** LEED-Bild, aufgenommen bei 93 eV; **b)** Schema der Reflexe: Die vollen Kreise (●) entsprechen einer (1×1)-Struktur der CoGa(100)-Fläche, die grauen (◐) und die leeren Kreise (○) stellen zusätzliche Reflexe einer (2×1)-Überstruktur mit zwei senkrecht zueinander stehenden Domänen (I und II) dar; **c1-c3)** He-Beugungsspektren gemessen in [001]-, [012]- und [011]-Richtung; **d)** STM-Bild mit einem Bildausschnitt von 40×40 nm.

7.2 Fe/ β -Ga₂O₃/ CoGa(100)-Multischichten

Nachdem in Kapitel 4 das Wachstum des Fe/Ga₂O₃/Fe₃Ga_{2-x}As_x/GaAs(100)-Schichtsystems untersucht wurde, wird hier auf das Wachstum und die Oberflächeneigenschaften des Schichtsystems Fe/ β -Ga₂O₃ auf der CoGa(100)-Oberfläche eingegangen. Aufgrund der geringen Fehlpassung der Gitterkonstanten von α -Fe ($a = 2.87 \text{ \AA}$) und β -Ga₂O₃/CoGa(100) ($a = 2.9 \text{ \AA}$ und $b = 5.8 \text{ \AA}$) ist ein epitaktisches Wachstum des Eisens auf der oxidierten CoGa(100)-Oberfläche zu erwarten. Aus thermodynamischer Sicht scheint ein dreidimensionales Wachstum des Eisens energetisch günstiger zu sein, da die freie Oberflächenenergie des Eisens bei Raumtemperatur (2900 mJ/m^2) viel größer ist als die des Galliumoxides ($< 925 \text{ mJ/m}^2$). In den folgenden Abschnitten soll nun analysiert werden, ob Fe epitaktisch oder als 3D-Cluster auf β -Ga₂O₃ aufwächst und inwieweit kinetische Effekte das Wachstumsverhalten beeinflussen (siehe auch Kap. 1.2).

7.2.1 Fe-Wachstum auf β -Ga₂O₃/ CoGa(100) bei 300 K

Abbildung 7.3 zeigt den Verlauf der gespiegelten Heliumintensität, aufgenommen während des Eisenwachstums mit einer Aufdampfrate von 1 ML/min bei 300 K, als Funktion der Bedeckung. Die Aufdampfrate wurde dabei aus den während des Fe-Wachstums auf der CoGa(100)-Oberfläche bei 300 K beobachteten periodischen Oszil-

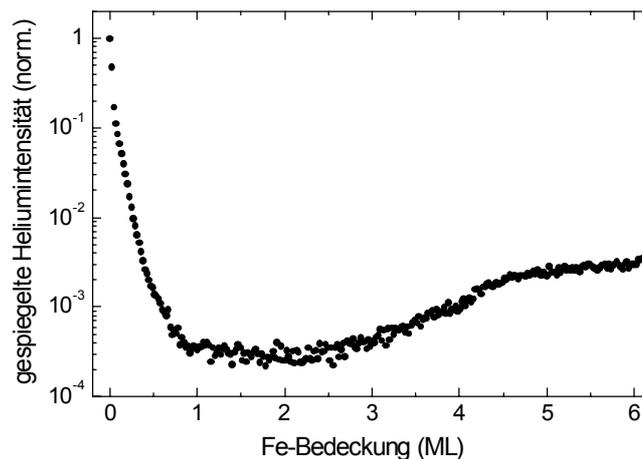


Abbildung 7.3: Gespiegelte Heliumintensität, aufgenommen während des Wachstums von Fe bei 300 K auf der Ga₂O₃/CoGa(100)-Multischicht als Funktion der Bedeckung. Die Energie der He-Atome betrug 24 meV. Die Intensität ist logarithmisch aufgetragen.

lationen ermittelt. Die Intensität ist auf ihren Anfangswert (entsprechend der reinen Oxidschicht) normiert und zur besseren Verdeutlichung auf einer logarithmischen Skala dargestellt. In der Anfangsphase des Wachstums nimmt die Intensität ungefähr exponentiell ab und verschwindet oberhalb einer Monolage im Untergrundsignal. Dieses Verhalten deutet auf ein dreidimensionales Wachstum hin, wie es aus thermodynamischen Gründen auch erwartet wird. Erstaunlicherweise steigt die gespiegelte Heliumintensität ab etwa 2 ML erneut an und erreicht bei 6 ML einen Wert, der etwa zehnmal größer ist als das Untergrundsignal, aber im Verhältnis zur Anfangsintensität nur noch $3 \cdot 10^{-3}$ beträgt. Dies zeigt, dass sich mit zunehmender Bedeckung auch zweidimensionale Inseln bilden, die Oberfläche jedoch rau bleibt.

Diese Annahmen werden sowohl durch die LEED-Bilder als auch durch die He-Beugungsspektren bestärkt. Abbildung 7.4(a) zeigt das LEED-Bild, aufgenommen bei 83 eV, unmittelbar nach dem Wachstum von 6 ML Fe bei 300 K. Man erkennt ein Beugungsmuster mit schwachen und breiten Reflexe in [001]- und [010]-Richtung, das auf die Existenz von sehr kleinen geordneten 2D-Inseln an der Oberfläche hindeutet. Zur besseren Orientierung ist in Abbildung 7.4(b) eine Skizze der beobachteten Beugungsreflexe bezüglich der Hauptrichtungen im reziproken Raum hinzugefügt.

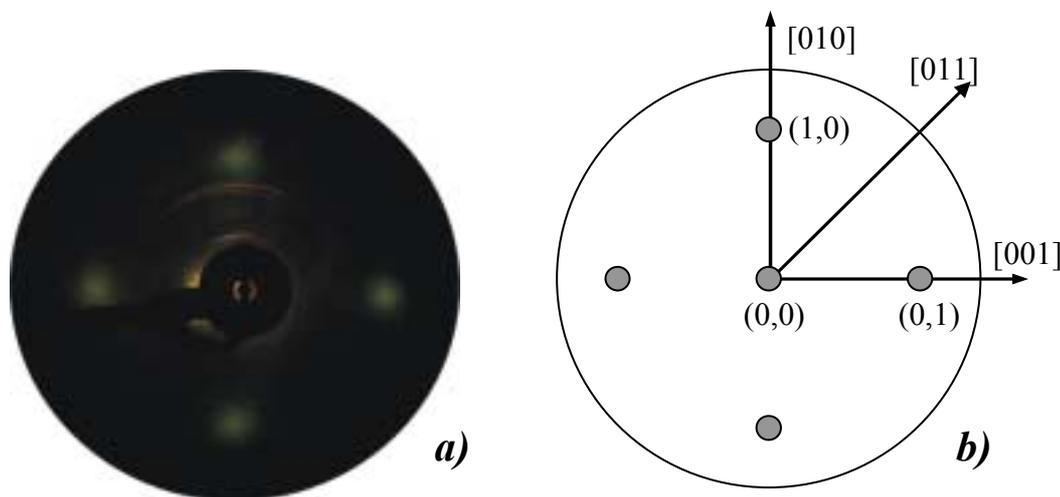


Abbildung 7.4: *a)* LEED-Bild des Schichtsystems Fe/Ga₂O₃/CoGa(100), aufgenommen bei 83 eV für eine Fe-Bedeckung von 6 ML, gewachsen bei 300 K, und *b)* Schema der Reflexe.

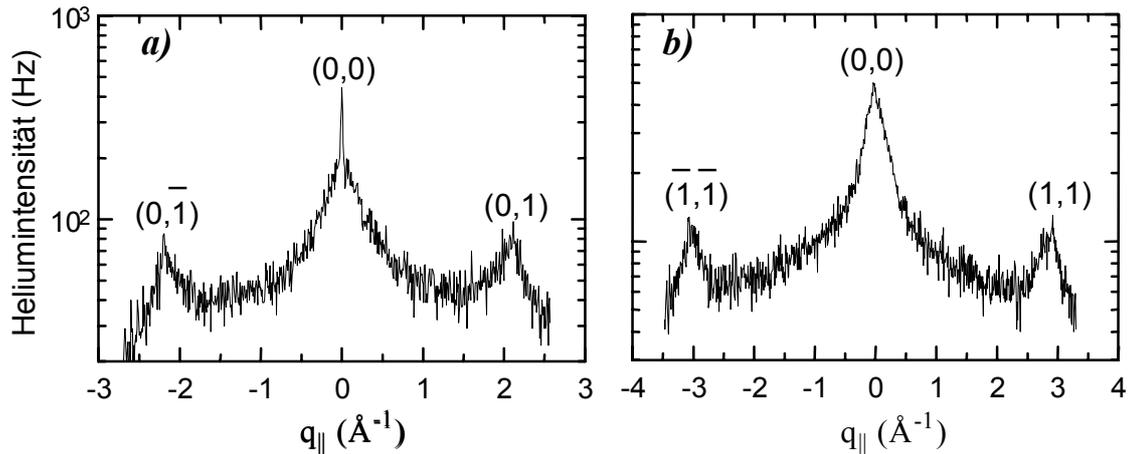


Abbildung 7.5: Helium-Beugungsspektren gemessen in a) [001]- und b) [011]-Richtung am Schichtsystem Fe/Ga₂O₃/CoGa(100) für eine Fe-Bedeckung von 6 ML, gewachsen bei 300 K. Die Energie der Heliumatome betrug 30.5 meV (Anti-Phase-Interferenzbedingung).

Eine genauere Bestimmung der Gitterkonstanten der erzeugten Oberflächenstruktur erfolgt mittels He-Beugungsspektren, wie sie als Beispiel in Abbildung 7.5 für die [001]- und [011]-Richtung dargestellt sind. Die Beugungsreflexe in [001]-Richtung liegen bei etwa $\pm 2.18 \text{ \AA}^{-1}$, die in [011]-Richtung bei $\pm 3.08 \text{ \AA}^{-1}$. Sie entsprechen im Realraum einer quadratischen Struktur mit einer Gitterkonstanten von 2.88 \AA und stimmen somit sehr gut mit dem erwarteten Beugungsmuster einer α -Fe(100)-Oberfläche überein. Diese besitzt eine Einheitszelle mit einer Gitterkonstanten von 2.866 \AA im Realraum [86, 87]. Wie das LEED-Bild zeigen auch die He-Beugungsspektren sehr schwache und breite Beugungsreflexe, die auf einen relativ hohen Unordnungsgrad und eine raue Oberfläche zurückzuführen sind.

Vorläufige STM-Messungen bestätigen sowohl das dreidimensionale Wachstum als auch die Existenz von zweidimensionalen Inseln. In Abbildung 7.6 sind STM-Bilder, gemessen am Schichtsystem Fe/ β -Ga₂O₃/CoGa(100) für Fe-Bedeckungen von 2 ML (a), 4ML (b) und 6 ML (c), mit jeweils einem Bildausschnitt von $750 \times 750 \text{ \AA}^2$ dargestellt. In allen Bildern sind dreidimensionale Strukturen (Cluster) mit unregelmäßiger Form und unterschiedlicher Größe zu erkennen. Man bemerkt, dass sowohl die Form als auch die Größe der sich während des Wachstums bildenden Fe-Cluster von der Fe-Bedeckung abhängen. Das Höhenprofil der beobachteten Cluster kann anhand von *line-scans* bestimmt werden. Hier sind zur Verdeutlichung line-scans jeweils am Beispiel ausgewählter Cluster unter den STM-Bilder eingezeichnet.

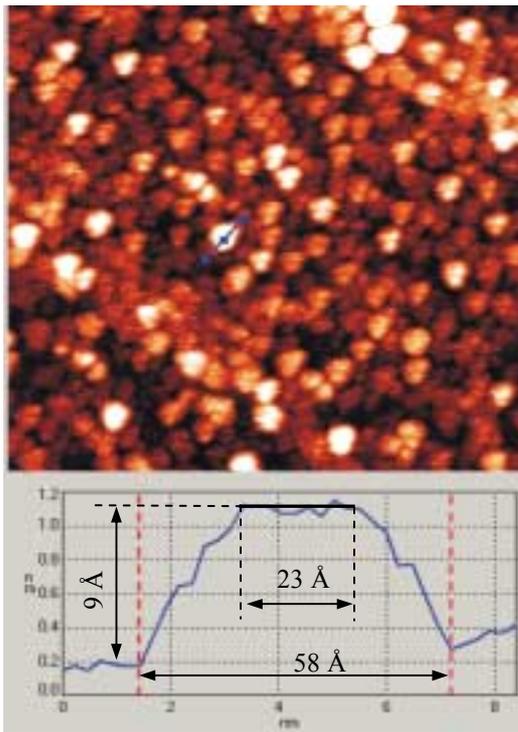
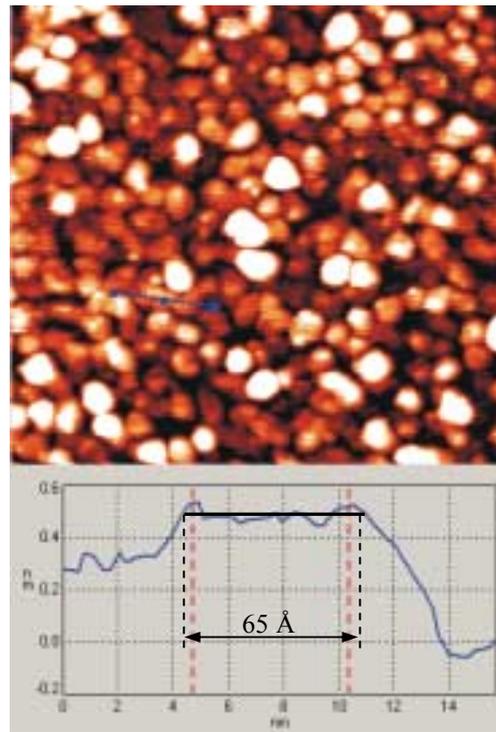
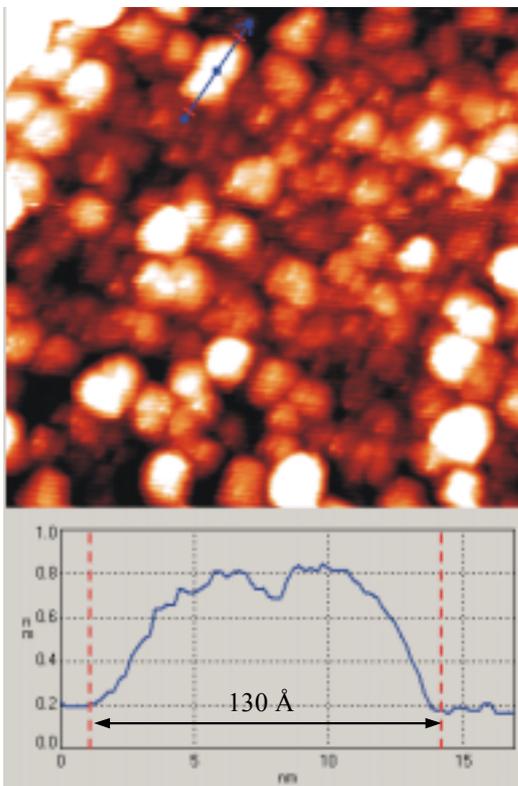
*a)**b)**c)**d)*

Abbildung 7.6: Oberflächenmorphologie und Struktur des Schichtsystems Fe/Ga₂O₃/CoGa(100): STM-Bilder aufgenommen für Fe-Bedeckungen von *a)* 2 ML, *b)* 4 ML und *c)* 6 ML; *d)* LEED-Bild, aufgenommen bei 91 eV, der in *c)* dargestellten Oberfläche.

Bei einer Fe-Bedeckung von 2 ML (siehe Abb. 7.6(a)) zeigt der line-scan, gemessen in der mit einem Pfeil angezeigten Richtung, ein Profil mit einer Breite von fast 60 Å und einer Höhe von ~ 9 Å. Man erkennt zusätzlich ein Plateau entsprechend einem Durchmesser von ~ 23 Å. Das Plateau selbst ist durch eine atomare Rauigkeit von etwa 0.5 Å charakterisiert. Werden line-scans entlang unterschiedlicher Richtungen an demselben Cluster gemessen, so sieht man, dass alle drei Parameter (Breite, Höhe und Plateaudurchmesser) um einige Ångstrom variieren. Sowohl der Cluster selbst als auch dessen atomar glatte Oberfläche haben also eine unregelmäßige Form. An mehreren Clustern gemessene line-scans zeigen, dass deren Größe zwischen 40 und 60 Å in der Breite und bis zu 9 Å in der Höhe beträgt. Die Plateaus erreichen im Durchschnitt ca. 20 bis 30 Å im Durchmesser. Die Existenz solcher atomar glatter Flächen ist auf die an der Oberfläche laufenden Diffusionsprozesse zurückzuführen. Wie die He-Wachstumskurve in Abb. 7.3 zeigt, ist die gespiegelte Heliumintensität bei 2 ML vergleichbar mit dem Untergrundsignal, d.h. der kohärente Anteil der gespiegelten He-Intensität ist gering gegenüber dem aus der Streuung an den Stufenkanten resultierenden diffusen Anteil. Mit zunehmender Bedeckung nimmt die durchschnittliche Clustergröße zu, die maximale Größe einzelner Cluster überschreitet bei einer Fe-Bedeckung von 4 ML (siehe Abb. 7.6(b)) jedoch nicht ca. 60 Å im Durchmesser und 9 Å (~ 6 atomare Lagen) in der Höhe. Zusätzlich kommt es auch zu einem Zusammenwachsen der Cluster. Dadurch nimmt die gesamte Fläche kohärent streuender Domänen gegenüber der Stufenkandendichte zu, was zu dem in Abbildung 7.3 gezeigten Anstieg der gespiegelten Heliumintensität führt. Durch das Zusammenwachsen der Cluster nimmt nicht nur die laterale Größe der Cluster zu, sondern auch die Größe der Plateaus an deren Oberfläche, wie der line-scan in Abbildung 7.6(b) verdeutlicht. Dieser zeigt das Profil eines durch die Koaleszenz mehrerer Cluster entstandenen 3D-Struktur. Man erkennt ein Plateau mit einer Breite von ~ 50 Å, das auf eine relativ glatte Fläche hindeutet. Das Zusammenwachsen der Cluster setzt sich mit zunehmender Bedeckung fort und führt bei einer Bedeckung von 6 ML zu 3D-Inseln von bis zu 130 Å Durchmesser (siehe Höhenprofil in Abb. 7.6(c)) und 12 Å Höhe. Die Cluster wachsen also eher lateral als senkrecht zur Oberfläche, so dass auch die gesamte Fläche der Plateaus zunimmt. Dies wiederum erklärt den in der He-Wachstumskurve (Abb. 7.3) anhaltenden Anstieg der Intensität mit zuneh-

mender Fe-Bedeckung. Abbildung 7.6(d) zeigt ein LEED-Bild, aufgenommen bei 91 eV, von der in Abbildung 7.6(c) dargestellten Fläche.

Als nächstes soll die chemische Zusammensetzung der oberflächennahen Schichten bestimmt werden. Abbildung 7.7 zeigt AES-Spektren, gemessen vor- (a) bzw. nach (b) dem Wachstum von 6 ML Eisen auf β -Ga₂O₃/CoGa(100). In (b) erkennt man die charakteristischen AES-Übergänge von Eisen, Sauerstoff, Gallium und Kobalt und keine Verunreinigungen mit Fremdelementen. Aufgrund der Abschirmung durch die Eisenschicht, nehmen die peak-to-peak Amplituden der Co- und der Ga-Übergänge gegenüber (a) deutlich ab. Geht man von den in Tabelle 5.1 angegebenen Werte der mittleren freien Weglänge der Elektronen (λ_{calc}) für Co (775 eV) und Ga(1070 eV), so lässt sich gemäß Gleichung (2.32) die Dicke der Fe-Schicht abschätzen. Aus der Abnahme des Co-Signals ergibt sich eine Schichtdicke von $\sim 12.4 \text{ \AA}$ ($\sim 8.6 \text{ ML}$), aus der Abnahme des Ga-Signals $\sim 9 \text{ \AA}$ ($\sim 6 \text{ ML}$). Der Unterschied lässt sich dadurch erklären, dass die Gleichung (2.32) nur im Fall eines Lagenwachstums relativ genaue Ergebnisse liefert, während hier 3D-Eisencluster entstehen. Wie man sieht, stimmt die aus dem Ga-Signal ermittelte Schichtdicke jedoch mit der mittels Heliumstreuung bestimmten gut überein. Die Abnahme der peak-to-peak Amplitude des AES-Übergangs von Sauerstoff bei 510 eV beträgt nur etwa 20% und entspricht gemäß Gleichung (2.32) zu einer Dicke der Fe-Schicht von etwa 1.6 \AA ($\sim 1.1 \text{ ML}$). Dies zeigt, dass der Sauerstoff nur wenig abgeschirmt wird, was zu der Annahme führt, dass ein Teil der Sauerstoffatome während des Fe-Wachstums an die Oberfläche „schwimmt“ (*surfactant* Effekt).

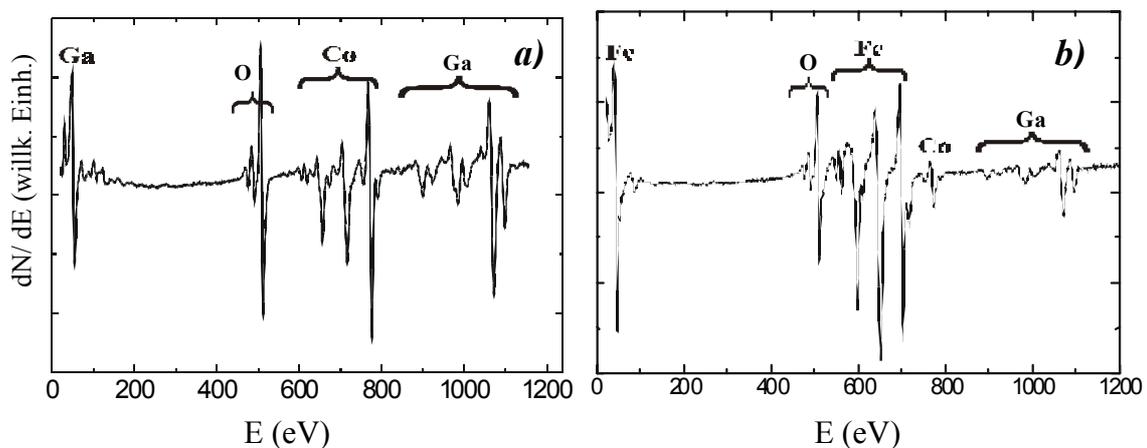


Abbildung 7.7: AES-Spektrum, gemessen *a)* vor und *b)* nach dem Wachstum von 6 ML Fe auf β -Ga₂O₃/CoGa(100) bei 300 K.

7.2.2 Thermische Stabilität des Schichtsystems Fe/ β -Ga₂O₃/CoGa(100)

Zunächst soll geklärt werden bis zu welcher Temperatur die Fe-Schicht thermisch stabil ist. Dazu wurde die Probe, nach der Deposition von 6 ML Fe bei 300 K auf der β -Ga₂O₃/CoGa(100)-Oberfläche, mit einer Rate von 5 K/min geheizt und es wurden AES-Spektren im Temperaturbereich zwischen 350 und 750 K aufgenommen. Abbildung 7.8 zeigt die AES-Übergänge von Fe (598 eV), Co (775 eV) und Ga (1070 eV) als Funktion der Temperatur. Das Fe-Signal bleibt, innerhalb der Messgenauigkeit von $\pm 3\%$, konstant bis etwa 540 K, nimmt dann bis 650 K um etwa 7% ab, fällt oberhalb von 650 K stark ab und erreicht bei 750 K einen Wert, der nur noch $\sim 60\%$ des bei 300 K gemessenen beträgt. Die peak-to-peak Amplituden von Co und Ga zeigen einen ähnlichen Verlauf: Sie bleiben bis 450 K nahezu konstant, steigen dann ungefähr linear an bis 680 K und nehmen danach bis 750 K stark zu. Der leichte Anstieg zwischen 350 und 600 K für beide Kurven beträgt etwa 8 bis 10% des Anfangswertes und kann durch eine Umordnung bzw. eine Glättung der Fe-Schicht erklärt werden. Die drastische Abnahme des Fe-Signals oberhalb von 650 K deutet hingegen auf eine Diffusion des Eisens durch das Oxid in das Substrat hin. Ein ähnliches Phänomen wurde beim System Co/Al₂O₃/Ni₃Al(100) beobachtet. Durch Anlassen oberhalb von 700 K, diffundiert Co durch das Oxid in das Ni₃Al-Substrat [162]. Ein ähnliches Verhalten ist auch hier denkbar.

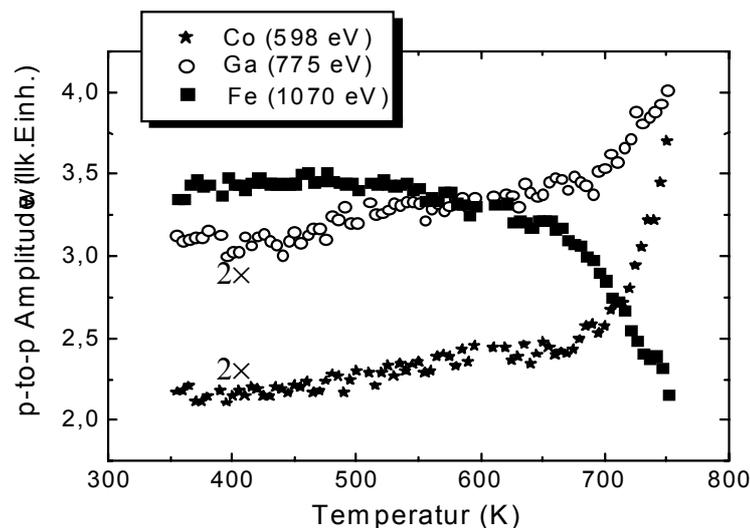


Abbildung 7.8: Temperaturabhängigkeit der AES peak-to-peak Amplituden von Fe (598 eV), Co (775 eV) und Ga (1070 eV) während des Anlassens des Schichtsystems Fe/Ga₂O₃/CoGa(100) bis zu 750 K.

Der Einfluss der Temperatur auf die Oberflächenmorphologie ist mittels TEAS untersucht worden. Abbildung 7.9 zeigt den Verlauf der gespiegelten Heliumintensität als Funktion der Temperatur während des Anlassens des Schichtsystems Fe/ β -Ga₂O₃/CoGa(100), gemessen unmittelbar nach der Deposition von 6 ML Fe bei 300 K. Die Temperatur wurde um 5 K/min erhöht und die Intensität ist auf den bei 300 K gemessenen Wert normiert. Wie man sieht, zeigt die Intensität einen nahezu konstanten Verlauf bis etwa 400 K, sie steigt dann bis 450 K leicht und bis 600 K stark an und zeigt weiter eine deutliche Abnahme bis 700 K. Wie man in Abbildung 7.9 sieht, erreicht die gespiegelte Heliumintensität bei 600 K ein Maximum, das ein Zwölffaches der Intensität bei 300 K beträgt. Daraus schließt man, dass man durch Anlassen eine besser geordnete Oberfläche erhält.

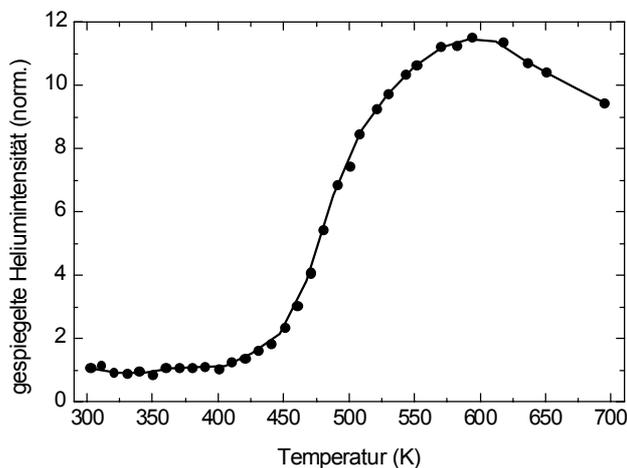


Abbildung 7.9: Temperaturabhängigkeit der gespiegelten Heliumintensität, während des Anlassens des Schichtsystems Fe/Ga₂O₃/CoGa(100) bis zu 750 K.

Das sich die Oberfläche der Fe/ β -Ga₂O₃/CoGa(100)-Multischicht mit zunehmender Temperatur ordnet, wird durch die He-Beugungsspektren bestätigt. Abbildung 7.10 zeigt He-Beugungsspektren gemessen bei 300 K in die [011]-Richtung von 6 ML Fe auf β -Ga₂O₃/CoGa(100) nach der Deposition bei 300 K (Spektrum (a)) und nach Anlassen auf 500 K (Spektrum (b)) und 600 K (Spektrum (c)). Man erkennt, dass die gespiegelte Heliumintensität mit der Temperatur ansteigt und bei 500 K ein Sechsfaches bzw. bei 600 K ein Zehnfaches des bei 300 K gemessenen Wertes erreicht. Ungefähr im selben Maß nimmt auch die Intensität der $\pm(1,1)$ -Reflexe mit der Temperatur zu. Gleichzeitig verringert sich die mittlere Halbwertsbreite der Beugungsreflexe von $\sim 0.4 \text{ \AA}^{-1}$ bei 300 K bis zu $\sim 0.07 \text{ \AA}^{-1}$ bei 600 K.

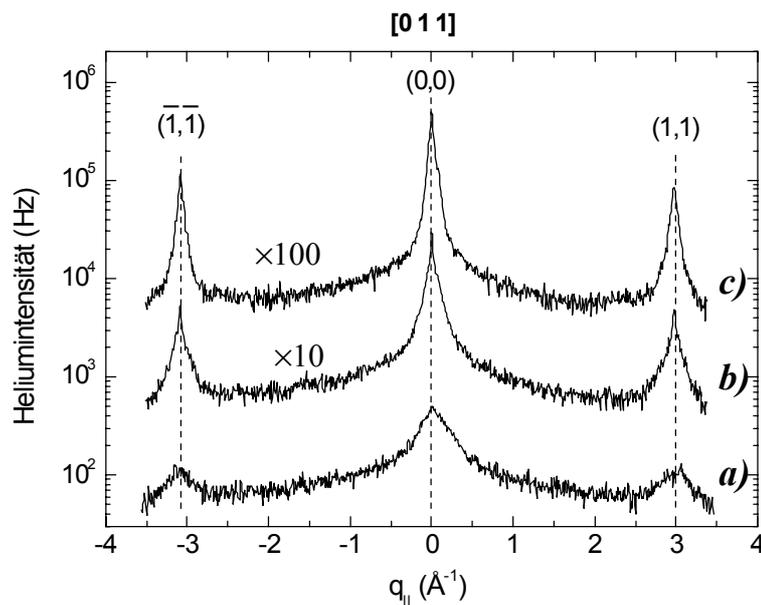


Abbildung 7.10: Helium-Beugungsspektren, gemessen bei 300 K in [011]-Richtung am Schichtsystem Fe/Ga₂O₃/CoGa(100) bei *a*) 300 K, *b*) 500 K und *c*) 600 K. Zur besseren Anschaulichkeit wurde das Spektrum (*b*) um einen Faktor 10 und das Spektrum (*c*) um einen Faktor 100 auf der Intensitätsskala nach oben verschoben.

7.2.3 Fe-Wachstum auf β -Ga₂O₃/ CoGa(100) bei 600 K

Das Wachstum von Eisen auf der β -Ga₂O₃/CoGa(100)-Oberfläche bei 600 K wurde ebenfalls untersucht. Dabei wurde das Eisen mit einer Rate von ~ 1 ML/min aufgedampft. Abbildung 7.11 zeigt den Verlauf der gespiegelten Heliumintensität, aufgenommen während des Fe-Wachstums als Funktion der Bedeckung. Die Intensität ist auf ihren Anfangswert (entsprechend der reinen Oxidschicht) normiert und ist zur Verdeutlichung auf einer logarithmischen Skala aufgetragen. Man erkennt ab 1 ML ein abweichendes Verhalten der gespiegelten Heliumintensität gegenüber dem bei Raumtemperaturwachstum gemessenen (Abb. 7.4): Zunächst nimmt sie in der Anfangsphase stark ab, erreicht ebenfalls bei 1 ML ein Minimum, danach steigt sie wieder an und erreicht bei 1.8 ML ein Maximum, geht durch ein flaches Minimum bei 3 – 3.5 ML und nimmt danach bis 10 ML stetig zu. Am Ende erreicht die Intensität etwa die Hälfte der Anfangsintensität. Im Vergleich zum Raumtemperaturwachstum, führt das Fe-Wachstum bei 600 K also zu einer relativ glatten und besser geordneten Oberfläche hin.

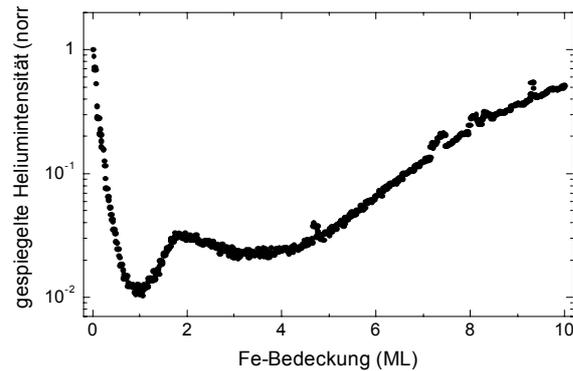


Abbildung 7.11: Gespiegelte Heliumintensität, aufgenommen während des Wachstums von Fe bei 600 K auf $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3/\text{CoGa}(100)$ als Funktion der Bedeckung. Die Energie der He-Atome betrug 24 meV. Die Intensität ist auf den Anfangswert normiert und logarithmisch aufgetragen.

Die Struktur einer mit 10 ML Eisen bedeckten $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3/\text{CoGa}(100)$ -Multischicht wurde mittels LEED untersucht. Abbildung 7.12 zeigt ein LEED-Bild, aufgenommen bei einer Energie von 83 eV. Man erkennt ein ähnliches Beugungsmuster wie im Fall des Wachstums bei 300 K, die Beugungsreflexe sind hier jedoch viel intensiver und schärfer (vgl. Abb. 7.5(a)). Die Lage der Reflexe stimmt mit der in Abbildung 7.5(a) beobachteten überein und deutet auf eine, diesmal besser geordnete, bcc Fe(100)-Schicht hin, oder wie man unten beschreiben wird, einer Fe-O-Schicht, die sich an der Oberfläche bildet.

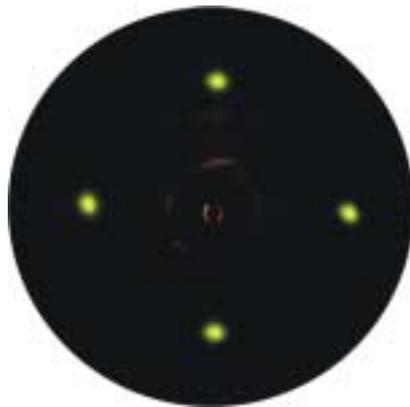


Abbildung 7.12: LEED-Bild gemessen am Schichtsystem Fe/ $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3/\text{CoGa}(100)$ unmittelbar nach dem Wachstum von 10 ML Fe bei 600 K, bei einer Energie von 83 eV.

Aufschluss über die Zusammensetzung der oberflächennahen Schichten des Fe(10 ML)/ $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3/\text{CoGa}(100)$ -Schichtsystems gibt das AES-Spektrum in Abbildung 7.13(a). Man sieht, dass der AES-Übergang von Co bei 775 eV bei dieser Bedeckung aufgrund der Abschirmung des Substrates durch die Fe-Deckschicht verschwunden ist.

Die Intensität des AES-Übergang von Ga bei 1070 eV ist gering, aber noch deutlich zu erkennen und stammt von Ga-Atomen aus dem Galliumoxid. Aus der Abnahme des Ga-Signals gegenüber der eisenfreien Oberfläche lässt sich die Dicke der Fe-Schicht zu 18 Å (~ 12.6 ML) abschätzen. Unerwartet ist die relativ hohe Intensität des AES-Übergangs von O bei 510 eV. Das Amplitudenverhältnis der AES-Übergänge von O(510 eV) und Ga(1070 eV) beträgt hier etwa 6.6. Zum Vergleich, beträgt das Amplitudenverhältnis von O(510 eV) zu Ga(1070 eV) nur 1.4 bei der eisenfreien (vgl. Abb. 7.3) und 2.5 bei der mit 6 ML Fe (bei 300 K) bedeckten Oberfläche (vgl. Abb. 7.8). Daraus kann man schließen, dass sich ein Teil der Sauerstoffatome in den oberflächennahen Fe-Schichten befindet.

Um diesen Hinweis besser zu verstehen, wurde ein AES-Spektrum bei niedrigen Energien aufgenommen (Abb. 7.13(b)). Es zeigt neben dem für metallisches Fe charakteristischen AES-Übergang bei 47.5 eV, zwei weitere Übergänge. Der erste erscheint in Form einer Schulter bei ~ 40 eV, der zweite liegt bei etwa 52.5 eV. Bei den gleichen

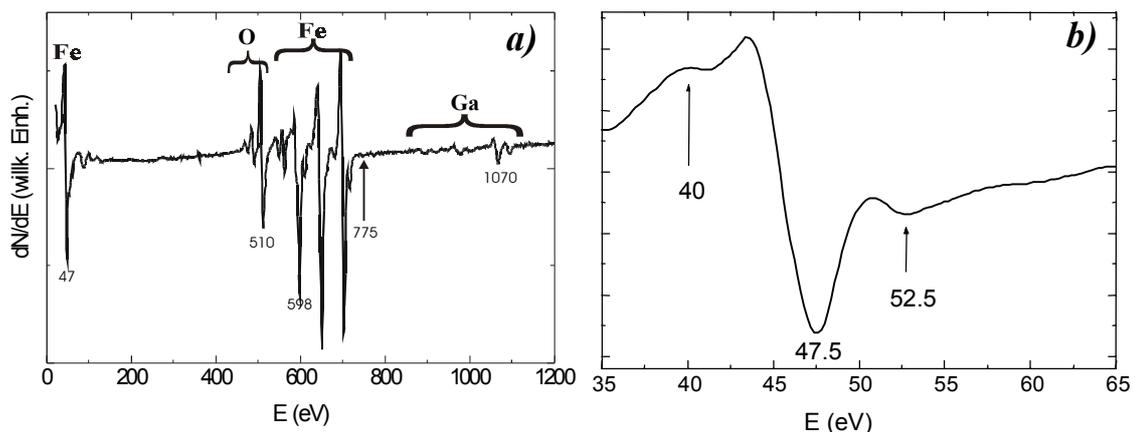


Abbildung 7.13: AES-Spektren gemessen an einem bei 600 K gewachsen Schichtsystem Fe/Ga₂O₃/CoGa(100) bei einer Fe-Bedeckung von 10 ML.

Energien wurden AES-Übergänge auch bei der Oxidation einer Fe(5 ML)/Cu(110)-Oberfläche beobachtet [94]. Die AES-Übergänge wurden Fe³⁺-Ionen einer Fe₂O₃-Schicht zugeordnet. In unserem Fall entspricht die beobachtete (1×1)-Struktur (gegenüber einer bcc α -Fe(100)-Fläche) jedoch keiner der bekannten Eisenoxidmodifikationen (siehe Tabelle 3.3). Dies lässt sich dadurch erklären, dass sich an der Oberfläche eine Fe-O-Schicht ergibt, mit einer (1×1)-Struktur relativ zum Fe(100)-Substrat und erst mit zunehmender Bedeckung ein dreidimensionales Eisenoxid entstehen würde [163-166].

7.3 Diskussion und Zusammenfassung

In diesem Kapitel wurde das Wachstum und die Oberflächeneigenschaften des Schichtsystems Fe/ β -Ga₂O₃/CoGa(100) bei Temperaturen von 300 bis 600 K und Fe-Bedeckungen von bis zu 10 ML untersucht. Dazu wurde die c(4×2)-rekonstruierte CoGa(100)-Oberfläche mit 150 L O₂ bei 800 K oxidiert. Dadurch wächst auf der CoGa(100)-Oberfläche eine ca. 10 Å dicke β -Ga₂O₃-Schicht.

Das Eisenwachstum bei 300 K auf β -Ga₂O₃/CoGa(100) führt in der Anfangsphase zur Bildung von dreidimensionalen Cluster mit unregelmäßiger Form und unterschiedlicher Größe. Die Cluster zeigen zweidimensionale Oberflächen (Plateaus) mit einer maximaler Durchmesser von 30 Å. Für Fe-Bedeckungen $\Theta \geq 2$ ML kommt es zu einem Zusammenwachsen der Fe-Cluster, wobei diese bei 6 ML laterale Größen von bis zu 130 Å erreichen. Gleichzeitig nimmt auch die gesamte Fläche der kohärent streuenden Plateaus zu und die Oberfläche wird mit zunehmender Fe-Bedeckung dementsprechend glatter. Das 3D-Wachstum von Fe auf β -Ga₂O₃ erfolgt aufgrund der viel höheren Oberflächenenergie des Eisens (2939 mJ/m²) im Vergleich zu der des Galliumoxides (< 925 mJ/m²). Die LEED-Bilder des Plateaus zeigen eine (1×1)-Struktur, die mit der bcc Fe(100)-Fläche erklärt werden kann. Die Form eines solchen Fe-Clusters ist in Abbildung 7.14 schematisch dargestellt.

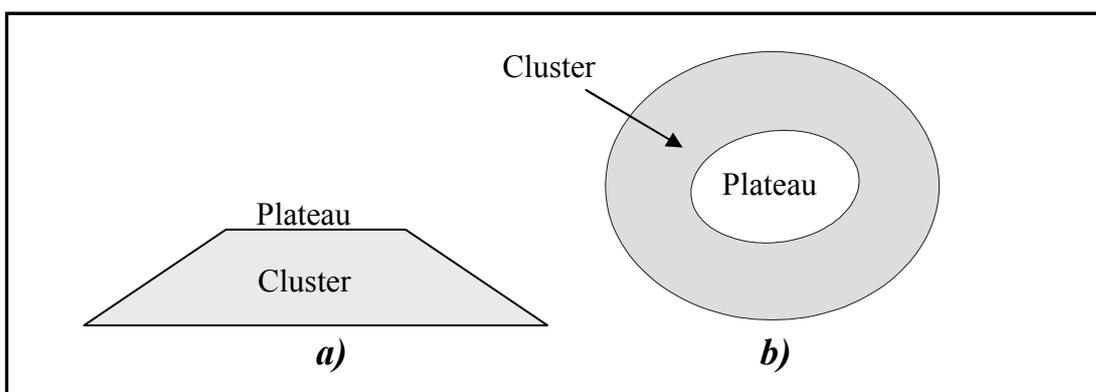


Abbildung 7.14: Schematische Darstellung eines Fe-Clusters, gewachsen auf der β -Ga₂O₃/CoGa(100)-Oberfläche: *a)* Seitenansicht; *b)* Draufsicht.

Bis zu einer Temperatur von 450 K beobachtet man keine strukturelle oder morphologische Änderung an der Oberfläche des Schichtsystems Fe/ β -Ga₂O₃/CoGa(100). Zwischen 450 und 600 K glättet sich die Oberfläche und oberhalb von 680 K kommt es zu einer Diffusion des Eisens in dem Substrat. Auch bei 600 K wird eine (1×1)-Struktur beobachtet, die ebenfalls isomorph zu der (100)-Oberfläche von bcc Fe ist. Bei 600 K beobachtet man ein Aufschwimmen von Sauerstoffatomen an die Oberfläche der Fe-Schicht. Es wurde in der Literatur bereits gezeigt, dass die Sauerstoffatome bis zu einer Bedeckung von 1 ML eine einzige Lage mit einer (1×1)-Struktur an der Oberfläche des Fe(100)-Substrates bilden und dass sie wahrscheinlich vierfach koordinierte Plätze in der obersten Fe-Lage [163-166] besetzen. Ein Modell der Fe(100)-(1×1)O-Struktur zeigt die schematische Darstellung in Abbildung 7.15.

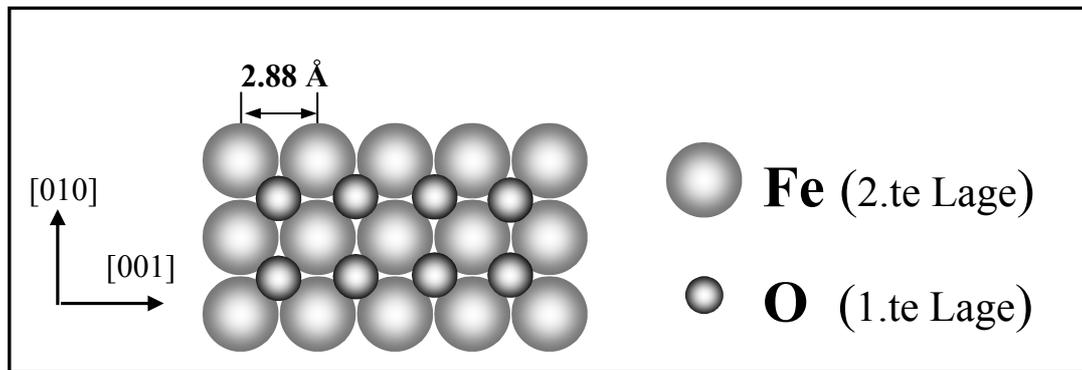


Abbildung 7.15: Draufsicht eines Modells der Fe(100)-(1×1)O-Struktur

Zusammenfassung

Ziel der vorliegenden Arbeit war die Untersuchung des Wachstums und die Charakterisierung dünner Metall- (Fe, Ga) und Oxidschichten (Ga_2O_3), ausgehend von der GaAs(100)- und der CoGa(100)-Oberfläche. Außerdem wurde die Präparation des TMR-Modellsystems $\text{Fe}/\text{Ga}_2\text{O}_3/\text{Fe}_3\text{Ga}_{2-x}\text{As}_x$ auf der GaAs(100)-Oberfläche und des Schichtsystems $\text{Fe}/\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$ auf der CoGa(100)-Oberfläche studiert. Dabei wurden das Wachstumsverhalten und die strukturellen und morphologischen Eigenschaften der einzelnen Schichten untersucht. Zusätzlich wurden auch magnetische Messungen an dem Schichtsystem Fe/CoGa(100) durchgeführt.

- **CoGa(100) und GaAs(100)**

Beide Substrate, CoGa(100) und GaAs(100), zeigen eine rekonstruierte Oberfläche. Die CoGa(100)-Oberfläche zeigt typischerweise eine $c(4\times 2)$ -Rekonstruktion mit zwei senkrecht zueinander stehenden Domänen. Unter bestimmten Präparationsbedingungen können jedoch zusätzliche Reflexe entsprechend einer $(\sqrt{5} \times \sqrt{5})R 26.56^\circ$ -Rekonstruktion beobachtet werden. Die GaAs(100)-Oberfläche besitzt eine $c(8\times 2)$ -Rekonstruktion.

- **Fe auf GaAs(100)**

Das Wachstum von Fe auf der GaAs(100)-Oberfläche findet bei 86 K durch Inselbildung statt. Die Fe-Schicht zeigt infolgedessen eine sehr raue Oberfläche. Diese glättet sich mit zunehmender Temperatur und zeigt bei 300 K eine quadratische Struktur, entsprechend der $\alpha\text{-Fe}(100)$ -Fläche. Eine relativ glatte und wohlgeordnete Fe-Schicht erhält man bei 475 K. Hier beobachtet man jedoch eine $c(2\times 2)$ -Überstruktur, die durch Segregation von As-Atomen an die Oberfläche der Fe-Schicht erklärt wird. Durch Anlassen der Fe-Schicht bis 630 K bildet sich eine geordnete Legierung, die in der Litera-

tur als $\text{Fe}_3\text{Ga}_{2-x}\text{As}_x$ bezeichnet wird. Sie zeigt bei 630 K eine wohlgeordnete und relativ glatte Oberfläche und wurde aus diesem Grund als Substrat für die Präparation der Galliumoxidschicht bzw. des Schichtsystems $\text{Fe}/\text{Ga}_2\text{O}_3$ verwendet.

- **Fe/Ga₂O₃/Fe₃Ga_{2-x}As_x auf GaAs(100)**

Die Ga_2O_3 -Schicht wurde durch die Oxidation einer bei 86 K gewachsenen 7.5 ML dicken Ga-Schicht mit Sauerstoff bei 290 K präpariert. Die Galliumoxidschicht ist amorph bei 290 K und ordnet sich durch Anlassen auf 820 K. Diese Oxidschicht ist jedoch relativ rau und zeigt nur sehr schwache Beugungsreflexe mittels TEAS. Die auf dieser Schicht bei 300 K gewachsene Fe-Schicht wächst hauptsächlich durch Inselbildung und hat auch eine raue Oberfläche. Hier konnten keine Beugungsreflexe beobachtet werden.

- **Fe auf CoGa(100)**

Während der Fe-Deposition auf CoGa(100) beobachtet man bei 300 K ein Lage-für-Lage-Wachstum bis 9 ML und bei 500 K bis 22 ML. Die Fe-Atome bilden dabei eine geordnete bcc-Struktur mit der (100)-Fläche parallel zu der (100)-Oberfläche des CoGa-Substrates. Die Fe-Schichten haben bei 300 K eine gestufte Oberfläche, diese glättet sich jedoch mit zunehmender Temperatur. Das Fe-Wachstum bei 550 K führt zwar zu einer außergewöhnlich glatten und geordneten Oberfläche, gleichzeitig jedoch bilden an die Oberfläche segregierte Ga-Atome eine $c(2\times 2)$ -Überstruktur. Die Ga-Atome und dementsprechend die $c(2\times 2)$ -Überstruktur konnten mittels Ar^+ -Ionenbeschuss entfernt werden. Durch Anlassen der Probe bei 550 K erhält man eine wohlgeordnete (1×1) -Struktur entsprechend der bcc-Fe(100)-Fläche. Danach erfolgt weiteres epitaktisches Lagenwachstum von Fe auch in Abwesenheit der Ga-Atome.

- **Ga auf CoGa(100)**

Das Wachstum von Ga auf der CoGa(100)-Oberfläche wurde bei 160 K untersucht. Die Oberfläche des Ga/CoGa(100)-Systems zeigt eine komplexe Struktur, die sowohl von der Ga-Bedeckung als auch von der Temperatur stark abhängt. Bei Ga-Bedeckungen oberhalb einer Monolage beobachtet man sowohl $c(4\times 2)$ -Domänen, als auch eine β -ähnliche Ga-Phase, die hier mit β' bezeichnet wird und Gitterparameter aufweist, die

um 4-6% größer sind als die entsprechenden Gitterkonstanten der β -Struktur. Die β' -Phase verschwindet oberhalb von 240 K, die $c(4\times 2)$ -Domäne sind jedoch immer noch zu beobachten. Für Ga-Bedeckungen von über 4 ML erscheint noch eine weitere Oberflächenstruktur, die hier mit β'' bezeichnet wird, deren Gitterparameter um 1-4% größer sind als die entsprechenden Gitterkonstanten der β -Struktur.

- **Fe/ β -Ga₂O₃ auf CoGa(100)**

Dünne und wohlgeordnete β -Ga₂O₃-Schichten wurden durch die Oxidation der CoGa(100)-Oberfläche bei 800 K präpariert. Das Wachstum und die Oberflächeneigenschaften des Schichtsystems Fe/ β -Ga₂O₃/CoGa(100) wurden bei Temperaturen von 300 bis 600 K und Fe-Bedeckungen von bis zu 10 ML untersucht. In der Anfangsphase des Wachstums bei 300 K entstehen 3D-Eisencluster mit einem Durchmesser von 50-60 Å und mit 20-30 Å breiten Plateaus. Mit zunehmender Fe-Bedeckung, sowie mit steigender Temperatur wachsen die Cluster zusammen und somit nimmt auch die Oberfläche der Plateaus zu. Die Plateaus zeigen eine (1 \times 1)-Struktur sowohl bei 300 K als auch bei 600 K. AES-Messungen deuten auf die Existenz einer Fe-O-Lage an der Oberfläche der Fe-Schichten hin.

Literaturverzeichnis

- [1] T. Miyazaki und N. Tezuka, J. Magn. Mater. **139**, L231 (1995).
- [2] J. S. Moodera, L. R. Kinder, T. M. Wong, und R. Meservey, Phys. Rev. Lett. **75**, 3273 (1998).
- [3] Z. Li, C. d. Groot, und J. S. Moodera, Appl. Phys. Lett. **77**, 3630 (2000).
- [4] G. Reiss, H. Brückl, und A. Hütten, Phys. **B 14**, 339 (1998).
- [5] S. Glider, B.-U. Runge, A. C. Marley, und S. S. P. Parkin, Science **281**, 797 (1998).
- [6] R. Franchy, Surf. Sci. Rep. **38**, 195 (2000).
- [7] P. Gassmann, Thesis, RWTH Aachen, Berichte des Forschungszentrum Jülich, Nr.3305, 1996.
- [8] G. Schmitz, Thesis, Universität Düsseldorf, Berichte des Forschungszentrums Jülich, Nr. 3634, 1999.
- [9] E. Bauer, Z. Kristallogr **110**, 372 (1958).
- [10] E. Bauer und H. Poppa, Thin Solid Films **12**, 167 (1972).
- [11] F. Frank und J. Merwe, Proc. Roy. Soc. London **A 198**, 216 (1949).
- [12] M. Volmer und A. Weber, Z. Physik. Chem. **119**, 277 (1926).
- [13] I. Stransky und L. Krastanow, Sitz. Ber. Akad. Wiss. Math.-Naturwiss. Kl. Abt. IIb **146**, 797 (1938).

- [14] M. Copel, M. C. Reuter, E. Kaxiras, und R. M. Tromp, *Phys. Rev. Lett.* **63**, 632 (1989).
- [15] A.-L. Barabasi und H. Stanley, *Fractal Concepts in Surface Growth* (Cambridge University Press, Cambridge, 1995).
- [16] W. K. Burton, N. Cabrera, und F. C. Frank, *Phil. Trans. Roy. Soc. A* **243**, 299 (1951).
- [17] B. Poelsema, R. Kunkel, L. K. Verheij, und G. Comsa, *Phys. Rev.* **B 41**, 11609 (1990).
- [18] J. Villain, *J. Phys.* **1**, 19 (1991).
- [19] G. Binning, H. Rohrer, C. Gerber, und E. Weibel, *Phys. Rev. Lett.* **40**, 57 (1982).
- [20] R. J. Behm, N. Garcia, und H. Rohrer, *Scanning Tunneling Microscopy and Related Methods* (Dordrecht, 1990).
- [21] W. Telieps und E. Bauer, *Ultramicroscopy* **17**, 57 (1985).
- [22] E. Bauer, M. Mundschau, W. Swiech, und W. Telieps, *Ultramicroscopy* **31**, 49 (1989).
- [23] J. J. Harris, B. A. Joyce, und P. J. Dobson, *Surf. Sci.* **103**, L90 (1981).
- [24] R. J. Larsen und P. J. Dobson, *Reflection High Energy Electron Diffraction and Reflection Imaging of Surfaces* (New York, 1988).
- [25] M. Henzler, *Surf. Sci.* **73**, 240 (1978).
- [26] P. Hahn, J. Clabes, und M. Henzler, *J. Appl. Phys.* **51**, 2079 (1980).
- [27] L. J. Gomez, J. Ibàñez, und M. Salmeròn, *Phys. Rev.* **B. 31**, 2551 (1985).
- [28] B. Poelsema und G. Comsa, *Scattering of Thermal Energy Atoms*, Vol. 115 (Springer, Berlin, 1989).
- [29] B. Poelsema, A. F. Becker, G. Rosenfeld, R. Kunkel, N. Nagel, L. K. Verheij, und G. Comsa, *Surf. Sci.* **272**, 269 (1992).
- [30] H.-J. Ernst, F. Fabre, und J. Lapujoulade, *Phys. Rev.* **B. 46**, 1929 (1992).

-
- [31] T. Engel und K. H. Rieder, *Structural Studies of Surfaces with Atomic and Molecular Beam Diffraction*, Vol. 91 (Springer, Berlin, 1982).
- [32] K. H. Rieder, *Helium Atom Scattering from Surfaces*, Vol. 27 (Springer, Berlin, 1992).
- [33] J. R. Manson, *Helium Atom Scattering from Surfaces*, Vol. 27 (Springer, Berlin, 1992).
- [34] J. P. Toennies, *J. Vac. Sci. Technol. A* **5**, 440 (1987).
- [35] J. P. Toennies, *Dynamics of Gas-Surface Interaction*, Vol. 21 (Springer, Heidelberg, 1982).
- [36] J. P. Toennies, *Surface Phonons*, Vol. 21 (Springer, Berlin, 1991).
- [37] P. Zeppenfeld, Thesis, Rheinische Friedrich-Willhelms-Universität Bonn, Berichte des Forschungszentrums Jülich, Nr. 2305, 1989.
- [38] P. Zeppenfeld, U. Becher, K. Kern, und G. Comsa, *J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom.* **54/55**, 265 (1990).
- [39] L. Niu, J. Gaspar, und S. J. Sibener, *Science* **268**, 847 (1995).
- [40] N. S. Luo, P. Ruggerone, und J. P. Toennies, *Phys. Rev. Lett.* **54**, 5051 (1996).
- [41] E. Zaremba und W. Kohn, *Phys. Rev.* **B 13**, 2270 (1976).
- [42] G. Armand und J. R. Manson, *Phys. Rev.* **B 19**, 4091 (1979).
- [43] K. H. Rieder, *Surf. Sci.* **117**, 13 (1982).
- [44] A. Liebsch, J. Harris, B. Salanon, und J. Lapujoulade, *Surf. Sci.* **123**, 338 (1982).
- [45] N. Esbjerg und J. K. Nørskov, *Phys. Rev. Lett.* **45**, 807 (1980).
- [46] H. Hoinkes und H. Wilsch, *Helium Atom Scattering from Surfaces*, Vol. 27 (Springer, Berlin, 1992).
- [47] H. Lüth, *Surface and Interfaces of Solid Materials* (Springer, 1998).
- [48] G. Benedek, L. Miglio, und G. Seriani, *Helium Atom Scattering from Surfaces*, Vol. 27 (Springer, Berlin, 1992).

-
- [49] D. Neuhaus, *Helium Atom Scattering from Surfaces*, Vol. 27 (Springer, Berlin, 1992).
- [50] L. K. Verheij, B. Poelsema, und G. Comsa, *Surf. Sci.* **162**, 858 (1985).
- [51] L. K. Verheij, J. Lux, und B. Poelsema, *Surf. Sci.* **144**, 385 (1984).
- [52] M. A. Krzyzowski, Thesis, Rheinische Friedrich-Willhelms-Universität Bonn, Berichte des Forschungszentrums Jülich, Nr. 3077, 1995.
- [53] C. Romainczyk, Thesis, Ecole Polytechnique Fédérale de Lausanne, 1994.
- [54] C. Tölkes, Thesis, Universität Bonn, Berichte des Forschungszentrums Jülich, Nr. 3614, 1998.
- [55] M. Henzler, *Appl. Phys.* **A 34**, 205 (1984).
- [56] C. S. Lent und P. I. Cohen, *Surf. Sci.* **139**, 121 (1984).
- [57] P. Debye, *Ann. Phys.* **43**, 49 (1914).
- [58] I. Waller, *Z. Phys.* **17**, 398 (1923).
- [59] J. B. Pendry, *Low Energy Electron Diffraction* (Academic Press, New York, 1974).
- [60] R. J. Glauber, *Phys. Rev.* **98**, 1692 (1955).
- [61] V. Bortolani, V. Celli, A. Franchini, J. Idiodi, G. Santoro, K. Kern, B. Poelsema, und G. Comsa, *Surf. Sci.* **208**, 1 (1989).
- [62] G. Armand und J. R. Manson, *Phys. Rev.* **B 37**, 4363 (1988).
- [63] L. J. Beeby, *J. Phys.* **C 4**, L359 (1971).
- [64] H. Lüth, *Solid Surfaces, Interfaces and Thin Films* (Springer, Berlin, 2001).
- [65] *Handbook of Auger Electron Spectroscopy* (Physical Electronical Industries, 1976).
- [66] D. Briggs und M. P. Seah, *Practical Surface Analysis* (Wiley, New York, 1983).
- [67] G. Somorjai, *Chemistry in Two Dimensions: Surface*, Vol., 1st ed (Cornell University Press, Ithaca and London, 1981).
- [68] M. P. Seah und W. A. Dench, *Surface and Interface Analysis* **1, 2** (1979).

-
- [69] E. A. Wood, *J. Appl. Phys.* **35**, 1306 (1964).
- [70] R. L. Park und H. H. Madden, *Surf. Sci.* **11**, 188 (1968).
- [71] K. E. Kuhnke, Thesis, Rheinische Friedrich-Willhelms-Universität Bonn, 1986.
- [72] K. E. Kuhnke, Thesis, Rheinische Friedrich-Willhelms-Universität Bonn, Berichte des Forschungszentrums Jülich, Nr. 2490, 1991.
- [73] L. K. Verheij, M. B. Hugenschmidt, B. Poelsema, und G. Comsa, *Surf. Sci.* **233**, 209 (1990).
- [74] J. P. Toennies und K. Winkelmann, *J. Chem. Phys.* **66**, 3965 (1977).
- [75] R. David, *Helium Scattering Studies of Characterized metal Surfaces and Overlayers* (1990).
- [76] K. E. Kuhnke, K. Kern, R. David, B. Lindenau, und G. Comsa, *Rev. Sci. Instrum.* **65**, 789 (1994).
- [77] R. David, K. Kern, P. Zeppenfeld, und G. Comsa, *Rev. Sci. Instrum.* **57**, 2771 (1986).
- [78] K. E. Kuhnke, K. Kern, R. David, und G. Comsa, *Rev. Sci. Instrum.* **65**, 3458 (1994).
- [79] M. K. Freitag, Thesis, Rheinische Friedrich-Willhelms-Universität Bonn, Berichte des Forschungszentrums Jülich, Nr. 3103, 1995.
- [80] L. K. Verheij, M. K. Freitag, und F. Wiegerhaus, *Surf. Sci.* **334**, 105 (1995).
- [81] V. M. Goldschmid, *Trans. Faraday Soc.* **25**, 253 (1929).
- [82] A. J. v. Bommel, J. E. Crombeen, und T. G. J. v. Oirschot, *Surf. Sci.* **72**, 95 (1978).
- [83] L. Däweritz und R. Hey, *Surf. Sci.* **236**, 15 (1990).
- [84] D. K. Biegelsen, R. D. Bringans, J. E. Northrop, und L. E. Schwartz, *Phys. Rev.* **B 41**, 5701 (1990).
- [85] P. Villars und L. Calvert, *Pearson's Handbook of Crystallographic Data for Intermetallic Phases, Bd.2-3* (ASM, Metals Park, OH, 1985).

-
- [86] *American Institute of Physics Handbook*, 3rd ed. (McGraw-Hill Book Company, 1971).
- [87] *Landoldt-Börnstein: Structure Data of Elements and Intermetallic Phases* (Springer Verlag, 1971).
- [88] O. Züger und U. Dürig, *Phys. Rev.* **B 46**, 7319 (1992).
- [89] L. Bosio und A. Defrain, *Acta Crystallogr.* **B 25**, 995 (1969).
- [90] L. Bosio, H. Curien, M. Dupont, und M. Rimsky, *Acta Crystallogr.* **B29**, 367 (1973).
- [91] L. Bosio, H. Curien, M. Dupont, und M. Rimsky, *Acta Crystallogr.* **B28**, 1974 (1972).
- [92] L. Bosio, *J. Chem. Phys.* **68**, 1221 (1977).
- [93] *Landoldt-Börnstein: Kristallstrukturdaten anorganischer Verbindungen* (Springer Verlag, 1971).
- [94] C. Pflitsch, Thesis, Universität Düsseldorf, Berichte des Forschungszentrums Jülich Nr. 3951, 2002.
- [95] A. März und R. Franchy, *Surf. Sci.* **466**, 54 (2000).
- [96] Y. M. Jelizova, Thesis, Universität Düsseldorf, 2002.
- [97] L. Z. Mezey und J. Giber, *Jpn. J. Appl. Phys.* **21**, 1569 (1982).
- [98] C. T. Campbell, *Surf. Sci. Reports* **27**, 1 (1997).
- [99] D. R. Lide, *Handbook of Chemistry and Physics* (Boca Raton: CRC Press, 1994).
- [100] C. Becker, J. Kandler, H. Raaf, R. Linke, T. Pelster, M. Draeger, M. Tanemura, und K. Wandelt, *J. Vac. Sci. Technol.* **A 16**, 1000 (1998).
- [101] U. Bardi, A. Atrei, und G. Rovida, *Surf. Sci.* **268**, 87 (1992).
- [102] R. M. Jaeger, H. Kuhlenbeck, H.-J. Freund, M. Wuttig, W. Hoffmann, R. Franchy, und H. Ibach, *Surf. Sci.* **259**, 235 (1991).
- [103] R. Franchy, J. Masuch, und P. Gassmann, *Appl. Surf. Sci.* **93**, 317 (1996).
- [104] P. Gassmann, R. Franchy, und H. Ibach, *Surf. Sci.* **319**, 95 (1994).

-
- [105] C. Huang, A. Ludviksson, und R. M. Martin, *Surf. Sci.* **265**, 314 (1992).
- [106] J. R. Waldrop und R. W. Grant, *Appl. Phys. Lett.* **34**, 630 (1979).
- [107] S. A. Chambers, F. Xu, H. W. Chen, I.M. Vitomirov, S. B. Anderson, und J. H. Weaver, *Phys. Rev.* **B 34**, 6605 (1986).
- [108] J. J. Krebs, B. T. Jonker, und G. A. Prinz, *J. Appl. Phys.* **61**, 2596 (1987).
- [109] J. M. Florczak und E. D. Dahlberg, *Phys. Rev.* **B 44**, 9338 (1991).
- [110] M. Gester, C. Daboo, R. J. Hicken, S. J. Gray, A. Ercole, und J. A. C. Bland, *J. Appl. Phys.* **80**, 347 (1996).
- [111] A. Filipe, A. Schuhl, und P. Galtier, *Appl. Phys. Lett.* **70**, 129 (1997).
- [112] Y. B. Xu, E. T. M. Kernohan, D. J. Freeland, A. Ercole, M. Tselepi, und J. A. C. Bland, *Phys. Rev.* **B 58**, 890 (1998).
- [113] M. Gester, C. Daboo, S. J. Gray, und J. A. C. Bland, *J. Magn. Magn. Mater.* **165**, 242 (1997).
- [114] R. A. Gordon, E. D. Crozier, D. T. Jiang, T. L. Monchesky, und B. Heinrich, *Phys. Rev.* **B 62**, 2151 (2000).
- [115] E. Gu, J. A. C. Bland, C. Daboo, M. Gester, L. M. Brown, R. Ploessl, und J. N. Chapman, *Phys. Rev.* **B 51**, 3596 (1995).
- [116] P. M. Thibado, E. Kneedler, B. T. Jonker, B. R. Bennett, B. V. Shanabrook, und L. J. Whitman, *Phys. Rev.* **B 53**, R10481 (1996).
- [117] E. M. Kneedler, B. T. Jonker, P. M. Thibado, R. J. Wagner, B. V. Shanabrook, und L. J. Whitman, *Phys. Rev.* **B 56**, 8163 (1997).
- [118] M. W. Ruckman, J. J. Joyce, und J. H. Weaver, *Phys. Rev.* **B 33**, 7029 (1986).
- [119] C. Carbone, B. T. Jonker, K. H. Walker, G. A. Prinz, und E. Kisker, *Solid State Commun.* **61**, 297 (1987).
- [120] M. Zöfl, M. Brockmann, M. Köhler, S. Kreuzer, T. Schweinböck, S. Miethaner, F. Bensch, und G. Bayreuther, *J. Magn. Magn. Mater.* **175**, 16 (1997).
- [121] F. J. Himpsel, *Appl. Phys. Lett.* **58**, 1920 (1991).

-
- [122] J. W. Freeland, I. Coulthard, und J. W. J. Antel, *Phys. Rev.* **B 63**, 193301 (2001).
- [123] H. Vehmeyer, R. Feltgen, P. Chakraborti, M. Düker, F. Torell, und H. Pauly, *Chem. Phys. Lett.* **42**, 507 (1976).
- [124] S. Deputier, R. Guerin, B. Lepine, A. Guivarc'h, und J. Jezequel, *Journal of Alloys and Compounds* **262-263**, 416 (1997).
- [125] M. Rahmoune, J. P. Eymery, P. Goudeau, und M. F. Denanot, *Thin Solid Films* **289**, 261 (1996).
- [126] R. J. Hicken, S. J. Gray, A. Ercole, C. Daboo, D. J. Freeland, E. Gu, E. Ahmad, und J. A. C. Bland, *Phys. Rev.* **B 55**, 5898 (1997).
- [127] Z. Q. Qiu, J. Pearson, und S. D. Bader, *Phys. Rev.* **B 49**, 8797 (1994).
- [128] D. H. Bürgler, C. M. Schmidt, D. M. Schaller, F. Meisinger, R. Hofer, und H. J. Güntherodt, *Phys. Rev.* **B 56**, 4149 (1997).
- [129] Y. Suzuki, T. Katayama, S. Yoshida, und K. Tanaka, *Phys. Rev. Lett.* **68**, 3355 (1992).
- [130] T. Kawagoe, T. Kotaki, T. Shibasaki, Y. Ohmori, und A. Itoh, *Surf. Sci.* **468**, 1 (2000).
- [131] O. S. Hernan, A. L. V. d. Parga, J. M. Gallego, und R. Miranda, *Surf. Sci.* **415**, 106 (1998).
- [132] S. D. Bader und E. R. Moog, *J. Appl. Phys.* **61**, 3729 (1987).
- [133] W. Dürr, M. Taborelli, O. Paul, R. Germar, W. Gudat, D. Pescia, und M. Landolt, *Phys. Rev. Lett.* **62**, 206 (1989).
- [134] Z. Q. Qiu, J. Pearson, und S. D. Bader, *Phys. Rev. Lett.* **70**, 1006 (1993).
- [135] F. M. Pan, C. Pflitsch, R. David, L. K. Verheij, und R. Franchy, *Phys. Rev.* **B 63**, 125414 (2001).
- [136] A. Lock, B. J. Hinch, J. P. Toonies, und M. G. L. (Ed.), *Kinetics of Ordering and Growth at Surfaces* (Plenum Press, New York, 1990).
- [137] C. Tölkes, Thesis, Berichte des Forschungszentrum Jülich, Nr.3077, 1995.

-
- [138] P. Bonanno, M. Canepa, P. Cantini, R. Moroni, L. Mattera, und S. Terreni, *Surface Science* **454-456**, 697 (2000).
- [139] R. W. G. Wycjoff, *Crystal Structures* (Wiley, New York, 1962).
- [140] X. G. Gong, G. L. Chiarotti, M. Parrinello, und E. Tossati, *Phys. Rev.* **B 43**, 14277 (1991).
- [141] L. Bosio, *J. Chem. Phys.* **68**, 122 (1978).
- [142] T. Sakamoto und H. Kawanami, *Surf. Sci.* **111**, 177 (1981).
- [143] B. Bouirguignon, K. L. Carleton, und S. R. Leone, *Surf. Sci.* **204**, 455 (1988).
- [144] A. A. Baski, J. Nogami, und C. F. Quate, *J. Vac. Sci. Technol.* **A 8**, 245 (1990).
- [145] J. Nogami, S. Park, und C. F. Quate, *Appl. Phys. Lett.* **53**, 2086 (1988).
- [146] H. Sakami, A. Kawazu, T. Sueyoshi, T. Sato, und M. Iwatsuki, *Phys. Rev.* **B 54**, 8756 (1996).
- [147] Y. Nakada, I. Aksenov, und H. Okumura, *J. Vac. Sci. Technol.* **B 17**, 1 (1999).
- [148] J. Zegenhagen, M. S. Hybertsen, P. E. Freeland, und J. P. Patel, *Phys. Rev.* **B 38**, 7885 (1988).
- [149] A. Kawazu und H. Sukama, *Phys. Rev.* **B 37**, 2704 (1988).
- [150] K. Fujita, Y. Kusumi, und M. Ichikawa, *Appl. Surf. Sci.* **107**, 6 (1996).
- [151] Z. Gai, R. G. Zhao, H. Ji, und W. S. Yang, *Surf. Sci.* **405**, L484 (1998).
- [152] S. Guha, N. A. Bojarczuk, und D. W. Kisker, *Appl. Phys. Lett.* **69**, 2879 (1996).
- [153] T. Ota und T. Itagaki, *Appl. Surf. Sci.* **33-34**, 484 (1988).
- [154] K. F. MacDonald, V. A. Fedotov, S. Pochon, K. J. Ross, G. C. Stevens, n. i. Zheludev, W. S. Brocklesby, und V. I. Emel'yanov, *Appl. Phys. Lett.* **80**, 1643 (2002).
- [155] M. Fleischer und H. Meixner, *Sensors and Actuators* **B 5**, 115 (1992).
- [156] B. Sulikowski, Z. Olejniczak, und V. C. Corberan, *J. Phys. Chem.* **100**, 24 (1996).

- [157] R. Franchy, G. Schmitz, P. Gassmann, und F. Bartolucci, *Appl. Phys. A* **65**, 551 (1997).
- [158] G. Schmitz, P. Gassmann, und R. Franchy, *J. Appl. Phys.* **83**, 2533 (1998).
- [159] F. M. Pan, C. Pflitsch, R. David, L. K. Verheij, und R. Franchy, *Surf. Sci.* **478**, 191 (2001).
- [160] S. Geller, *J. Chem. Phys.* **15**, 1488 (1960).
- [161] J. Åhman, G. Svensson, und J. Albertsson, *Acta Crystallogr. C* **52**, 1336 (1996).
- [162] I. Costina, Dissertation, Universität Düsseldorf, 2002.
- [163] K. O. Legg, F. Iona, D. W. Jepsen, und P. M. Marcus, *Phys. Rev. B* **16**, 5271 (1977).
- [164] F. Iona und P. M. Marcus, *Solid State Commun.* **64**, 667 (1987).
- [165] J. M. V. Zoest, J. M. Fluit, T. J. Vink, und B. A. V. Hassel, *Surf. Sci.* **182**, 179 (1987).
- [166] R. L. Headrick, P. Konarski, S. M. Yalisove, und W. R. Graham, *Phys. Rev. B* **39**, 5713 (1989).

Danksagung

Mein besonderer Dank gilt Herrn Prof. Dr. René Franchy für die Betreuung dieser Arbeit, für sein Vertrauen und die sehr freundliche Unterstützung.

Herrn Prof. Dr. Harald Ibach danke ich für die Möglichkeit, diese Arbeit, am Institut für Schichten und Grenzflächen III durchführen zu können.

Für die Übernahme des zweiten Gutachtens möchte ich mich ganz herzlich beim Herrn Prof. Schierbaum bedanken.

Ich möchte mich ganz herzlich bei Herrn Dr. Rudolf David für die freundliche Unterstützung und die wertvollen Ratschläge, sowie für die Durchsicht des Manuskripts und der zahlreichen konstruktiven Beiträge bedanken.

Herrn Dr. Laurens Verheij danke ich für die gute Zusammenarbeit und die hilfreichen Diskussionen.

Diese Arbeit wäre ohne die technische Unterstützung der mechanischen bzw. der elektrischen Werkstatt nicht möglich. Dafür möchte ich mich gerne beim Herrn Strobl bzw. beim Herrn Rausch und deren Teams bedanken.

Für die Anfertigung der benötigten Kristalle bin ich dem Herrn Linke sehr dankbar.

Mein persönlicher Dank gilt meinen Arbeitskollegen für die angenehme und freundliche Atmosphäre. Ganz besonders möchte ich mich bei Frau Dr. Yanka Jeliazova und bei Herrn Dr. Ioan Costina für die stetige Unterstützung und Hilfsbereitschaft bedanken.