

Morphologie und Struktur heteroepitaktischer Halbleiterschichtsysteme auf Silizium

Dissertation der Fakultät für Physik
der
Ludwig-Maximilians-Universität München

Zoltan Kovats

Oktober 1999

Morphologie und Struktur heteroepitaktischer Halbleiterschichtsysteme auf Silizium

Dissertation der Fakultät für Physik
der
Ludwig-Maximilians-Universität München

vorgelegt von Zoltan Kovats
aus München

München, den 15. Oktober 1999

1. Gutachter : Prof. Dr. Johann Peisl
2. Gutachter : Priv. Doz. Dr. Axel Lorke

Tag der mündlichen Prüfung: 26. Januar 2000

Zusammenfassung

In dieser Arbeit wurden materialwissenschaftliche Fragestellungen aus der Heteroepitaxie von Halbleiterschichtsystemen auf der Basis von Silizium mit Röntgenstreuungsmethoden und Rasterkraftmikroskopie untersucht. Im Vordergrund standen dabei die innere Struktur der Schichten und die Morphologie der Grenz- und Oberflächen in $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$ -Schichten auf Si/Ge-Gradientenpuffern, pseudomorphen $\text{Si}_{1-x}\text{C}_x$ -Epischichten auf Si(001) und Ge-Inseln auf Si(111).

Relaxierte $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$ -Schichten auf Siliziumsubstraten dienen als virtuelle Substrate mit vergrößerter Gitterkonstante, auf denen pseudomorphe zugverspannte Siliziumschichten hergestellt werden können, wie sie in Si-basierten elektronischen Hochgeschwindigkeitsbauelementen Verwendung finden. Infolge der beteiligten Relaxationsmechanismen findet man auf solchen $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$ -Pufferschichten eine starke Aufrauhung der Oberfläche, die abhängig von ihrer lateralen Korrelationslänge die Beweglichkeit der Ladungsträger in zweidimensionalen Trägergasen herabsetzen kann.

Die Verspannung von partiell relaxierten $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$ -Schichten auf $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$ -Gradientenpuffern auf Si(001) wurde durch Beugung unter streifendem Einfall (GID) und koplanare Beugung (XRD) bestimmt. Die Untersuchung der Oberflächen dieser Filme durch Rasterkraftmikroskopie (AFM) zeigte eine anisotrope Rauigkeit entlang der $\langle 110 \rangle$ - und $\langle 100 \rangle$ -Richtungen, die parallel bzw. diagonal zum sog. 'cross-hatch pattern' verlaufen. Durch diffuse Röntgenstreuung unter streifenden Winkeln nahe der Vorwärtsrichtung konnte eine konforme Replikation der Rauigkeitsmorphologie der Grenzflächen auf einer lateralen Längenskala von $1\ \mu\text{m}$ nachgewiesen werden. Zur Beschreibung der Streuung von Grenzflächen mit einer vergleichsweise großen Rauigkeit von bis zu 4 nm wurde das Konzept der Streuung von Grenzflächen ohne laterale 'cut-off'-Länge benutzt. Im Fall von plastisch relaxierten $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$ -Filmen wurde an vergrabenen Grenzflächen Rauigkeit auf einer lateralen Längenskala von 30 nm nachgewiesen. Diese Längenskala liegt im Bereich der Fermi-Wellenlänge von Elektronen und ist daher für die Beweglichkeit der Ladungsträger in $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$ -Hochgeschwindigkeitsbauelementen relevant.

Der substitutionelle Einbau von Kohlenstoff in Silizium führt zu einer Verkleinerung des mittleren Gitterparameters der $\text{Si}_{1-x}\text{C}_x$ -Legierung. Das Wachstum von $\text{Si}_{1-x}\text{C}_x$ -Epischichten ermöglicht daher die Manipulation der Verspannung in pseudomorphen Schichten in einer zu $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$ komplementären Weise. Die metastabile $\text{Si}_{1-x}\text{C}_x$ -Phase steht jedoch in Konkurrenz zur Bildung von thermodynamisch stabilen β -SiC-Ausscheidungen. Für technologische Anwendungen in Bauelementen ist daher die Resistenz von metastabilen substitutionellen $\text{Si}_{1-x}\text{C}_x$ -Schichten gegen erhöhte Temperaturen ausschlaggebend.

In pseudomorphen $\text{Si}_{1-x}\text{C}_x$ -Epischichten auf Si(001) wurde die Bildung von β -SiC-Ausscheidungen nach ex-situ Tempern durch diffuse Röntgenstreuung in der Umgebung des Si(220)-Oberflächenreflexes untersucht. Unbehandelte Pro-

ben zeigten diffuse Huang-Streuung, wie sie von substitutionellen C-Atomen erwartet wird (Punktdefekte mit kubischer Symmetrie). Nach dem Tempern wurde ein zusätzlicher β -SiC-Reflex von den Ausscheidungen und zugleich am Si-Reflex die formfaktorinduzierte Streuung von Löchern in der Si-Matrix beobachtet. Aus der Anpassung des Reflexprofils der Ausscheidungen wurde eine Log-Normalverteilung der Präzipitatgröße und der Kohlenstoffgehalt in den Ausscheidungen abgeleitet. Im Streuvolumen dominierten β -SiC-Präzipitate mit einem Radius von 5 bis 15 Å. Bereits in unbehandelten Proben konnten Spuren von β -SiC-Ausscheidungen nachgewiesen werden.

Das Wachstum von Germanium auf einer durch geeignete Abscheidung von Bor $\sqrt{3} \times \sqrt{3}R30^\circ$ -rekonstruierten Si(111)-Oberfläche führt zur Bildung von Ge-Inseln in Form ausgerichteter dreiseitiger Pyramiden.

Selbstorganisierte Ge-Inseln auf Bor-terminiertem Si(111) wurden mit Hilfe von Rasterkraftmikroskopie und durch Streumethoden untersucht. Das Vorhandensein einer rekonstruierten Bor-Oberflächenphase ist notwendig für die Bildung von dreiseitigen Pyramiden. Röntgenkleinwinkelstreuung unter streifendem Einfall (GISAXS) zeigte, daß die Inseln an den Seiten durch $\{113\}$ -Facetten begrenzt und entlang von $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ -Richtungen orientiert sind. Durch Simulationsrechnungen des morphologischen Formfaktors konnte im Vergleich mit den gemessenen Daten die Größenverteilung und Orientierungsordnung der Inseln bestimmt werden. Die typische Basislänge der Pyramiden nach Abscheidung von nominell 15 nm Ge liegt in der Größenordnung von 260 nm mit einer Größendispersion von 10 bis 30%. In Abhängigkeit von der Substratfehlorientierung zeigen die Inseln eine Tendenz zu lateraler Ordnung entlang von fehlorientierungsinduzierten Stufenkanten. Durch Röntgenbeugung unter streifendem Einfall (GID) und asymptotische Braggstreuung (CTR-Streuung) wurde die kristalline Struktur und Verspannungsverteilung untersucht. Die Inseln zeigen einen im Mittel zu 90% relaxierten Gitterparameter, die Restverspannung verursacht einen vertikalen Gradienten des lateralen Gitterparameters innerhalb der Inseln.

Inhaltsverzeichnis

1	Einführung	1
2	Untersuchungsmethoden	5
2.1	Rasterkraftmikroskopie	6
2.2	Oberflächensensitive Röntgenstreuung	8
2.3	Reflektivität und diffuse Röntgenstreuung	12
2.3.1	Statistische Beschreibung einer selbstaffinen rauhen Grenzfläche	15
2.3.2	Diffuse Röntgenstreuung von selbstaffinen rauhen Grenzflächen	16
2.3.3	Diffuse Röntgenstreuung im Grenzfall großer Rauigkeit	17
2.4	Röntgenkleinwinkelstreuung	19
2.5	Kinematische Röntgenbeugung	23
2.6	Asymptotische Bragg-Streuung	27
2.7	Röntgenbeugung unter streifendem Einfall	29
2.8	Röntgenstreuung an Kristallen mit Defekten	32
2.8.1	Punktdefekte und deren Verzerrungsfeld	33
2.8.2	Streuung an Punktdefekten: Braggreflexe	35
2.8.3	Reflexnahe diffuse Streuung (Huang-Streuung)	36
2.8.4	Diffuse Streuung von Defekten in dünnen Schichten	38
2.8.5	Diffuse Streuung von Clustern	41
3	Si_{1-x}Ge_x-Schichten	43
3.1	Probensystem und Fragestellung	45
3.2	Beugung unter streifendem Einfall	46
3.3	Koplanare Beugung	47
3.4	Rasterkraftmikroskopie	49
3.5	Diffuse Röntgenstreuung	51
3.5.1	Langreichweitige laterale Korrelationen	52
3.5.2	Kurzreichweitige laterale Korrelationen	58
3.6	Diskussion und Zusammenfassung	60

4	Si_{1-x}C_x-Epischichten	63
4.1	Zielsetzung	64
4.2	Probenserie	66
4.3	Experimenteller Aufbau	67
4.4	Messungen und Ergebnisse	69
4.4.1	Bragg-Streuung (GID)	71
4.4.2	Huang-Streuung	72
4.4.3	β -SiC-Reflex	77
4.5	Diskussion	83
4.6	Zusammenfassung und Ausblick	84
5	Germanium-Inseln auf Si(111)	87
5.1	Zielsetzung	90
5.2	Probenserie	90
5.3	Morphologie der Inseln: Rasterkraftmikroskopie	92
5.4	Röntgenkleinwinkelstreuung	96
5.5	Röntgenbeugung unter streifendem Einfall	105
5.6	'CTR'-Streuung	107
5.7	Zusammenfassung und Ausblick	125
A	Röntgenoptische Daten für Si und Ge	127
B	AFM-Aufnahmen der Ge/Si(111)-Schichten	128
C	Simulationen der CTR-Streuung	133
	Literaturverzeichnis	137

Kapitel 1

Einführung

Silizium ist das meistverwendete Materialsystem der Halbleiterindustrie und bildet die Basis für hochintegrierte Schaltkreise und Computerchips. Aufgrund seiner indirekten Bandlücke scheidet Silizium jedoch als Materialsystem für optoelektronische Anwendungen aus. Die vergleichsweise geringe Beweglichkeit der Ladungsträger im intrinsischen Volumenhalbleiter läßt Silizium ebenso ungeeignet für Hochgeschwindigkeitsbauelemente erscheinen. So wurden technische Fortschritte bei Hochgeschwindigkeitsanwendungen zunächst mit Heterostrukturen auf der Basis von III/V-Halbleitern wie Galliumarsenid (GaAs/AlGaAs) erzielt. Ebenso findet das Materialsystem GaAs dank seiner Bandstruktur mit einer direkten Bandlücke breite Verwendung im opto-elektronischen Bereich.

Nicht zuletzt die hohen Fertigungskosten der GaAs-Technologie sowie der Wunsch, schnelle und opto-elektronische Bauelemente auch in die technologisch weit fortgeschrittene, hochintegrierte und miniaturisierte Si-Fertigungstechnologie zu übertragen, begründeten die Bemühungen, diese Unzulänglichkeiten des Halbleitermaterials Silizium zu überwinden. Analog zu Heterostrukturen auf der Basis von GaAs wird dabei einerseits die Strategie verfolgt, die Bandstruktur durch Zulegen eines weiteren Halbleiters zu verändern. So stellt sich im intrinsischen Mischungshalbleiter die Bandlücke abhängig vom Mischungsverhältnis zwischen jenen der beiden Mischungspartner ein. Zudem wird durch eine Verspannung das Leitungsband relativ zur Valenzbandkante verschoben. Beides ist im $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$ -System gegeben: Germanium hat bei gleicher Kristallstruktur eine kleinere Bandlücke sowie einen um 4% größeren Gitterparameter. Im Falle von $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$ sinkt die Leitungsbandunterkante sowohl bei Zug- als auch bei Druckspannung ab [1]. Durch ein geeignetes Bandkanten-’Engineering’ können somit zweidimensionale Elektronen- (2DEG) oder Löchergase in $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$ -Heterostrukturen erzeugt werden, deren Ladungsträgerbeweglichkeit diejenige im intrinsischen Volumenhalbleiter um Größenordnungen übertreffen.

Verspannte $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$ -Schichten auf relaxierten Puffern

Der für epitaktische Wachstumsprozesse geradezu 'astronomische' Gitterparameterunterschied von 4% stellt vor das Wachstum pseudomorpher $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$ -Schichten zunächst das Problem der gewaltigen Verspannungsenergie, die z.B. auf (001)-orientierten Siliziumsubstraten abhängig vom Germaniumgehalt schon bei Schichtdicken zwischen 10 und 200 nm durch Einbau von Versetzungen zum Relaxieren der druckverspannten $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$ -Schicht führt. Zugleich ermöglicht diese Relaxation jedoch auch, gezielt sogenannte 'Pseudo'-Substrate mit einer gegenüber Si größeren lateralen Gitterkonstante herzustellen, und darauf zugverspannte $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$ -Schichten (mit geringerem Ge-Gehalt als im darunterliegenden $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$ -Puffer) oder reine Si-Schichten zu wachsen. Dieser Ansatz wurde erfolgreich durch sog. 'Gradienten-Puffer' verwirklicht, bei welchen auf einem Siliziumsubstrat eine $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$ -Schicht mit langsam ansteigendem Germaniumgehalt gewachsen wird, die dabei kontinuierlich relaxiert und am Ende den Gitterparameter einer unverspannten $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$ -Legierung aufweist [2].

Relaxierte Puffersysteme zeigen jedoch eine hohe Oberflächenrauigkeit, die durch den zugrundeliegenden Relaxationsmechanismus hervorgerufen wird. Für die Beweglichkeit von Ladungsträgern in Heterostruktursystemen ist entscheidend, auf welcher lateralen Längenskala diese Rauigkeit auftritt: Liegt diese im Bereich der de-Broglie-Wellenlänge der Ladungsträger bei etwa 50 nm, ist eine Abnahme der Beweglichkeit zu erwarten. Die Kenntnis der Rauigkeitsmorphologie der Grenzflächen ist daher von großem technologischen Interesse. Röntgenstreuungsmethoden, insbesondere die diffuse Röntgenstreuung unter streifenförmigen Winkeln, erlauben die Charakterisierung der Morphologie auch vergrabener Grenzflächen. Die Untersuchung der Rauigkeit in einem System verspannter und relaxierter $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$ -Schichten auf Gradientenpuffern durch Rasterkraftmikroskopie und diffuse Röntgenstreuung ist Teil dieser Arbeit.

$\text{Si}_{1-x}\text{C}_x$ -Epischichten auf Si(001)

Eine vielversprechende Alternative zum Wachstum verspannter und relaxierter $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$ -Schichten auf relaxierten Puffern wird durch den Einbau von Kohlenstoff auf substitutionelle Gitterplätze in $\text{Si}_{1-x}\text{C}_x$ - und $\text{Si}_{1-x-y}\text{Ge}_x\text{C}_y$ -Legierungsschichten eröffnet: Die geringere Si-C-Bindungslänge verursacht (im Gegensatz zu Germanium in Silizium) eine Kontraktion des mittleren Gitters. Dadurch wird ein neuer Freiheitsgrad erschlossen, die Verspannung unabhängig vom Ge-Gehalt einzustellen: Spannungskompensierte oder gar zugverspannte $\text{Si}_{1-x-y}\text{Ge}_x\text{C}_y$ -Schichten können direkt auf Siliziumsubstrate aufgewachsen werden.

Problematisch beim Wachstum von $\text{Si}_{1-x}\text{C}_x$ -Schichten ist die geringe Gleichgewichtslöslichkeit von Kohlenstoff im Si-Gitter: $\text{Si}_{1-x}\text{C}_x$ -Epischichten mit der notwendigen Kohlenstoffkonzentration von einigen Prozent können nur fernab des thermodynamischen Gleichgewichts metastabil hergestellt werden und sind

deshalb besonders anfällig gegen Ausscheidungsbildung. Bei erhöhten Temperaturen verläßt der Kohlenstoff den substitutionellen Gitterplatz und bildet β -SiC-Ausscheidungen, wodurch der gewünschte kontrahierende Effekt auf das Gitter zunichte gemacht wird [3]. Eine besonders empfindliche Methode zur Untersuchung der kristallinen Struktur in Festkörpern stellt die Röntgenbeugung dar. In Kombination mit oberflächenempfindlichen Streutechniken kann die Konzentration und Verteilung des Kohlenstoffs in der Schicht bestimmt und die Strukturänderung bei der Ausscheidungsbildung nachgewiesen werden. Die Untersuchung der Ausscheidungsbildung in $\text{Si}_{1-x}\text{C}_x$ -Epischichten in Abhängigkeit von der Temperatur ist ein weiterer wesentlicher Bestandteil dieser Arbeit.

Germaniuminseln auf Bor-terminiertem Si(111)

Einen völlig neuen Ansatz zur Manipulation der elektronischen und optischen Eigenschaften von Halbleitern stellen sogenannte 'quantum dots'¹ oder 'Quantenpunkte' (QP) dar. Der Einschluß von Ladungsträgern in dreidimensional begrenzten Strukturen von wenigen Nanometern Ausdehnung führt aufgrund von quantenmechanischen Effekten zu einer elektronischen Struktur, die der einzelner Atome ähnelt und daher völlig verschieden ist von der Bandstruktur im Festkörper. Quantenpunktheterostrukturen auf der Basis von Si/Ge erschließen daher auch opto-elektronische Anwendungen wie Leuchtdioden oder Laser im Halbleitersystem Silizium. Zunächst wurden Quantenpunkte meist durch lithographische Techniken hergestellt, in der Regel durch laterale Strukturierung von eindimensionalen Quantengraben. Dieses Verfahren bietet den Vorteil, daß Quantenpunkte verschiedener Form und lateraler Anordnung hergestellt werden können. Neben der Röntgenstrahlolithographie kommen bei der lateralen Strukturierung vor allem Rastersondentechniken, die Elektronenstrahlolithographie und die fokussierte Ionenstrahlolithographie zum Einsatz. Bis auf die erstgenannte sind diese jedoch keine parallelen Verfahren und daher in der Massenproduktion hoher QP-Dichten sehr aufwendig. Die Suche nach einem alternativen und billigen Herstellungsverfahren für Quantenpunkte hat zu einem starken Forschungsinteresse an selbstorganisierten Wachstumsprozessen von Inseln geführt. Durch Selbstorganisation entstehen, getrieben durch die Gitterfehlanpassung oder aufgrund der Grenzflächenenergie, bereits beim Wachstum in der Heteroepitaxie Inseln mit einheitlicher Größenverteilung und lateraler Ordnung, die sonst durch aufwendige Verfahren künstlich „geschrieben“ werden müssen [4]. Die Kontrolle über Größe und Ordnung beim Wachstum ist dabei ausschlaggebend für die technologische Anwendbarkeit des selbstorganisierten Wachstums.

Neben dem Studium kleiner kohärenter Quantenpunkte, wie sie für 'quantum confinement'-Effekte in Frage kommen, trägt auch die Untersuchung des Wachstums von größeren Inseln zu einem verbesserten Grundlagenverständnis selbstor-

¹ „...coherent inclusions in a semiconductor matrix with truly zerodimensional electronic properties...“ [4]

ganisierter Wachstumsprozesse bei. So kommt es beim Wachstum von Germanium auf Bor-terminiertem Si(111) zur Bildung von dreiseitigen pyramidenförmigen Ge-Inseln, die entlang kristallographischer Richtungen orientiert sind, und bei geeigneten Wachstumsbedingungen eine ausgeprägte laterale Ordnung zeigen. Die Charakterisierung von Form, Ordnung und kristalliner Struktur an einer Serie von Ge-Inseln mit systematisch variierten Wachstumsparametern bildet den dritten Teil der Arbeit.

Diese Arbeit ist wie folgt gegliedert: In Kapitel 2 werden die verwendeten experimentellen Methoden und das benötigte theoretische Rüstzeug dargelegt. In Kapitel 3 wird die Charakterisierung der Rauheitsmorphologie in $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$ -Schichten auf relaxierten Puffern behandelt. Die Untersuchung der Ausscheidungsbildung in einer systematisch getemperten Serie von $\text{Si}_{1-x}\text{C}_x$ -Epischichten wird in Kapitel 4 vorgestellt. Das Kapitel 5 ist dem Einfluß der Wachstumsparameter auf Morphologie und kristalline Struktur von Ge-Inseln auf Bor-terminiertem Si(111) gewidmet.

Kapitel 2

Untersuchungsmethoden

In diesem Abschnitt werden die experimentellen Methoden vorgestellt, mit deren Hilfe die in dieser Arbeit aufgeworfenen Fragestellungen bearbeitet wurden. Zur Charakterisierung der Oberflächenmorphologie eignet sich als direktes abbildendes Verfahren die Rasterkraftmikroskopie, die im ersten Abschnitt 2.1 vorgestellt wird. Ein direktes Abbild der Oberfläche ist oft von großem Wert, um eine erste Vorstellung der Morphologie zu erhalten und adäquate Modelle zur Beschreibung von Streuexperimenten zu entwickeln.

Der Zugang über Streumethoden ist sehr viel weniger intuitiv, da ein Streuexperiment zunächst nur eine Information über den *reziproken* Raum des untersuchten Systems liefert. Streumethoden sind jedoch ein intrinsisch statistisches Verfahren. Ein Streuexperiment ergibt ein Ensemblemittel über das gesamte beleuchtete Streuvolumen. Bei oberflächenempfindlichen Experimenten wird dabei über einige mm^2 (inkohärent) gemittelt. Synchrotronstrahlung ermöglicht durch ihre hohe räumliche Kohärenz, Korrelationen auf weit größeren lateralen Längenskalen zu erfassen, als sie durch Rasterkraftmikroskopie zugänglich sind. Streumethoden haben zudem den großen Vorteil, daß sie auch *vergrabene* Strukturen erfassen, die sonst nur mit sehr hohem präparativen Aufwand charakterisiert werden können, wie z.B. bei der Transmissionselektronenmikroskopie (TEM). Eine Einführung in die *oberflächenempfindliche* Röntgenstreuung wird im Abschnitt 2.2 gegeben.

Zur Untersuchung der Morphologie von Grenzflächen in amorphen wie kristallinen Festkörpern werden Streumethoden bei sehr kleinen Impulsüberträgen nahe der Vorwärtsstreuung verwendet. Röntgenreflektivität und diffuse Streuung zur Charakterisierung der Grenzflächenrauigkeit werden im Abschnitt 2.3 vorgestellt. Ein methodisch verwandtes Verfahren zur Bestimmung der Morphologie von mesoskopischen Inseln, die Kleinwinkelstreuung unter streifendem Einfall wird im Anschluß daran (Abschnitt 2.4) beschrieben.

Das Studium der kristallinen Eigenschaften dünner Schichten und von Inselstrukturen erfordert Beugungsmethoden. Nach einer kurzen Einführung in die kinematische Röntgenbeugung (Abschnitt 2.5) werden Techniken dargestellt,

die besonders empfindlich für die Kristallstruktur an Oberflächen sind, wie die asymptotische Braggstreuung (auch 'Crystal-Truncation-Rod'-Streuung genannt) (Abschnitt 2.6) und die Beugung unter streifenden Ein- und Ausfallswinkeln (Abschnitt 2.7). Im letzten Abschnitt des Kapitels wird die Streuung an Kristallen mit Defekten diskutiert.

2.1 Rasterkraftmikroskopie

Rastersondentechniken erlauben eine direkte Abbildung physikalischer Eigenschaften einer Oberfläche. Die Reichweite der Wechselwirkung zwischen Probe und Sonde bestimmt dabei die mögliche räumliche Auflösung der Mikroskopie. Beim Rastertunnelmikroskop [5] ermöglichte die starke Abhängigkeit des Tunnelstromes zwischen einer Sonde und der Oberfläche vom Abstand erstmals die direkte Abbildung elektrisch leitender Oberflächen mit atomarer Auflösung. Das Rasterkraftmikroskop (AFM¹) [6] nutzt die Entfernungsabhängigkeit anziehender und abstoßender Kräfte zwischen Sonde und Probe und erlaubt daher die Abbildung auch elektrisch nicht leitender Oberflächen in verschiedenster Umgebung wie im Vakuum, an Luft oder auch in Flüssigkeiten. Auf demselben Grundprinzip beruhen eine Reihe von Weiterentwicklungen wie die 'Magnetic Force Microscopy' (MFM), 'Electric Force Microscopy' (EFM) u.a. Rastersondentechniken haben schnell Eingang in die kommerzielle Entwicklung von Rastersondenmikroskopen gefunden und sind heute aus der Charakterisierung von Oberflächen auf mesoskopischer Längenskala kaum mehr wegzudenken.

Eine Prinzipskizze des Rasterkraftmikroskopes ist in Abb. 2.1 gezeigt. Als Sonde dient eine dünne Spitze, die auf einem sog. 'Cantilever' befestigt ist. Der 'Cantilever' wird in die Nähe der Probenoberfläche gebracht und meist mit Piezoelementen lateral und vertikal feinpositioniert. Bei der Annäherung an die Oberfläche wirkt auf die AFM-Spitze eine Überlagerung verschiedener Kräfte, die in erster Näherung durch ein Lenard-Jones-Potential beschrieben werden können. Bei sehr kleinen Abständen von einigen Ångström dominiert die abstoßende Harte-Kugel-Wechselwirkung, die auf dem Paulischen Ausschließungsprinzip und der elektrostatischen Abstoßung der Atome nach Aufhebung der Abschirmung durch die Elektronenwolken beruht. In einem Abstand bis zu einigen 100 Å wird die Wechselwirkung durch die anziehende van der Waalssche Dipol-Dipol-Wechselwirkung zwischen der Spitze und der Probe bestimmt. Darüber hinaus spielen zumeist Kapillarkräfte zwischen Spitze und Oberfläche eine Rolle, wie sie oft bei Untersuchungen an Luft durch adsorbierte Wasserfilme auftreten.

Durch die Piezoelemente wird die Spitze lateral über die Oberfläche gerastert. Die bei der Annäherung an die Oberfläche auf die Spitze wirkenden Kräfte können statisch oder dynamisch gemessen werden. Bei direktem Kontakt mit der Oberfläche wird die Verformung des 'Cantilever' statisch gemessen. Die Messung der

¹Atomic Force Microscope

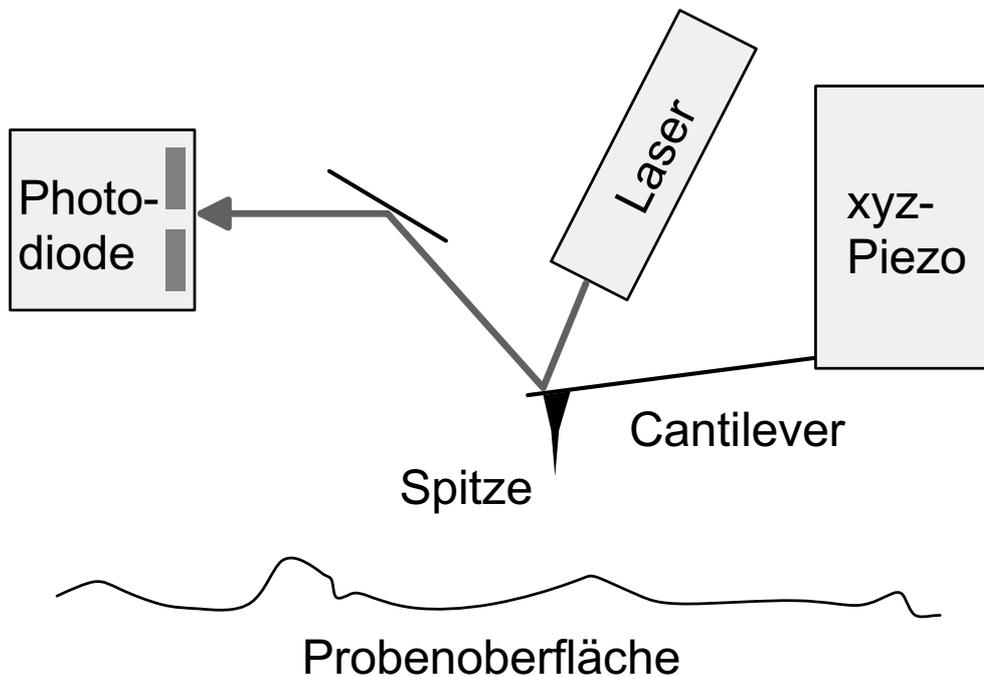


Abb.2.1. Prinzip des Rasterkraftmikroskops wie es z.B. im *NanoScope* von *Digital Instruments* Verwendung findet.

Verformung erfolgt meist über einen Lichtzeiger: Ein Laserstrahl wird vom 'Cantilever' reflektiert und über ein optisches System zu einer mehrteiligen Photodiode geleitet. Aus der Differenz der Photoströme kann die Biegung des 'Cantilever' abgeleitet werden, oder über einen Regelkreis eine konstante Verformung gehalten werden. Die dazu notwendige vertikale Position des 'Cantilever' ergibt ein Relief der Oberfläche. Im statischen Regime hängt die Auflösung von der Auflagefläche der beteiligten Atome ab, d.h. in der Regel vom Krümmungsradius der Spitze. Mit sehr feinen Spitzen ist eine atomare Auflösung mit dem AFM prinzipiell möglich. Dynamische Verfahren messen die Federkonstante des Systems 'Cantilever'-Probe. Dazu wird die Spitze zu vertikalen Schwingungen bei ihrer Resonanzfrequenz angeregt. Bei der Annäherung an die Oberfläche überlagert sich die Wechselwirkung mit der Probe mit den Rückstellkräften des 'Cantilever' und führt durch die veränderte Resonanzfrequenz zu einer starken Änderung der Schwingungsamplitude. Bei dynamischen Verfahren kann die Spitze die Oberfläche sowohl periodisch antippen ('tapping mode'), als auch berührungslos über der Oberfläche schwingen ('non contact mode'). Berührungsfreie Verfahren messen die Variation der van der Waals-Kräfte.

2.2 Oberflächensensitive Röntgenstreuung

Das Durchdringungsvermögen von Röntgenstrahlen ist sprichwörtlich. Obgleich die damit gemeinte 'Durchleuchtung' von biologischem Material in der Medizin oder gar von Festkörpern in der Werkstoffprüfung sehr harten Röntgenstrahlen im Energiebereich ab 100 keV (Wellenlängenbereich $\lambda < 0.01 \text{ \AA}$) vorbehalten ist, beträgt bei Röntgenstrahlen mit einer für Strukturuntersuchungen besonders geeigneten Wellenlänge um 1 \AA die Absorptionslänge nurmehr etwa $100 \mu\text{m}$ (Absorptionslänge in Si für $\text{Cu}_{K\alpha}$ -Strahlung mit $\lambda = 1.54 \text{ \AA}$: $70.9 \mu\text{m}$, für $\text{Mo}_{K\alpha}$ -Strahlung mit $\lambda = 0.71 \text{ \AA}$: $705 \mu\text{m}$). Auch wenn diese Eindringtiefe sehr viel kleiner ist als bei der Durchleuchtung mit ultraharten Röntgenstrahlen, so liegt sie doch um einige Größenordnungen über der vertikalen Ausdehnung von mesoskopischen Dünnschichtsystemen oder Inseln auf Substraten. Konventionelle Röntgenstreuungsmethoden untersuchen zumeist Volumeneigenschaften und sind nur begrenzt empfindlich für Eigenschaften von Oberflächen und oberflächennahen Schichten.

Wie kombiniert man nun die für Strukturuntersuchungen auf atomarer und mesoskopischer Skala ideale Wellenlänge um 1 \AA mit der gewünschten Empfindlichkeit für Oberflächen und dünne Schichten? Der Schlüssel zur Lösung liegt im Brechungsindex von Röntgenstrahlen dieser Wellenlänge in Materie. Für sehr kleine *streifende* Einfallswinkel kommt es zur *externen Totalreflexion* von Röntgenstrahlen verbunden mit einer typischen Eindringtiefe von 10^2 \AA , wie im folgenden dargestellt wird.

Die Frequenz ω von Röntgenstrahlen liegt jenseits von Anregungsfrequenzen ω_j der (äußeren) Elektronen in Festkörperatomen und es gilt folgende Beziehung für den Brechungsindex n

$$n^2 = 1 + \frac{Ne^2}{\epsilon_0 m_e} \sum_j \frac{f_j}{\omega_j^2 - \omega^2 - i\gamma_j} \quad (2.1)$$

wobei N die Anzahl von Atomen pro Einheitsvolumen, e die Elementarladung, m_e die Elektronenmasse, ϵ_0 die Dielektrizitätskonstante, sowie ω_j und γ_j die elektronischen Resonanzfrequenzen und dazugehörigen Dämpfungskonstanten mit den relativen Oszillatorstärken f_j bezeichnen. Daraus erhält man für den komplexen Brechungsindex n

$$n = 1 - \delta + i\beta \quad (2.2)$$

mit dem Dispersionsanteil δ

$$\delta = \lambda^2 \frac{Nr_e Z}{2\pi} \quad (2.3)$$

worin $r_e = e^2/(4\pi\epsilon_0 mc^2) = 2.814 \times 10^{-5} \text{ \AA}$ den klassischen Elektronenradius und Z die Kernladung bezeichnen. Die Absorption wird durch den imaginären Anteil

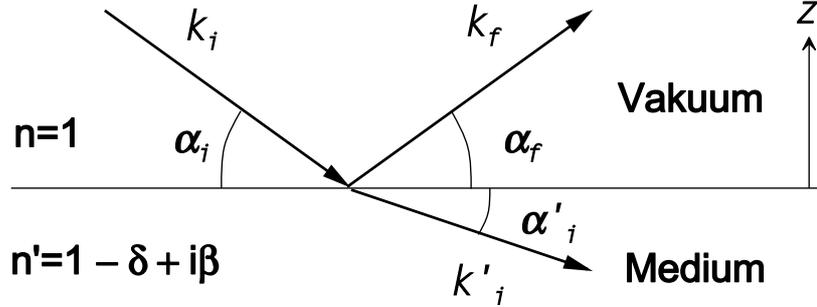


Abb.2.2. Einfallende Röntgenwelle mit Wellenvektor $|\mathbf{k}_i| = 2\pi/\lambda$ unter einem streifenden Einfallswinkel α_i zur Grenzfläche zwischen Vakuum ($n = 1$) und Medium $n = 1 - \delta + i\beta$.

$i\beta$ mit

$$\beta = \lambda \frac{N\sigma_a}{4\pi} = \frac{\lambda\mu}{4\pi} \quad (2.4)$$

beschrieben, worin σ_a den Absorptionsquerschnitt und μ den linearen Photoabsorptionskoeffizienten bedeuten. Der (Realteil des) Brechungsindex ist somit immer kleiner als 1, δ liegt typischerweise in der Größenordnung von 10^{-6} bis 10^{-5} und β von 10^{-7} bis 10^{-6} . Berechnete Werte für die in den Experimenten verwendeten Wellenlängen und Materialien sind im Anhang A aufgeführt.

Trifft eine ebene Welle $\mathbf{E}_i(\mathbf{r})$ mit Wellenzahlvektor $|\mathbf{k}_i| = 2\pi/\lambda$ aus dem Vakuum ($n = 1$) unter einem Einfallswinkel α_i auf die Grenzfläche zu einem Medium mit Brechungsindex $n' = 1 - \delta + i\beta$ ²,

$$\mathbf{E}_i(\mathbf{r}) = \mathbf{E}_i e^{i\mathbf{k}_i \cdot \mathbf{r}}, \quad \mathbf{E}_i = E_i \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \\ 0 \end{pmatrix}, \quad \mathbf{k}_i = \frac{2\pi}{\lambda} \begin{pmatrix} \cos \alpha_i \\ 0 \\ -\sin \alpha_i \end{pmatrix} \quad (2.5)$$

wird ein Teil der Welle $\mathbf{E}_r(\mathbf{r})$ unter dem Ausfallswinkel $\alpha_f = \alpha_i$ reflektiert:

$$\mathbf{E}_r(\mathbf{r}) = R_i \mathbf{E}_i e^{i\mathbf{k}_i \cdot \mathbf{r}}, \quad \mathbf{k}_t = \frac{2\pi}{\lambda} \begin{pmatrix} \cos \alpha_i \\ 0 \\ +\sin \alpha_i \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} k_{ix} \\ k_{iy} \\ -k_{iz} \end{pmatrix}. \quad (2.6)$$

²Alle Winkel sind, abweichend von der üblichen Konvention in der Optik, ausgehend von der Grenzfläche und nicht vom Einfallslot definiert.

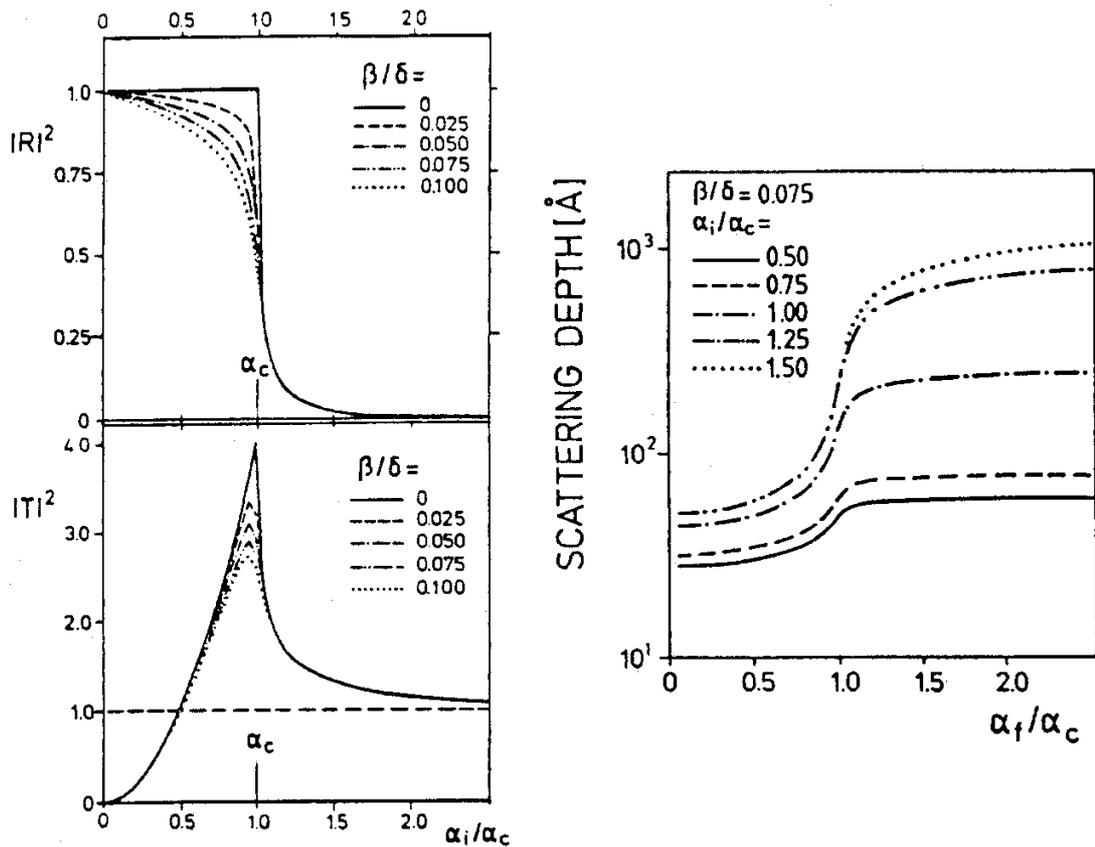


Abb.2.3. Links: Betragsquadrat des Reflexions- und Transmissionskoeffizienten als Funktion des Einfallswinkels α_i für verschiedene Verhältnisse von Dispersion zu Absorption. **Rechts:** Streutiefe Λ in logarithmischer Darstellung für verschiedene Einfallswinkel α_i als Funktion des Austrittswinkels α_f . Aus [7].

Der verbleibende Anteil $\mathbf{E}_t(\mathbf{r})$ wird unter einem Winkel α'_i in das Medium mit Brechungsindex n' gebrochen und transmittiert:

$$\mathbf{E}_t(\mathbf{r}) = T_i \mathbf{E}_i e^{i\mathbf{k}_t \cdot \mathbf{r}}, \quad \mathbf{k}_t = \frac{2\pi}{\lambda} \begin{pmatrix} \cos \alpha_i \\ 0 \\ (\sin^2 \alpha_i - 2\delta + 2i\beta)^{1/2} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} k_{ix} \\ k_{iy} \\ k'_{iz} \end{pmatrix}. \quad (2.7)$$

Die Fresnelschen Koeffizienten für die Reflexion R_i und Transmission T_i können mit Hilfe von Stetigkeitsbedingungen aus den Maxwellgleichungen hergeleitet

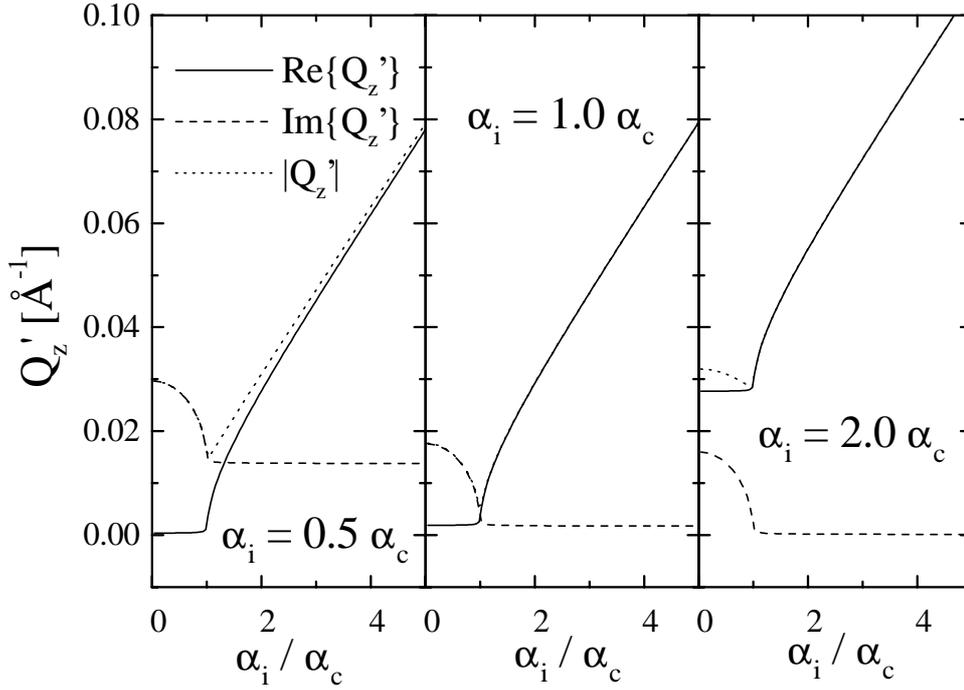


Abb.2.4. Real-, Imaginärteil und Betrag des senkrechten Impulsübertrages Q'_z im Medium berechnet für Si und $\text{Cu}_{K\alpha}$ -Strahlung.

werden und lauten³

$$R_i = \frac{k_{iz} - k'_{iz}}{k_{iz} + k'_{iz}} \quad T_i = \frac{2k_{iz}}{k_{iz} + k'_{iz}}. \quad (2.8)$$

Hier bezeichnen k_{iz} und k'_{iz} die z -Komponenten des Wellenzahlvektors der einfallenden Welle im Vakuum und transmittierten Welle im Medium. Aus dem *Snelliusschen* Brechungsgesetz

$$n \cos \alpha_i = n' \cos \alpha'_i \quad (2.9)$$

läßt sich unter Vernachlässigung der Absorption ein kritischer Winkel α_c ableiten, unterhalb dessen die Welle an der Grenzfläche *totalreflektiert* wird:

$$\alpha_c = \sqrt{2\delta} = \lambda \sqrt{\frac{Nr_e Z}{\pi}}. \quad (2.10)$$

³Der Reflexions- und Transmissionskoeffizient sind polarisationsabhängig. Bei den hier betrachteten kleinen Ein- und Ausfallwinkel kann der Unterschied zwischen σ - und π -Polarisation wegen $n \approx 1$ vernachlässigt werden. Eine rigorose Herleitung für die allgemeine Polarisation

$\mathbf{E}_i = E_{i\parallel} \begin{pmatrix} \sin \alpha_i \\ 0 \\ \cos \alpha_i \end{pmatrix} + E_{i\perp} \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \\ 0 \end{pmatrix}$ findet man z.B. bei *Dosch* [7].

An die Stelle der *propagierenden* transmittierten Welle tritt für $\alpha_i < \alpha_c$ ein exponentiell gedämpftes Wellenfeld, das sich parallel zur Grenzfläche ausbreitet, die sog. *evaneszente* Welle

$$\mathbf{E}_t(\mathbf{r}) = T_i \mathbf{E}_i e^{i\text{Re}(\mathbf{k}_t) \cdot \mathbf{r}} e^{-z/L_i} \quad (2.11)$$

mit einer Eindringtiefe L_i , die durch den Einfallswinkel α_i , die Dispersion δ und die Absorption β bestimmt ist:

$$L_i \equiv \frac{1}{|\text{Im}(k'_{iz})|} = \frac{\lambda}{2\pi l_i} \quad (2.12)$$

$$l_i = \sqrt{\frac{1}{2}\{(2\delta - \sin^2 \alpha_i) + \sqrt{(\sin^2 \alpha_i - 2\delta)^2 + 4\beta^2}\}}. \quad (2.13)$$

Von viel größerer experimenteller Bedeutung ist die *Streutiefe* Λ ,

$$\Lambda = \frac{1}{|\text{Im}(Q'_z)|} = \frac{1}{|\text{Im}(k'_{iz} - k'_{fz})|} = \frac{\lambda}{2\pi(l_i + l_f)} \quad (2.14)$$

die die typische mittlere Tiefe beschreibt, bis zu welcher eine unter α_i einfallende und unter α_f austretende gestreute Röntgenwelle Strukturinformation trägt, wobei l_i und l_f analog für α_i und α_f definiert sind. Abbildung 2.3 gibt den Verlauf des Reflexions- und Transmissionskoeffizienten und der Streutiefe Λ in reduzierten Einheiten wieder.

2.3 Reflektivität und diffuse Röntgenstreuung unter streifendem Einfall

Zur Untersuchung der Grenzflächenmorphologie von dünnen Schichten wird die Reflektivität und diffuse Streuung von Röntgenstrahlen bei kleinen Streuwinkeln in der Umgebung der Vorwärtsstreuung herangezogen. Eine ausführliche Einführung in die Röntgenreflektivität findet man z.B. in [8].

Wir betrachten eine Streugeometrie, wie sie in Abb. 2.5 dargestellt ist. Der einfallende Wellenvektor \mathbf{k}_i unter dem Einfallswinkel α_i definiert zusammen mit der Oberflächennormale $\hat{\mathbf{z}}$ die Einfallsebene. Die z -Richtung steht senkrecht auf der Oberfläche. Die beiden lateralen Richtungen x und y liegen in der Grenzfläche, x in der Einfallsebene, y senkrecht dazu. Wir betrachten die gestreute Intensität unter einem Ausfallswinkel α_f relativ zur Grenzfläche und unter dem Winkel 2θ zur Einfallsebene. Die Komponenten des Impulsübertrages $\mathbf{q} = \mathbf{Q} =$

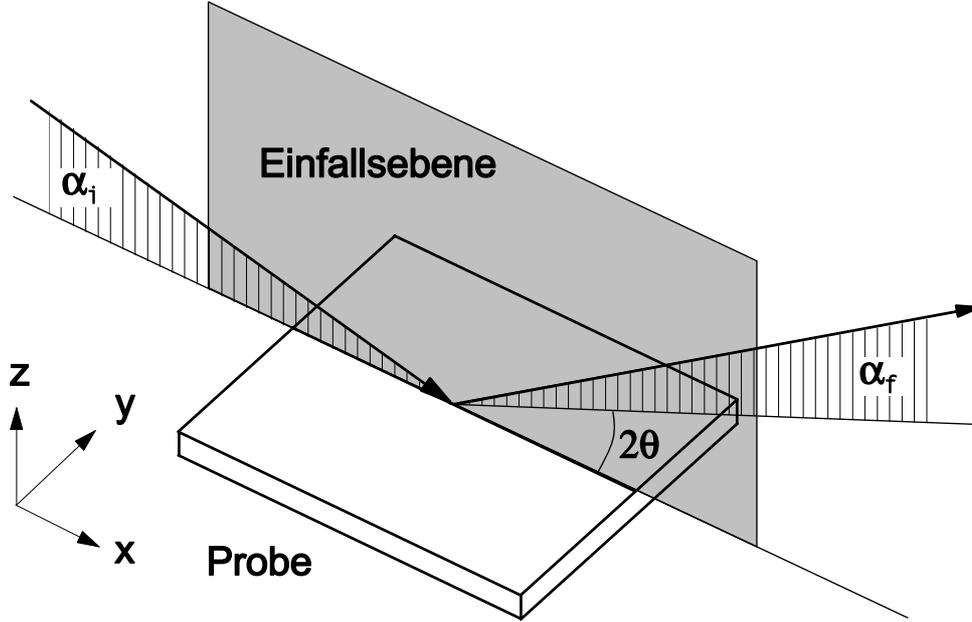


Abb.2.5. Streugeometrie für Reflektivität und diffuse Streuung in Vorwärtsrichtung.

$\mathbf{k}_f - \mathbf{k}_i$ ⁴ sind gegeben durch:

$$\mathbf{q} = \begin{pmatrix} q_x \\ q_y \\ q_z \end{pmatrix} = \frac{2\pi}{\lambda} \begin{pmatrix} \cos \alpha_f \cos 2\theta - \cos \alpha_i \\ \cos \alpha_f \sin 2\theta \\ \sin \alpha_f + \sin \alpha_i \end{pmatrix}. \quad (2.15)$$

Streuung bei $q_x = q_y = 0$ wird als Streuung auf dem *spekulären* Pfad bezeichnet, sie setzt sich aus dem Untergrund diffuser Streuung bei $q_x = q_y = 0$ und der spekulären Reflektivität zusammen. Da kein lateraler Impulsübertrag stattfindet, beinhaltet die spekuläre Reflektivität keine laterale Strukturinformation, sondern nur Information über den vertikalen Verlauf des Brechungsindexprofils. Streuung bei *nicht* verschwindendem lateralem Impulsübertrag $q_{\parallel} = \sqrt{q_x^2 + q_y^2}$ wird als *diffuse* Streuung bezeichnet. Der Strukturfaktor der diffusen Streuung enthält laterale Strukturinformation über die Morphologie der Grenzfläche. Im Experiment unterscheidet man zwischen diffuser Streuung in der Einfallebene ('in-plane scattering') bei $2\theta = 0$ und außerhalb der Einfallebene mit $2\theta \neq 0$.

⁴In dieser Arbeit bezeichnet $\mathbf{Q} = \mathbf{k}_f - \mathbf{k}_i$ den gesamten Impulsübertrag in einem Streuexperiment und $\mathbf{q} = \mathbf{Q} - \mathbf{G}$ den Abstand zum nächsten reziproken Gittervektor \mathbf{G} (siehe Abschnitt 2.5). In der Umgebung der Vorwärtsrichtung bei $\mathbf{G} = (000)$ spielt diese Unterscheidung jedoch keine Rolle.

Streuung in der Einfallsebene zeichnet sich durch eine hohe Auflösung im lateralen Impulsübertrag $q_{||}$ aus, jedoch ist durch die Bedingung $\alpha_i, \alpha_f \geq 0$ der maximale laterale Impulsübertrag abhängig von q_z beschränkt. Diese Streugeometrie eignet sich zur Untersuchung von *großen* lateralen Längenskalen in der Größenordnung von Mikrometern. Eine komplementäre Streugeometrie ist die Streuung *außerhalb* der Einfallsebene ('out-of-plane scattering'), bei der der laterale Impulsübertrag hauptsächlich durch die Variation des Winkels 2θ erzielt wird. Der laterale Impulsübertrag ist hier nach Gl. 2.15 nur durch den Vakuumwellenvektor beschränkt. Die so erreichbaren *großen* lateralen Impulsüberträge eignen sich zur Untersuchung der Rauigkeitsmorphologie auf kleinen lateralen Längenskalen im Bereich von Nanometern. Für eine ausführliche Diskussion der 'out-of-plane' Streugeometrie sei auf [9] verwiesen.

Die Intensität der spekulär reflektierten Welle ist durch das Betragsquadrat der Reflexionskoeffizienten aus Gl. (2.8) gegeben. Für Einfallswinkel $\alpha_i \gg \alpha_c$ kann man R_i entwickeln und erhält für die Fresnel-Reflektivität $|R_F|^2$ der ideal glatten Grenzfläche

$$|R_F|^2 = |R_i|^2 = \left(\frac{\alpha_c}{2\alpha_i}\right)^4 \quad (2.16)$$

und damit einen Zerfall der Reflektivität mit q_z^{-4} . Im Fall einer Grenzfläche, deren Elektronendichteprofil keinen scharfen Übergang zeigt, muß die Reflektivität modifiziert werden. Hierbei spielt es zunächst keine Rolle, ob der Gradient der Elektronendichte durch eine *topologische* Rauigkeit, d.h. eine Schwankung der Höhenfunktion $z(x, y)$ einer *scharfen* Grenzfläche zustandekommt, oder durch ein ausgeschmiertes Elektronendichteprofil durch einen kontinuierlichen Übergang von einem Material zum nächsten (Interdiffusion). Im folgenden nehmen wir an, daß das Brechungsindexprofil durch

$$n(z) = \frac{n}{2} + \frac{n}{2} \operatorname{erf}\left(\frac{z - \langle z \rangle}{\sqrt{2}\sigma}\right) \quad (2.17)$$

mit der Error-Funktion

$$\operatorname{erf}(z) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_0^z \exp(-t^2) dt$$

beschrieben werden kann. Dies ist z.B. durch eine Gauß-förmige Verteilung der Fluktuationen $\Delta z(x, y)$ der lokalen Höhenfunktion $z(x, y) = \langle z \rangle + \Delta z(x, y)$ gegeben mit der Verteilung

$$w(\Delta z) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma} \exp\left(-\frac{(\Delta z)^2}{2\sigma^2}\right) \quad (2.18)$$

und der RMS-Rauigkeit σ . Die Reflexions- und Transmissionskoeffizienten werden durch die Rauigkeit wie folgt verändert [10]:

$$R_\sigma = R_i \exp(-2k_{iz}k'_{iz}\sigma^2) \quad T_\sigma = T_i \exp\left(+\frac{1}{2}(k'_{iz} - k_{iz})\sigma^2\right). \quad (2.19)$$

Bevor die diffuse Streuung behandelt wird, soll im folgenden Abschnitt eine spezielle Rauheitsmorphologie vorgestellt werden, die selbstaffine raue Grenzfläche.

2.3.1 Statistische Beschreibung einer selbstaffinen rauhen Grenzfläche

Die exakte Form oder Topologie einer rauhen Grenzfläche ist zumeist nicht bekannt. Oft genügt es jedoch, einige typische *statistische* Eigenschaften wie die durchschnittliche Höhe und die laterale Ausdehnung von Fluktuationen zu kennen, um eine Grenzfläche ausreichend zu charakterisieren. Wir betrachten im folgenden eine Grenzfläche, der eine *eindeutige* Höhenfunktion $z(x, y)$ zugeordnet werden kann, d.h. Falten oder Überhänge und Höhlen sind nicht zugelassen. Die Morphologie dieser Grenzfläche kann mit Hilfe von Korrelationsfunktionen beschrieben werden. Die *Höhen-Differenzfunktion*

$$g(X, Y) \equiv \langle [z(0) - z(X, Y)]^2 \rangle \quad (2.20)$$

gibt ein Maß für die mittlere quadratische Abweichung der Höhe $z(x, y)$ und $z(x', y')$ an zwei verschiedenen Orten der Grenzfläche, die durch einen lateralen Abstand $(X, Y) = (x' - x, y' - y)$ voneinander getrennt sind. Eine äquivalente statistische Beschreibung ist die Korrelation der Abweichung $\delta z(x, y) = z(x, y) - \langle z \rangle$ von der mittleren Grenzfläche $\langle z \rangle$, die *Höhen-Korrelationsfunktion*

$$C(X, Y) \equiv \langle \delta z(0) \delta z(X, Y) \rangle. \quad (2.21)$$

Aus der Definition dieser beiden Korrelationsfunktionen folgt die Beziehung

$$C(X, Y) = \sigma^2 - g(X, Y)/2, \quad (2.22)$$

worin σ die RMS-Rauhigkeit der Grenzfläche $\langle \delta z(0) \delta z(0) \rangle^{\frac{1}{2}}$ bedeutet. Konforme Rauigkeit, d.h. die Replikation der Morphologie über mehrere Grenzflächen hinweg, wird analog durch die Kreuz-Korrelationsfunktion

$$C_{ij}(X, Y) \equiv \langle \delta z_i(0) \delta z_j(X, Y) \rangle \quad (2.23)$$

der verschiedenen Grenzflächen $i \neq j$ beschrieben.

Oft wird für reale raue Grenzflächen angenommen, daß ihre Morphologie isotrop ist und einer *selbstaffinen* Höhen-Differenzfunktion $g(R)$ mit $R = \sqrt{X^2 + Y^2}$ zur Beschreibung ihrer Morphologie genügt. Selbstaffine Höhen-Differenzfunktionen zeigen das asymptotische Verhalten

$$g(R) \rightarrow AR^{2H} \quad (2.24)$$

für kleine laterale Abstände R und sättigen gegen $g(R) \rightarrow 2\sigma^2$ bei lateralen Abständen, die größer als eine typische laterale 'cut-off'- oder Korrelationslänge ξ sind. Der Exponent H heißt *statischer Rauigkeitsexponent* oder auch *Hurst-Parameter* und beschreibt den Grad der Zerklüftung der Grenzfläche [11]. Die Größe A ist ein Maß für das Verhältnis der mittleren vertikalen Höhendifferenz bei einem gegebenen lateralen Abstand und dieser lateralen Länge selbst. Ein Beispiel für eine Höhen-Differenzfunktion, die das asymptotische Verhalten nach Gl. (2.24) zeigt, ist die Funktion

$$g(R) = 2\sigma^2 \left(1 - e^{-\left(\frac{R}{\xi}\right)^{2H}}\right), \quad (2.25)$$

die von *Sinha et al.* [12] vorgeschlagen wurde. Eine Reihe anderer möglicher Korrelationsfunktionen mit dem gleichen asymptotischen Verhalten wurden von *Palasantzas und Krim* [13] diskutiert. Entwickelt man die Exponentialfunktion in Gl. (2.25) für kleine Abstände R , läßt sich A mit $2\sigma^2/\xi^{2H}$ identifizieren.

2.3.2 Diffuse Röntgenstreuung von selbstaffinen rauhen Grenzflächen

Ein allgemeiner Ausdruck für den *totalen* Streuquerschnitt der Streuung von einer rauhen Grenzfläche wurde von *Sinha et al.* [12] im Rahmen der ersten Bornschen Näherung gegeben ('Born-Approximation' BA)

$$\begin{aligned} \frac{d\sigma}{d\Omega_{\text{tot}}} &= N^2 b^2 L_x L_y S(\mathbf{q}) \\ S(\mathbf{q}) &= \frac{1}{q_z^2} \iint dX dY e^{q_z^2 g(X,Y)/2} e^{-i(q_x X + q_y Y)} \end{aligned} \quad (2.26)$$

mit der Höhen-Differenzfunktion $g(X, Y)$ und dem Streuvektor \mathbf{q} . Für eine Grenzfläche mit RMS-Rauigkeit σ kann man den spekulären Beitrag zum Streuquerschnitt separieren und die diffuse Komponente als Funktion der Höhen-Korrelationsfunktion $C(X, Y) = \sigma^2 - g(X, Y)/2$ ausdrücken. Der Strukturfaktor der *diffusen* Streuung lautet dann

$$S(\mathbf{q})_{\text{diff}} = \frac{1}{q_z^2} e^{q_z^2 \sigma^2} \iint dX dY (e^{q_z^2 C(X,Y)} - 1) e^{-i(q_x X + q_y Y)} \quad (2.27)$$

oder im Fall einer *isotropen* Oberflächenmorphologie mit $C(X, Y) = C(R) = \sigma^2 c(R)$ und dem lateralen Impulsübertrag $q_{\parallel} = \sqrt{q_x^2 + q_y^2}$

$$S(\mathbf{q})_{\text{diff}} = \frac{2\pi}{q_z^2} e^{q_z^2 \sigma^2} \int dR R (e^{q_z^2 C(R)} - 1) J_0(q_{\parallel} R). \quad (2.28)$$

Dieser Ausdruck ist proportional zur Hankel-Transformation der Höhen-Korrelationsfunktion $C(R)$. Im Limes kleiner Rauigkeit $q_z^2 \sigma^2 \leq 1$ reduziert sich

Gl. (2.28) zur Fouriertransformation der normierten Höhen-Korrelationsfunktion $c(R)$ [9, 12]. In diesem Fall läßt sich durch eine einfache Rücktransformation die Höhen-Korrelationsfunktion aus dem Strukturfaktor gewinnen [14].

Eine korrekte Behandlung der diffusen Streuung im Bereich der externen Totalreflexion für Ein- und Ausfallwinkel in der Nähe des kritischen Winkels α_c erfordert eine Rechnung im Rahmen der 'Distorted-Wave-Born-Approximation' (DWBA). Für eine einzelne Oberfläche wurde der Streuquerschnitt erstmals von *Sinha et al.* [12] berechnet. Eine Verallgemeinerung auf mehrere korrelierte Grenzflächen findet man in den Arbeiten von *Holý et al.* [15, 16]. Ein wesentlicher Unterschied ist das Auftreten der Transmissionskoeffizienten im Querschnitt der diffusen Streuung (hier für eine Grenzfläche),

$$\frac{d\sigma}{d\Omega_{\text{diff}}} = L_x L_y \frac{|k^2(1-n^2)|^2}{16\pi^2} |T(\mathbf{k}_i)|^2 |T(\mathbf{k}_f)|^2 S(\mathbf{q}') \quad (2.29)$$

die für die resonante Erhöhung der diffusen Streuung in den sog. Yoneda-Maxima bei α_i oder $\alpha_f = \alpha_c$ verantwortlich sind. Eine Modifikation der Transmissionskoeffizienten in Gl. (2.29) für raue Grenzflächen wurde in verschiedenen Veröffentlichungen diskutiert [17–21].

Da die DWBA in der Auswertung der diffusen Streuung von verspannten Si/Si_{1-x}Ge_x-Schichtsystemen in dieser Arbeit keine Verwendung findet, sei der interessierte Leser auf die Originalarbeiten verwiesen.

2.3.3 Diffuse Röntgenstreuung im Grenzfall großer Rauigkeit

Im Falle *großer* Grenzflächenrauigkeit $q_z^2 \sigma^2 \gg 1$ ergibt die Hankel-Transformation mit zunehmendem $q_z^2 \sigma^2$ einen sich verbreiternden Strukturfaktor, da die Halbwertsbreite R^* des Integranden in Gl. (2.28) abnimmt. Im einfachen Spezialfall der Sinha-Korrelationsfunktion

$$C(R) = \sigma^2 e^{-\left(\frac{R}{\xi}\right)^{2H}} \quad \text{oder} \quad g(R) = 2\sigma^2 \left(1 - e^{-\left(\frac{R}{\xi}\right)^{2H}}\right) \quad (2.30)$$

mit Rauigkeitsexponenten $H = 1$ kann gezeigt werden, daß für $q_z^2 \sigma^2 \gg 1$ der Kehrwert von R^* linear mit q_z zunimmt:

$$\frac{1}{R^*} \rightarrow \frac{q_z \sigma}{\xi}. \quad (2.31)$$

Dieses Ergebnis ähnelt dem von *Sinha et al.* diskutierten Grenzfall einer Grenzfläche ohne lateralen 'cutoff', wie sie durch die divergierende Höhen-Differenzfunktion $g(R) = A R^{2H}$ beschrieben ist. Für $H = 1$ ist der Strukturfaktor gegeben durch [12]

$$S(\mathbf{q}) = \frac{2\pi}{A q_z^4} \exp\left(\frac{-q_{\parallel}^2}{A q_z^2}\right). \quad (2.32)$$

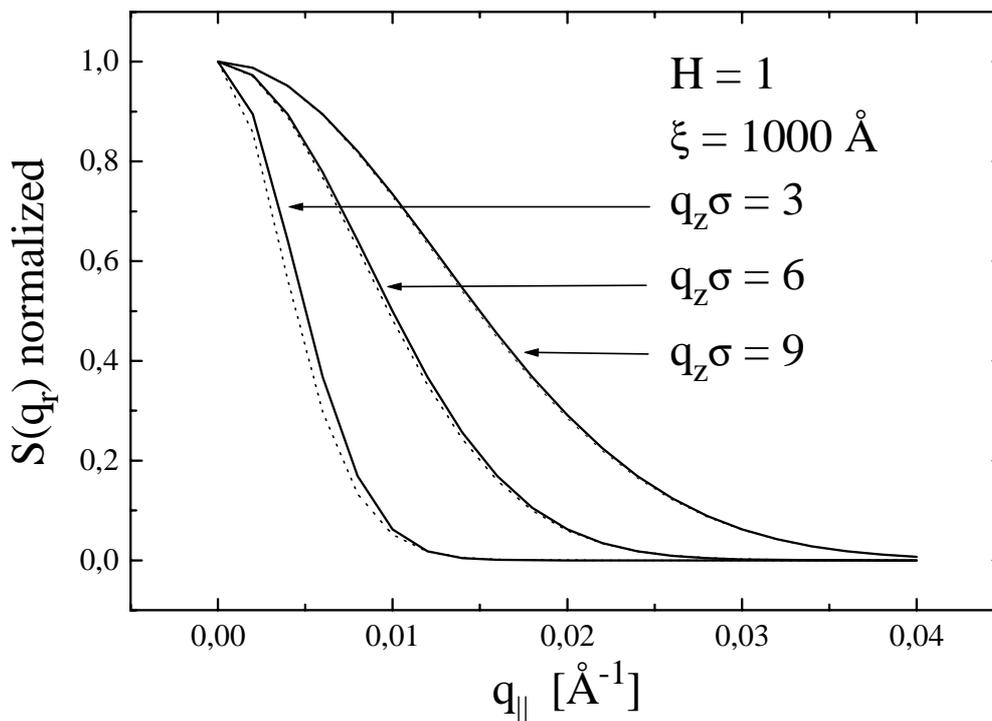


Abb.2.6. Vergleich der Hankel-Transformation Gl. (2.28) (durchgezogene Linie) mit dem Gauß-förmigen Strukturfaktor Gl. (2.32) (punktiert) für verschiedene Werte von $q_z^2 \sigma^2$. Die Näherung konvergiert gegen die exakte Hankel-Transformation mit zunehmendem $q_z^2 \sigma^2$.

In diesem Ausdruck ist keine spekuläre Reflektivität mehr enthalten, die Streuung ist rein diffus. (Eine Realisierung einer Grenzfläche ohne 'cutoff' im Fall $H = 1/2$ wurde von *Gibaud et al.* [22] in der diffusen Streuung von periodischen Langmuir-Blodgett-Vielfachschichten und von *Vitta* [23] für CdS/Cd-Arachidat Vielfachschichten gefunden.) Eine numerische Rechnung (Abb. 2.6) zeigt, daß der Strukturfaktor (2.32) tatsächlich sehr rasch gegen die *Hankel*-Transformation (2.28) konvergiert, sobald $q_z^2 \sigma^2$ groß genug wird. Daher können wir die diffus gestreute Intensität auch im Falle einer nicht wirklich divergierenden Grenzflächenmorphologie mit endlicher Rauigkeit σ durch den einfachen Ausdruck (2.32) beschreiben. Der Strukturfaktor ist dann durch eine Gaußverteilung mit einer Breite $\sqrt{A} q_z$ gegeben. Wenn wir Gleichung 2.30 für $H = 1$ und kleine R entwickeln, erhalten wir

$$A = \frac{2\sigma^2}{\xi^2}. \quad (2.33)$$

Kennen wir die Grenzflächenrauigkeit σ aus einer anderen Messung, so können wir die laterale Korrelationslänge ξ aus der Verbreiterung des Strukturfaktors $S(q_{||})$ mit q_z bestimmen und umgekehrt.

2.4 Röntgenkleinwinkelstreuung unter streifen- dem Einfall

Eine weitere Störung der idealen glatten Grenzfläche sind Dichtefluktuationen. Die diffuse Streuung von mesoskopischen Poren, Einschlüssen und Ausscheidungen wird als Kleinwinkelstreuung bezeichnet [24]. Die oberflächensensitive Untersuchung von Dichtefluktuationen nahe an Grenzflächen bei streifenden Winkeln erfordert wiederum die Berücksichtigung von Brechungseffekten. Ein allgemeiner Ausdruck für die Kleinwinkelstreuung von Fluktuationen des Brechungsindex', die unter einer Grenzfläche *vergraben* sind, wurde von *Rauscher et al.* im Rahmen der 'Distorted-Wave-Born-Approximation' (DWBA) gegeben [25]. Neben vergrabenen Inhomogenitäten verursachen auch *freistehende* Objekte wie Inseln auf einer Oberfläche diffuse Streuung. Um die Röntgenkleinwinkelstreuung unter streifenden Winkeln (GISAXS⁵) [26, 27] von freistehenden Inseln auf einem Substrat zu beschreiben, müssen Mehrfachreflexionen berücksichtigt werden, wie sie unter Ein- oder Ausfallswinkeln nahe am kritischen Winkel α_c auftreten können. Der entsprechende Streuquerschnitt wurde von M. Rauscher im Rahmen der DWBA berechnet und soll hier nur im Ergebnis dargestellt werden.

Wir betrachten zunächst allgemein freistehende Inseln auf einem Substrat, die durch eine charakteristische Funktion $s_\Delta(\mathbf{r})$ und ihren Brechungsindex n_Δ beschrieben sind: Innerhalb der Insel ist $s_\Delta(\mathbf{r}) = 1$, außerhalb = 0. Der differentielle Streuquerschnitt in DWBA lautet dann [28]:

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \frac{k_0^4 |1 - n_\Delta^2|^2}{16\pi^2} S(\mathbf{q}_\parallel, k_{fz}, k_{iz}) \quad (2.34)$$

mit der Streufunktion

$$S(\mathbf{q}_\parallel, k_{fz}, k_{iz}) = \left| s_\Delta(\mathbf{q}_\parallel, q_z) + R_f s_\Delta(\mathbf{q}_\parallel, -p_z) + R_i s_\Delta(\mathbf{q}_\parallel, p_z) + R_i R_f s_\Delta(\mathbf{q}_\parallel, -q_z) \right|^2 \quad (2.35)$$

wobei $q_z = k_{fz} - k_{iz}$ und $p_z = k_{fz} + k_{iz}$ bedeuten und $s_\Delta(\mathbf{q})$ den Formfaktor der Inseln

$$s_\Delta(\mathbf{q}_\parallel, \pm k_{fz}, \pm k_{iz}) = \int d\mathbf{r} \exp(-i\mathbf{q}_\parallel \cdot \mathbf{r}_\parallel - i(\pm k_{fz} \pm k_{iz})z) s_\Delta(\mathbf{r}). \quad (2.36)$$

Die vier Terme in Gl. (2.35) repräsentieren vier verschiedene Streuprozesse, die in Abb. 2.7 schematisch dargestellt sind. Der erste Term beschreibt ein direktes Streueignis an einer Insel. Der zweite und dritte Term enthalten die Streuung an einer Insel mit einer vorangegangenen oder nachfolgenden Reflexion an der Substratoberfläche. Der letzte Term bezieht sich auf die Streuung einer reflektierten Welle mit nachfolgender zweiter Reflexion an der Oberfläche.

⁵Grazing Incidence Small Angle X-ray Scattering

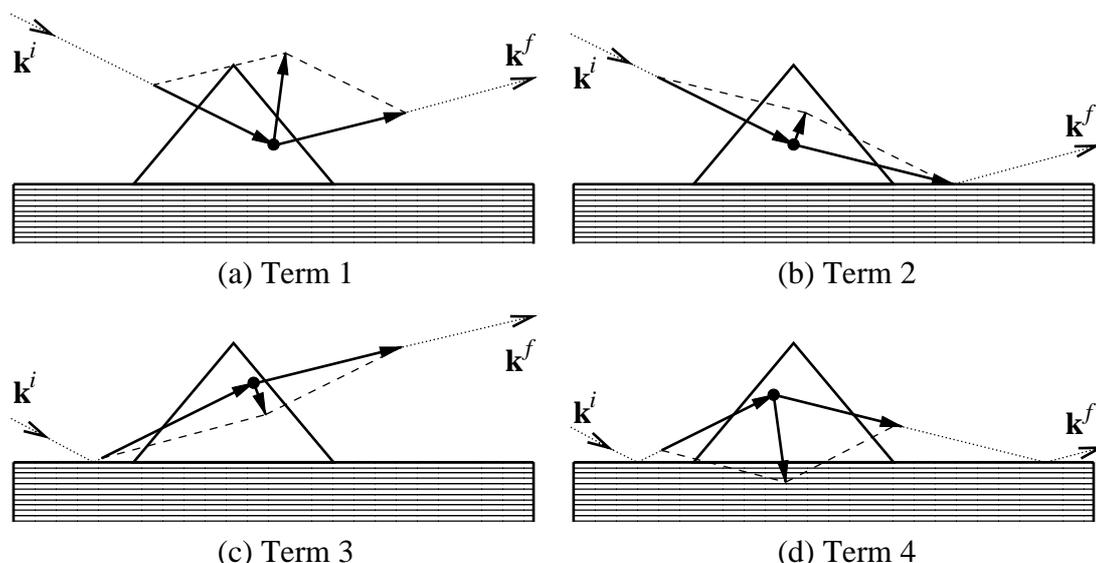


Abb.2.7. Vier mögliche Streuprozesse bei der Streuung von freistehenden Inseln. **a)** Die einfallende Welle wird an der Insel gestreut und gelangt in den Detektor. **b)** Die einfallende Welle wird an der Insel gestreut und anschließend am Substrat reflektiert. **c)** Eine spekulär reflektierte Welle wird an der Insel gestreut und gelangt in den Detektor. **d)** Eine reflektierte Welle wird gestreut und abermals reflektiert. Aus [28].

Eine signifikante Abweichung von einer rein kinematischen Betrachtung der Streuung in Bornscher Näherung (BA), die durch den ersten Term in Gl. (2.35) gegeben ist, besteht nur solange die Reflexionskoeffizienten R_i oder R_f deutlich von Null verschieden sind, d.h. bei Ein- oder Ausfallswinkel nahe am kritischen Winkel α_c für externe Totalreflexion.

Zur Berechnung des Formfaktors von dreiseitigen Germaniumpyramiden auf Si(111) (Kapitel 5) wurden zwei verschiedene Ansätze verfolgt: Ein analytischer Ausdruck für die Fouriertransformation einer Pyramide [29] erlaubt eine numerische Umsetzung mit geringer Rechenzeit. Zunächst wird die Fouriertransformation einer Pyramide mit Spitze im Punkt $(0, 0, 0)$ und den Basisecken in den Punkten $(1, 0, 0)$, $(0, 1, 0)$ und $(0, 0, 1)$ berechnet. Die Kanten der Pyramide haben die Länge 1, die Seiten ihrer Basis die Länge $L = 1/\sqrt{2}$ und ihre Höhe beträgt $h = 1/\sqrt{3}$ (Abb. 2.8a). Der Formfaktor lautet dann:

$$s_{\text{ortho.}}(q_x, q_y, q_z) = \int_0^1 dx \int_0^{1-x} dy \int_0^{1-x-y} dz e^{i(q_x x + q_y y + q_z z)} \quad (2.37)$$

$$= \frac{(e^{iq_x} - 1)(q_z q_y^2 - q_z^2 q_y) + (e^{iq_y} - 1)(q_x q_z^2 - q_x^2 q_z) + (e^{iq_z} - 1)(q_x^2 q_y - q_x q_y^2)}{(q_x - q_y)(q_x - q_z)(q_y - q_z)q_x q_y q_z}$$

Für einen abgeschnittenen Pyramidenstumpf wird der Formfaktor einer kleineren

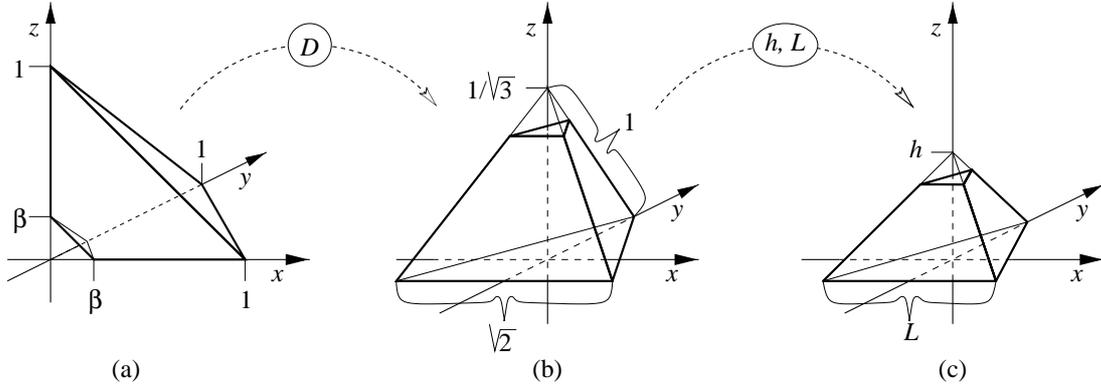


Abb.2.8. Zur Berechnung des Formfaktors von dreiseitigen Pyramidenstümpfen. Abbildung M. Rauscher.

Pyramide mit Kantenlänge $\beta < 1$ abgezogen.

$$s_{\text{Stumpf}}(\mathbf{q}) = s_{\text{ortho.}}(\mathbf{q}) - \beta^3 s_{\text{ortho.}}(\beta\mathbf{q}). \quad (2.38)$$

In einem weiteren Schritt muß die Pyramide aufgestellt werden, so daß ihre Spitze in z -Richtung zeigt. Die Richtung $(\bar{1}, \bar{1}, \bar{1})$ wird durch die Transformation

$$D = \begin{pmatrix} \frac{1}{\sqrt{2}} & -\frac{1}{\sqrt{6}} & -\frac{1}{\sqrt{3}} \\ -\frac{1}{\sqrt{2}} & -\frac{1}{\sqrt{6}} & -\frac{1}{\sqrt{3}} \\ 0 & \frac{1}{\sqrt{6}} & -\frac{1}{\sqrt{3}} \end{pmatrix} \quad (2.39)$$

nach $(0,0,1)$ transformiert (vgl. Abb. 2.8b)), und man erhält für den Formfaktor

$$s_{\uparrow}(\mathbf{q}) = s_{\text{Stumpf}}(D \cdot \mathbf{q}). \quad (2.40)$$

Zuletzt wird der Formfaktor für eine Pyramide der Höhe h und Basislänge L verallgemeinert. Dies erfolgt wiederum durch eine Reskalierung des Koordinatensystems, und man erhält (vgl. Abb. 2.8c))

$$s_{\Delta}(\mathbf{q}) = \frac{\sqrt{3}hL^2}{2} s_{\uparrow} \left(Lq_x/\sqrt{2}, Lq_y/\sqrt{2}, \sqrt{3}hq_z \right). \quad (2.41)$$

Ein alternativer Zugang geht vom analytischen Ausdruck für die Fouriertransformation eines gleichseitigen Dreiecks mit Basislänge L aus

$$s_{tri}(q_x, q_y, L) = \frac{\sqrt{6} \exp(-i\sqrt{3}q_y L/6)}{q_x(q_x^2 - 3q_y^2)} \times \left(q_x \exp\left(\frac{i\sqrt{3}q_y L}{2}\right) - q_x \cos\left(\frac{q_x L}{2}\right) - i\sqrt{3}q_y \sin\left(\frac{q_x L}{2}\right) \right) \quad (2.42)$$

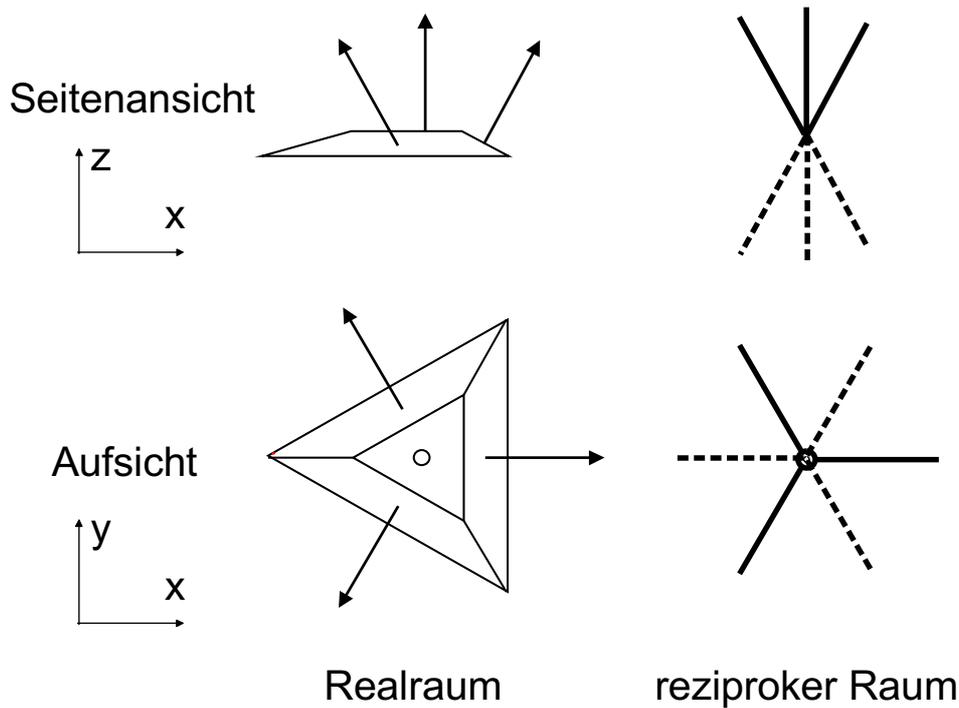


Abb.2.9. Schematische Darstellung der wesentlichen Eigenschaften des Formfaktors von dreiseitigen Pyramiden. Jeder Seitenfläche entspricht im reziproken Raum ein 'Truncation Rod' (CTR), der parallel zur Richtung der Flächennormale der Facette verläuft.

und gelangt über eine numerische Integration über die Koordinate z mit linear abnehmender Basislänge $L(z) = (1 - z/h)L_{\text{bot}}$ zum Formfaktor einer Pyramide [28]:

$$s_{\Delta}(\mathbf{q}) = \int_0^{(1 - \frac{L_{\text{top}}}{L_{\text{bot}}})} dz s_{\text{tri}}(q_x, q_y, L(z)) e^{i q_z z}. \quad (2.43)$$

Die wesentlichen Eigenschaften der Fouriertransformation einer dreiseitigen Pyramide sind in Abb. 2.9 stark vereinfacht dargestellt. Der Formfaktor zeigt in Richtungen, die senkrecht auf jeweils einer Seitenfläche stehen, stachelartige Überhöhungen der Intensität, die in Anlehnung an die stabförmige Intensitätsverteilung bei der Beugung an kristallinen Oberflächen (vgl. Abschnitt 2.6) als (Gitter-)Abbruchstäbe oder auch '(Crystal-)Truncation-Rods' (CTRs) bezeichnet werden⁶. Die Abbruchstäbe der Seitenfacetten und der Boden- und Dachfläche durchstoßen den Ursprung bei $\mathbf{q} = 0$. In der Ebene $q_z = 0$ erhält man

⁶Der Begriff 'CTR' wird etwas ungenau auch für amorphe Objekte verwendet. Dabei hat sich eine Bedeutungsverschiebung vom Abbruch des Kristalls im engeren Sinne zum Abbruch der charakteristischen Formfunktion an den Grenzflächen vollzogen, dem das 'C' jedoch nicht zum Opfer gefallen ist.

eine sechszählige Symmetrie des Formfaktors bezüglich des lateralen Impulsübertrages \mathbf{q}_{\parallel} , in einer Ebene $q_z = \text{const} \neq 0$ ist die Symmetrie des Formfaktors aufgrund der Abbruchstäbe der geneigten Seitenflächen dreizählig. Daher erlaubt die Messung des Formfaktors bei $q_z \neq 0$ die Bestimmung der Orientierung von unidirektional angeordneten Objekten mit dreizähliger Symmetrie auf der Oberfläche⁷.

2.5 Kinematische Röntgenbeugung

In den vorherigen Abschnitten wurde die Streuung an mesoskopischen Strukturen und Objekten betrachtet, deren Ausdehnung sehr viel größer als atomare Abstände im Festkörper sind. Daher konnte die Elektronendichte durch eine kontinuierliche Verteilung beschrieben werden, und eine Unterscheidung zwischen kristalliner und amorpher Struktur spielte bei den betrachteten kleinen Impulsüberträgen keine Rolle.

In diesem Abschnitt behandeln wir einige zentrale Aspekte der Beugung von Röntgenstrahlen an kristalliner Materie. Zunächst werden die Grundzüge der kinematischen Beugungstheorie dargestellt. Diese soll im weiteren Verlauf auf zwei unterschiedliche Problemstellungen angewandt werden. Erstens: Perfekte Kristalle endlicher Größe und wohldefinierter Form, wie wir sie zur Beschreibung der Beugung an sphärischen β -SiC-Ausscheidungen und pyramidenförmigen Germanium-Inseln benötigen werden. Zweitens: Beugung an Kristallen, die Defekte enthalten und daher anstelle eines perfekten Gitters langreichweitig verzerrte Atompositionen aufweisen. Dieses Rüstzeug werden wir zur Analyse der diffusen Streuung in substitutionellen $\text{Si}_{1-x}\text{C}_x$ -Legierungsschichten benötigen.

Strenggenommen erfordert die Beschreibung der Streuprozesse in vergleichsweise perfekten Halbleiterkristallen eine dynamische Theorie, die Vielfachstreuprozesse und Interferenzen zwischen dem einfallenden und dem gebeugten Wellenfeld berücksichtigt. Hierzu werden die Lösungen der Maxwell-Gleichungen für das Wellenfeld im Kristall mit entsprechenden Randbedingungen der Kristalloberfläche gesucht. Für das Verständnis der in dieser Arbeit vorgenommenen Experimente ist eine detaillierte Kenntnis der dynamischen Beugungstheorie jedoch nicht notwendig, da die untersuchten Systeme Versetzungen oder Punktdefekte enthalten und daher keine perfekten Kristalle darstellen. Der interessierte Leser sei auf die Originalarbeiten [31–34] oder auf einige Übersichtsdarstellungen [35,36] verwiesen.

Die kinematische Beugungstheorie⁸ beschränkt sich bei der Berechnung der

⁷Im Falle eines gleichseitigen Prismas erhält man für alle $q_z = \text{const}$ -Ebenen eine sechszählige Symmetrie des Formfaktors, wie das Friedelsche Theorem $S(-\mathbf{q}) = S(\mathbf{q})$ fordert [30]. Durch die Neigung der Seitenflächen erfährt der Formfaktor jedoch eine Brechung der Symmetrie bezüglich q_z , und daher gilt $S(-\mathbf{q}_{\parallel}) \neq S(\mathbf{q}_{\parallel})$.

⁸Dieser Abschnitt folgt der Darstellung in [37].

gebeugten Intensität auf die phasenrichtige Summation aller Streuamplituden. Der Kristall wird als kleine Störung des einfallenden Wellenfeldes betrachtet, Vielfachstreuung und Interferenzen zwischen den Wellenfeldern werden vernachlässigt. Ein Kriterium für die Anwendbarkeit der kinematischen Theorie ist die Ausdehnung L des *kohärent streuenden Bereichs*: Solange diese deutlich kleiner ist als die Extinktionslänge⁹ L_e der einfallenden Strahlung

$$\lambda \ll L \ll L_e \quad (2.44)$$

können dynamische Effekte vernachlässigt werden. Diese Bedingung kann einerseits im Falle kleiner Kristallite wie z.B. Inseln oder Ausscheidungen erfüllt sein. Ebenso kann die Größe des *kohärent streuenden Bereichs* abnehmen, wenn die langreichweitige Ordnung des Kristalls durch Defekte gestört wird.

Wir betrachten nun die gestreute Intensität in Einheiten des Thomson Streuquerschnitts [e.u.] und ohne Polarisationsabhängigkeit¹⁰ für einen Streuvektor $\mathbf{Q} = \mathbf{k}_f - \mathbf{k}_i$.

$$I = \left| \int \rho(\mathbf{r}) \exp(i\mathbf{Q}\mathbf{r}) d\mathbf{r} \right|^2 \quad (2.45)$$

$\rho(\mathbf{r})$ beschreibt die Elektronendichte am Ort \mathbf{r} , die Integration verläuft über den gesamten Kristall. Wir zerlegen die Elektronendichteverteilung in die Beiträge der einzelnen N_0 Atome im Kristall, die sich an den Positionen $(\mathbf{R}_n + \mathbf{u}_n)$, $n = 0, \dots, N_0$ befinden. Hier bezeichnet \mathbf{R}_n eine perfekte reguläre Position im periodischen Gitter und \mathbf{u}_n eine eventuelle Verschiebung von dieser Position. Die Elektronendichteverteilung kann nun dargestellt werden als

$$\rho(\mathbf{r}) = \sum_{n=1}^{N_0} \rho_n(\mathbf{r} - \mathbf{R}_n - \mathbf{u}_n) = \sum_{s=1}^N \sum_{\gamma=1}^{\nu} \rho_{s\gamma}(\mathbf{r} - \mathbf{R}_{s\gamma} - \mathbf{u}_{s\gamma}), \quad (2.46)$$

worin wir den Kristall nochmals in seine N Einheitszellen mit jeweils ν Atomen unterteilt haben. Die Elektronendichteverteilung innerhalb eines Atoms ist im \mathbf{Q} -abhängigen Atomformfaktor $f_n(\mathbf{Q})$ enthalten

$$f_n(\mathbf{Q}) = \int \rho(\mathbf{r}') \exp(i\mathbf{Q}\mathbf{r}') d\mathbf{r}', \quad (2.47)$$

wobei wir $\mathbf{r}' = \mathbf{r} - \mathbf{R}_n - \mathbf{u}_n$ ersetzt haben. Wir erhalten dann für die gestreute Intensität eine Summe über alle Atompositionen:

$$I(\mathbf{Q}) = \left| \sum_{n=1}^{N_0} f_n(\mathbf{Q}) e^{i\mathbf{Q}\mathbf{R}_n} e^{i\mathbf{Q}\mathbf{u}_n} \right|^2 = \left| \sum_{s=1}^N \sum_{\gamma=1}^{\nu} f_{s\gamma}(\mathbf{Q}) e^{i\mathbf{Q}\mathbf{R}_{s\gamma}} e^{i\mathbf{Q}\mathbf{u}_{s\gamma}} \right|^2. \quad (2.48)$$

⁹Eine Abschätzung für die Extinktionslänge ergibt $L_e = v \sin \theta / \lambda r_e f_s(\mathbf{Q})$ mit der Strukturamplitude $f_s(\mathbf{Q})$ [37]. Hier bezeichnet v das Volumen der Einheitszelle.

¹⁰Der Polarisationsfaktor ist von der experimentellen Anordnung abhängig und wird in den entsprechenden Kapiteln diskutiert.

In dieser Schreibweise können wir bequem die Strukturamplitude der s-ten perfekten Einheitszelle

$$f_s(\mathbf{Q}) = \sum_{\gamma=1}^{\nu} f_{\gamma}(\mathbf{Q}) e^{i\mathbf{Q}\mathbf{R}_{\gamma}} \quad (2.49)$$

separieren, worin $\mathbf{R}_{\gamma} = \mathbf{R}_{s\gamma} - \mathbf{R}_{s1}$ die Position der Atome innerhalb der Einheitszelle bezeichnet. Die Intensität des perfekten Kristalls ist dann durch eine Summe über die Elementarzellen

$$I(\mathbf{Q}) = |f_s(\mathbf{Q})|^2 \left| \sum_{s=1}^N e^{i\mathbf{Q}\mathbf{R}_s} \right|^2 \quad (2.50)$$

mit $\mathbf{R}_s = \mathbf{R}_{s1}$ gegeben.

Die quantenmechanische Schalenstruktur (anomale Streuung und Resonanzabsorption bei Anregung der Elektronen aus inneren Schalen) des Atoms berücksichtigen wir, indem wir f_n durch

$$f_n(\mathbf{Q}, \omega) = f_n^0(\mathbf{Q}) + f_n'(\mathbf{Q}, \omega) + i f_n''(\mathbf{Q}, \omega) \quad (2.51)$$

ersetzen, worin $f_n^0(\mathbf{Q})$ durch Gl. (2.47) gegeben ist. f_n' beschreibt den Dispersionsanteil des Atomformfaktors, f_n'' den Absorptionsanteil. Beide Größen sind über Kramers-Kronig-Relationen voneinander abhängig und tabelliert [38].

Wir betrachten nun den Einfluß der äußeren Form eines endlichen Kristalls auf die gestreute Intensität. Der Einfachheit halber gehen wir von einem perfekten Kristall ($\mathbf{u}_n = 0$) mit identischen Atomen ($f_n(\mathbf{Q}) = f(\mathbf{Q})$) und einem Atom pro Einheitszelle aus. Wir können die gestreute Intensität wie folgt darstellen:

$$I(\mathbf{Q}) = |a(\mathbf{Q})|^2 \quad (2.52)$$

$$a(\mathbf{Q}) = f(\mathbf{Q}) \sum_{s=1}^N \exp(i\mathbf{Q}\mathbf{R}_s). \quad (2.53)$$

Eine in diesem Zusammenhang sehr praktische Schreibweise für die Streuamplitude $a(\mathbf{Q})$ ist die Darstellung als Produkt aus einem unendlich ausgedehnten periodischen Kristall

$$Y^{\infty}(\mathbf{r}) = \sum_{s=-\infty}^{s=+\infty} \delta(\mathbf{r} - \mathbf{R}_s) \quad (2.54)$$

mit $\mathbf{R}_s = s_1 \mathbf{a}_1 + s_2 \mathbf{a}_2 + s_3 \mathbf{a}_3$ und $s_1, s_2, s_3 = -\infty, \dots, +\infty$ und einer charakteristischen Formfunktion $s(\mathbf{r})$, die innerhalb des endlichen Kristalls gleich 1 ist und außerhalb 0. Diese Schreibweise erlaubt dann eine Integration über den gesamten Raum

$$a(\mathbf{Q}) = f(\mathbf{Q}) \int Y^{\infty}(\mathbf{r}) s(\mathbf{r}) \exp(i\mathbf{Q}\mathbf{R}_s) d\mathbf{r}. \quad (2.55)$$

Wir erhalten damit die Fouriertransformation eines Produkts aus unendlichem Gitter und charakteristischer Funktion, welche bekanntermaßen die Faltung der einzelnen Fouriertransformierten von Gitter und Form ist:

$$a(\mathbf{Q}) = \frac{f(\mathbf{Q})}{(2\pi)^3} \int Y^\infty(\mathbf{k}) s(\mathbf{Q} - \mathbf{k}) d\mathbf{k} \quad (2.56)$$

mit

$$s(\mathbf{Q}) = \int s(\mathbf{r}) \exp(i\mathbf{Q}\mathbf{r}) d\mathbf{r}. \quad (2.57)$$

Es kann leicht gezeigt werden, daß $Y^\infty(\mathbf{k})$ eine einfache Summe über alle reziproken Gitterpunkte $G_{hkl} = h\mathbf{b}_1 + k\mathbf{b}_2 + l\mathbf{b}_3$

$$Y^\infty(\mathbf{k}) = \frac{8\pi^3}{v} \sum_G \delta(\mathbf{k} - \mathbf{G}) \quad (2.58)$$

mit dem Volumen v der Einheitszelle und den Basisvektoren des reziproken Gitters

$$\mathbf{b}_1 = 2\pi \frac{\mathbf{a}_2 \times \mathbf{a}_3}{\mathbf{a}_1 \cdot \mathbf{a}_2 \times \mathbf{a}_3}, \quad \mathbf{b}_2 = 2\pi \frac{\mathbf{a}_3 \times \mathbf{a}_1}{\mathbf{a}_1 \cdot \mathbf{a}_2 \times \mathbf{a}_3}, \quad \mathbf{b}_3 = 2\pi \frac{\mathbf{a}_1 \times \mathbf{a}_2}{\mathbf{a}_1 \cdot \mathbf{a}_2 \times \mathbf{a}_3} \quad (2.59)$$

ist. Damit erhalten wir für die Streuamplitude

$$a(\mathbf{Q}) = \frac{1}{v} \sum_G s(\mathbf{Q} - \mathbf{G}). \quad (2.60)$$

Bildlich gesprochen finden wir an jedem reziproken Gitterpunkt den Formfaktor $s(\mathbf{Q})$ aufgehängt. Für einen Kristall, der ausreichend viele Atome enthält, d.h. dessen Ausdehnung beträchtlich größer ist als die Abstände seiner Atome im Gitter, ist $s(\mathbf{Q})$ für einen Impulsübertrag \mathbf{Q} in der Größenordnung des reziproken Gitterparameters sehr klein. Wir können daher die gemischten Terme in Gl. (2.52) vernachlässigen und erhalten

$$I(\mathbf{Q}) = \frac{f(\mathbf{Q})^2}{v^2} \sum_G |s(\mathbf{Q} - \mathbf{G})|^2. \quad (2.61)$$

In der Umgebung eines jeden reziproken Gitterpunktes \mathbf{G}_{hkl} zeigt die gestreute Intensität die Fouriertransformation der äußeren Form des Kristalls. Röntgenstreuung in Vorwärtsrichtung, also Kleinwinkelstreuung in der Umgebung des (000)-Reflexes, ist nicht auf die kristallinen Eigenschaften empfindlich, hier beobachtet man nur den Formfaktor eines Kristalls oder amorphen Festkörpers. Die Röntgenkleinwinkelstreuung wurde im vorausgegangenen Abschnitt für den Fall von facettierten Pyramiden behandelt.

Ein weiterer wichtiger Spezialfall ist der Formfaktor eines sphärischen Kristalls. Wir integrieren Gl. (2.57) über das Volumen einer Kugel mit Radius R und erhalten [39, 40]

$$s(\mathbf{Q}) = \frac{4\pi}{3} R^3 \left[3 \frac{\sin qR - qR \cos qR}{(qR)^3} \right] \quad (2.62)$$

mit $Q = |\mathbf{Q}|$.

In den folgenden Abschnitten wird auf zwei weitere Spezialfälle eingegangen. Experimentell besonders wichtig ist der Effekt der Probenoberfläche, welche in jedem Streuexperiment sogenannte 'Crystal-Truncation-Rods' (Kristallabbruchstäbe) hervorruft. Diese werden an koplanaren Volumenbraggreflexen beobachtet, sind aber auch für das Verständnis der Beugung unter streifendem Ein- und Ausfall grundlegend.

2.6 Asymptotische Bragg-Streuung

Der Effekt einer Kristalloberfläche auf die gestreute Intensität ist bereits von M. von Laue [41] untersucht worden. Die Bezeichnung 'Crystal-Truncation-Rod' (Gitterabbruchstab) geht auf I.K. Robinson [42] zurück. Im oben entwickelten Formalismus läßt sich die Oberfläche eines halbinendlichen Kristalls durch das Produkt

$$Y^\infty(\mathbf{r}) \Theta(z) \quad (2.63)$$

mit der Sprungfunktion

$$\Theta(z) = \begin{cases} 1 & \text{für } z \leq 0 \\ 0 & \text{für } z > 0 \end{cases} \quad (2.64)$$

darstellen. Die Abhängigkeit der gestreuten Intensität von der Impulsübertragskomponente Q_z senkrecht zur Oberfläche erhält man durch die Fouriertransformation

$$\begin{aligned} s(Q_z) &= \lim_{l \rightarrow \infty} \int_{-l}^0 \exp(iQ_z z) dz \\ &= \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \frac{1}{iQ_z} \lim_{l \rightarrow \infty} (1 - e^{-iQ_z l}). \end{aligned} \quad (2.65)$$

Die Intensität enthält einen beliebig schnell oszillierenden Beitrag,

$$I_{\text{CTR}}(Q_z) \propto |s(Q_z - G_z)|^2 = \frac{1}{\pi} \frac{1}{(Q_z - G_z)^2} \lim_{l \rightarrow \infty} (1 + \cos Q_z l) \quad (2.66)$$

der aufgrund der in jedem wirklichen Experiment endlichen Auflösung zu $1/2$ gemittelt werden kann. Damit erhalten wir eine q_z^{-2} -Abhängigkeit mit der vertikalen Komponente q_z des Abstands $\mathbf{q} = \mathbf{Q} - \mathbf{G}$ vom nächsten reziproken Gitterpunkt \mathbf{G} .

Ein alternativer Zugang [43] geht von einem Gitter mit Netzebenen parallel zur Oberfläche aus. Es sei \mathbf{a}_3 der Basisvektor senkrecht zur Oberfläche. Wir können dann die Streuamplitude durch eine geometrische Reihe ausdrücken,

$$\begin{aligned} a_{\text{CTR}}(\mathbf{Q}) &= \sum_{j=0}^{\infty} \exp[-(i\mathbf{Q} \cdot \mathbf{a}_3 + \epsilon)j] \\ &= \frac{1}{1 - \exp(-i\mathbf{Q} \cdot \mathbf{a}_3 - \epsilon)} \end{aligned} \quad (2.67)$$

in der wir die Absorption durch ϵ eingeführt haben, um die Konvergenz der Reihe sicherzustellen. Im Grenzfall $\epsilon \rightarrow 0$ erhalten wir

$$\begin{aligned} I_{\text{CTR}}(\mathbf{Q}) &= \left| \frac{1}{1 - \exp(-i\mathbf{Q} \cdot \mathbf{a}_3)} \right|^2 \\ &= \frac{1}{4 \sin^2\left(\frac{\mathbf{Q} \cdot \mathbf{a}_3}{2}\right)}. \end{aligned} \quad (2.68)$$

Der Abfall der Intensität entlang des 'Crystal-Truncation-Rod' (CTR) wird durch eine statistische Rauigkeit der Oberfläche modifiziert. Ein einfaches Modell wurde dazu von Robinson vorgeschlagen [42]. Wir beginnen mit einem vollständigen halbunendlichen Kristall und fügen weitere Netzebenen hinzu, die nur teilweise mit Atomen besetzt sind: Die erste Lage enthält einen Anteil β ($\beta < 1$), die zweite β^2 usw. Die Intensität des CTR lautet dann

$$I(\mathbf{Q}) = I_{\text{CTR}}(\mathbf{Q}) \frac{(1 - \beta)^2}{1 + \beta^2 - 2\beta \cos(\mathbf{Q} \cdot \mathbf{a}_3)}. \quad (2.69)$$

Die Belegungswahrscheinlichkeit β ist mit der RMS-Rauigkeit der Oberfläche über die Beziehung

$$\sigma_{\text{RMS}} = \frac{\beta^{1/2}}{(1 - \beta)} |\mathbf{a}_3| \quad (2.70)$$

verknüpft.

Einen weiteren starker Effekt auf den Intensitätsverlauf des CTR ergibt sich aus der Relaxation der oberflächennahen Netzebenen: Diese können einen veränderten Gitterparameter senkrecht zur Oberfläche aufweisen, der sich in einer Asymmetrie der Intensitätsverteilung niederschlägt. Wir betrachten als Beispiel die Relaxation der letzten Netzebene, die im Unterschied zum Gitterparameter

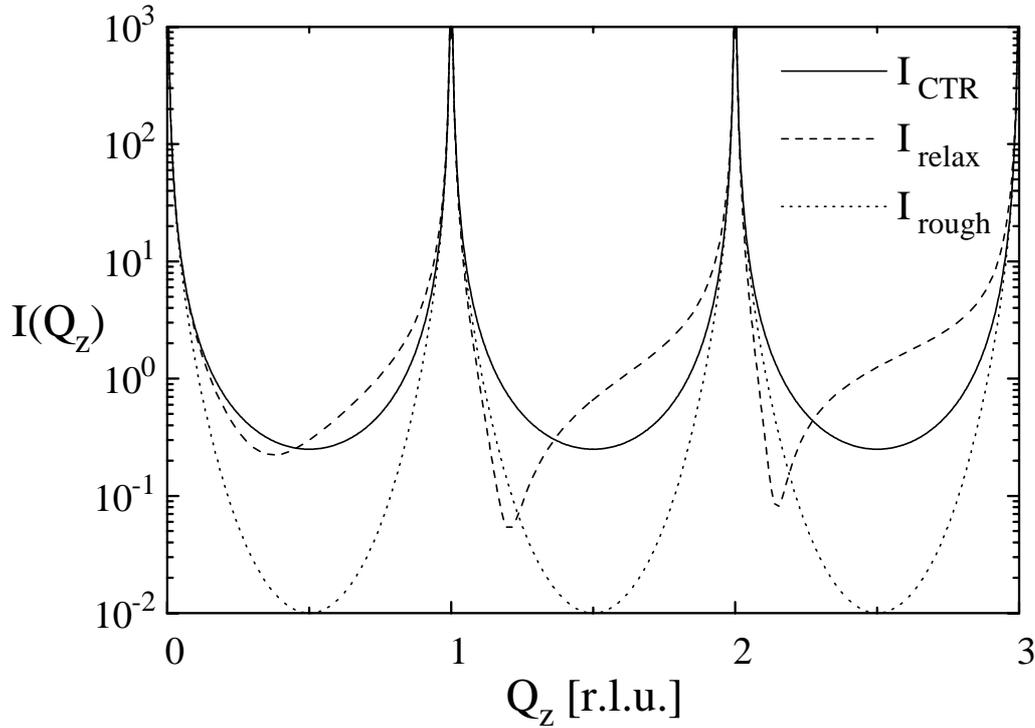


Abb. 2.10. Berechnung der Intensität entlang eines Gitterabbruchstabes (CTR) für einen perfekten halbinendlichen Kristall mit Gitterkonstante $a = 1 \text{ \AA}$ (durchgezogen), eine Relaxation der Oberfläche mit einer Verschiebung der obersten Gitterebene um 10% nach außen (gestrichelt) und eine raue Oberfläche (punktiert) mit einer RMS-Rauhigkeit $\sigma = a$ ($\beta = 0.382$).

$|\mathbf{a}_3|$ einen Abstand $d \neq |\mathbf{a}_3|$ vom restlichen perfekten Kristall habe. Die Intensität ist dann durch

$$I(\mathbf{Q}) = |I_{\text{CTR}}(\mathbf{Q}) + \exp(iQ_z d)|^2 \quad (2.71)$$

gegeben. In Abbildung 2.10 ist der Verlauf der berechneten Intensität entlang Q_z dargestellt.

Wie gezeigt wurde, ist der Intensitätsverlauf zwischen den Braggreflexen sehr empfindlich auf Eigenschaften der Oberfläche. CTR-Streuung ist daher eine oberflächenempfindliche Methode, die grundsätzlich ohne streifende Ein- und Ausfallwinkel Zugang zu Rauigkeit und Oberflächenrelaxation an kristallinen Grenzflächen ermöglicht.

2.7 Röntgenbeugung unter streifendem Einfall

Wir betrachten nun die Beugung an Gitternetzebenen, die senkrecht zur Kristalloberfläche stehen [44, 45] (vgl. Abb. 2.11). Der entsprechende reziproke Gitterpunkt $\mathbf{G} = \mathbf{G}_{\parallel} + \mathbf{G}_{\perp}$ hat daher eine verschwindende Komponente senkrecht zur

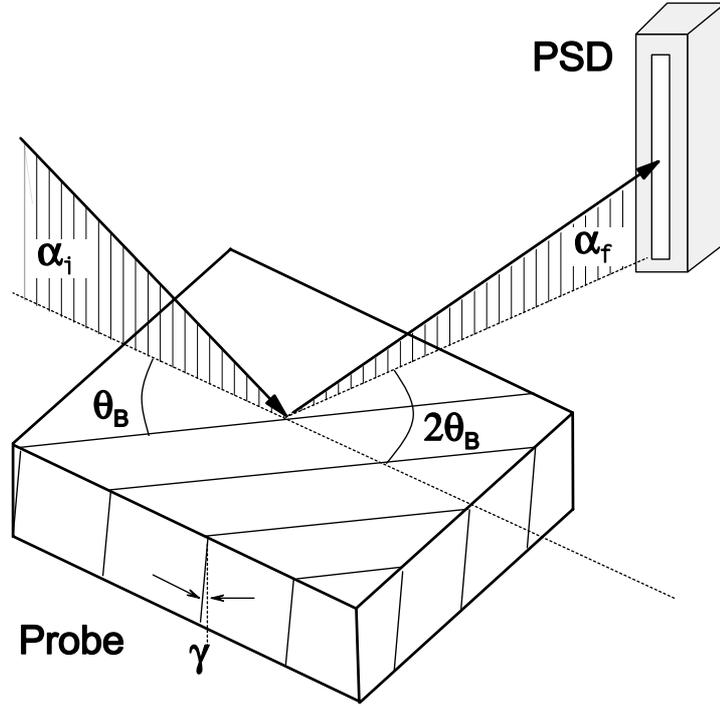


Abb.2.11. Streugeometrie bei Beugung unter streifendem Ein- und Ausfallswinkeln. Die einfallende Röntgenwelle schließt mit den Netzebenen den Braggwinkel θ_B ein. Die gebeugte Welle wird unter dem Streuwinkel $2\theta_B$ detektiert. Die Netzebenen stehen nahezu senkrecht zur Oberfläche, in der Praxis sind sie infolge des 'miscut' γ leicht verkippt.

Oberfläche:

$$\mathbf{G}_\perp = 0 \quad (2.72)$$

Der Braggreflex wird dazu unter streifenden Ein- und Ausfallswinkeln α_i und α_f angeregt (GID¹¹). Daher müssen Brechungseffekte berücksichtigt werden [46, 47]. Die Berechnung in der 'Distorted-Wave-Born-Approximation' (DWBA) ergibt für die Streuamplitude in Analogie zu Gl. (2.67)

$$\begin{aligned} I(\mathbf{Q}) &= |a(\mathbf{Q}_\parallel, Q'_z)|^2 = |T_i|^2 |T_f|^2 S(\mathbf{Q}') \\ &= |T_i|^2 |T_f|^2 \left| \int_{-\infty}^{\infty} d^2\mathbf{r}_\parallel \int_{-\infty}^0 dz \rho(\mathbf{r}_\parallel, z) e^{i\mathbf{Q}_\parallel \mathbf{r}_\parallel} e^{iQ'_z z} \right|^2 \\ &= |T_i|^2 |T_f|^2 |f_s(\mathbf{G})|^2 \delta(\mathbf{Q}_\parallel - \mathbf{G}) \left| \sum_{j=0}^{\infty} \exp(-iQ'_z a_z) j \right|^2 \\ &= |T_i|^2 |T_f|^2 |f_s(\mathbf{G})|^2 \delta(\mathbf{Q}_\parallel - \mathbf{G}) \frac{1}{|1 - \exp(-iQ'_z a_z)|^2} \end{aligned} \quad (2.73)$$

¹¹Grazing Incidence Diffraction

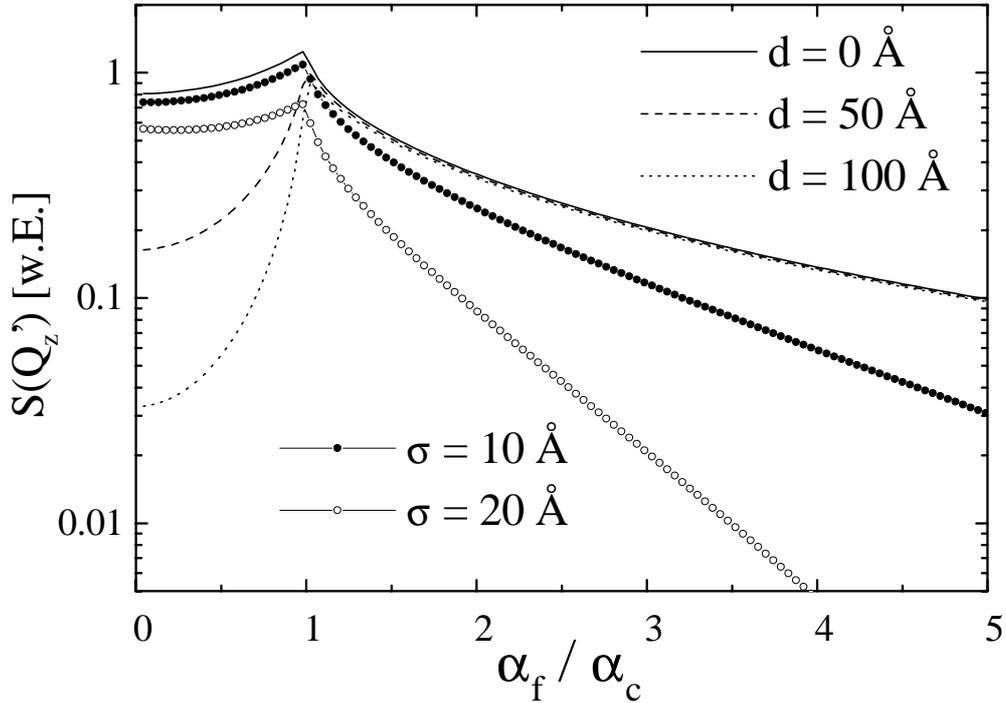


Abb.2.12. Berechnete Streufunktion $S(Q')$ für den Si(220)-Oberflächenreflex für $\text{Cu}_{K\alpha}$ -Strahlung. Als Einfallswinkel wurde $\alpha_i = 2\alpha_c$ angenommen. Gezeigt ist der Effekt einer toten Deckschicht der Dicke d für eine ideal glatte Grenzfläche und der Einfluß der Grenzflächenrauigkeit σ für $d = 0$. Eine Deckschicht bewirkt eine Unterdrückung der gestreuten Intensität für kleine Ausfallswinkel $\alpha_f < \alpha_c$, Rauigkeit einen rascheren Abfall für große α_f .

mit den Transmissionskoeffizienten $T_{i,f}$ nach Gl. (2.8) für die ein- und ausfallende Welle \mathbf{k}_i und \mathbf{k}_f und dem *komplexen* vertikalen Impulsübertrag Q'_z im Medium. Die Streufunktion $S(Q')$ zeigt ein Maximum am kritischen Winkel $\alpha_f = \alpha_c$, das durch die Transmissionskoeffizienten zusätzlich betont wird.

In diesem Formalismus kann der Einfluß einer nicht streuenden Deckschicht aus p Atomlagen sehr einfach beschrieben werden, indem wir die geometrische Reihe in der obigen Gleichung erst mit $j = p$ beginnen [48]:

$$\begin{aligned}
 \left| \sum_{j=p}^{\infty} \exp(-iQ'_z a_z j) \right|^2 &= \left| \sum_{j=0}^{\infty} \exp(-iQ'_z (a_z j + a_z p)) \right|^2 \\
 &= \left| e^{-iQ'_z a_z p} \sum_{j=0}^{\infty} \exp(-iQ'_z a_z j) \right|^2 \\
 &= \exp\left(\frac{-2a_z p}{\Lambda}\right) \left| \frac{1}{1 - \exp(-iQ'_z a_z)} \right|^2.
 \end{aligned} \tag{2.74}$$

Die gestreute Intensität wird exponentiell mit der inversen Streutiefe $1/\Lambda$ gedämpft. Im Gegensatz zur asymptotischen Braggstreuung hat eine 'tote' Deckschicht einen sehr großen Effekt auf das α_f -Profil der gestreuten GID-Intensität: Für Ausfallswinkel α_f unterhalb des kritischen Winkels wird die Streufunktion $S(\mathbf{Q}')$ deutlich unterdrückt. Ein tote Deckschicht kann aus einer amorphen Oxidschicht oder auch aus einer kristallinen Schicht mit verschiedener lateraler Gitterkonstante bestehen.

Großen Einfluß auf das α_f -Profil hat auch die Rauigkeit der Oberfläche. Dabei muß unterschieden werden zwischen der Oberflächenrauigkeit einer eventuell amorphen Deckschicht, die die Transmissionskoeffizienten nach Gl. (2.19) modifiziert, und der Grenzflächenrauigkeit des Kristalls, die die Streufunktion $S(\mathbf{Q})$ verändert. Für ein Gaußsches Grenzflächenprofil erhält man [49]

$$S(\mathbf{Q})_{\text{rauh}} = S(\mathbf{Q}) \left| \exp(-Q_z Q'_z \sigma^2) \right|^2. \quad (2.75)$$

Eine alternative Darstellung für die Streufunktion ist durch die Integration über das vertikale Profil der Suszeptibilität $\chi_G(z)$ für die Braggreflexion $\mathbf{Q}=\mathbf{G}$ [49]

$$S(\mathbf{Q}) = \left| \int_{-\infty}^0 \chi_G(z) \exp(i(Q'_z)z) \right|^2 dz \quad (2.76)$$

mit

$$\chi_G(z) = -\frac{\lambda^2 r_e}{\pi v} f_s(\mathbf{G}) \quad (2.77)$$

und der Strukturamplitude $f_s(\mathbf{G})$ aus Gl. (2.49) und dem Volumen v der Einheitszelle. In diesem Formalismus können pseudomorphe Schichtsysteme aus unterschiedlichem Material oder eine vertikale Variation der Kristallqualität bequem beschrieben werden.

Eine Reihe von weiteren Realstruktureffekten wie makroskopische Welligkeit, Fehlorientierung der Oberfläche zu den Netzebenen, Mosaikverbreiterung und Dickenschwankungen einer Schicht können auf einfache Weise in die kinematische Theorie aufgenommen werden [49].

2.8 Röntgenstreuung an Kristallen mit Defekten

Kristalldefekte haben einen doppelten Effekt auf das Gitter und die Streuung von Röntgenwellen: Zum einen verändern sie lokal die Streustärke, wie z.B. durch Leerstellen an regulären Gitterplätzen oder durch Fremdatome an Gitter- oder Zwischengitterplätzen. Zum anderen führen sie zumeist zu einer starken lokalen

Verzerrung des Gitters, die durch die elastische Kopplung der Atome ein langreichweitiges Verzerrungsfeld hervorruft. Da die periodische Ordnung des Gitters durch das Verzerrungsfeld gestört ist, geht zwischen den δ -förmigen Braggreflexen die perfekte destruktive Interferenz der Röntgenwellen verloren, und man beobachtet diffuse Streuung.

In diesem Abschnitt wird die Auswirkung von Defekten auf die Streuung von Röntgenstrahlen an unendlich ausgedehnten Kristallen diskutiert. Die hier vorgestellten Ergebnisse sind für die Untersuchungen an substitutionellen $\text{Si}_{1-x}\text{C}_x$ -Epischichten von Bedeutung (Kapitel 4). Dabei beschränkt sich die Diskussion auf sogenannte Defekte erster Art, die die langreichweitige Ordnung und die δ -förmigen Braggreflexe erhalten.¹² In diese Klasse fallen Punktdefekte und Ansammlungen von Defekten wie sphärische Cluster oder Versetzungsringe. Zunächst wird das Verzerrungsfeld von Punktdefekten beschrieben. Darauf wird deren Einfluß auf die Intensität der Braggreflexe dargestellt. Es folgt eine Diskussion der reflexnahen diffusen (Huang-) Streuung. Die Ansammlung von Punktdefekten wird in der Näherung von Stokes und Wilson beschrieben. Auf diese allgemeinen Betrachtungen für Volumenkristalle folgt eine Diskussion der diffusen Streuung unter streifenden Ein- und Ausfallswinkeln und von Defekten in dünnen oberflächennahen Schichten.

2.8.1 Punktdefekte und deren Verzerrungsfeld

Wir betrachten eine (zufällige) Verteilung von Punktdefekten an Orten \mathbf{R}_t , die durch die Besetzungszahl c_t beschrieben werden:

$$c_t = \begin{cases} 1 & \text{falls ein Defekt am Platz ist} \\ 0 & \text{falls nicht} \end{cases} . \quad (2.78)$$

Die Defektkonzentration c ist durch den Mittelwert $\langle c_t \rangle$ gegeben. Wir nehmen an, daß sich die Verschiebungen addieren, die durch Defekte an verschiedenen Plätzen hervorgerufen werden (Superposition der Verzerrungsfelder). Die Verschiebung \mathbf{u}_n des Atoms n ist dann durch die Summe über alle möglichen Defektplätze

$$\mathbf{u}_n = \sum_t c_t \mathbf{u}_{nt} \quad (2.79)$$

gegeben.

Das Verschiebungsfeld \mathbf{u}_{nt} eines Defekts am Ursprung $\mathbf{R}_t = 0$ kann mit Hilfe von virtuellen Kanzaki-Kräften $\mathbf{F}_{n't}$ [50] beschrieben werden, die an den regulären Positionen n' des ungestörten Gitters angreifen. Die Komponenten $u_i^{n't}$

¹²In diese Klasse fallen nach Krivoglaz [37] Defekte, deren Verzerrungsfeld mindestens wie $1/R^2$ mit dem Abstand abfällt. Defekte, deren Verzerrungsfeld langsamer als $1/R^{3/2}$ zerfällt (Versetzungslinien, Stapelfehler usw.), führen zu einer Verbreiterung der Reflexe, die strenggenommen nicht mehr von diffuser Streuung unterscheidbar sind.

der Verschiebung \mathbf{u}_{nt} sind gegeben durch

$$u_i^{nt} = \sum_{n'}^{N_0} \sum_{j=1}^3 G_{ij}^{nn'} F_j^{n't} \quad (2.80)$$

mit der Greenschen Funktion des Gitters $G_{ij}^{nn'}$. Für große Abstände $\mathbf{R} = \mathbf{R}_n - \mathbf{R}_{n'}$ kann für $G_{ij}^{nn'}$ die elastische Greensche Funktion des Kontinuums

$$G_{ij}(\mathbf{R}) = \frac{1}{|\mathbf{R}|} g_{ij}(\hat{\mathbf{R}}) \quad \text{mit} \quad \hat{\mathbf{R}} = \frac{\mathbf{R}}{|\mathbf{R}|} \quad (2.81)$$

ersetzt werden. Eine Multipolentwicklung ergibt dann für das Verschiebungsfeld $\mathbf{u}(\mathbf{R})$

$$u_i(\mathbf{R}) = - \sum_{j,k=1}^3 \frac{\partial}{\partial R_k} G_{ij}(\mathbf{R}) P_{jk} \quad (2.82)$$

mit dem *Dipolkrafttensor* P_{jk} , der das erste nicht verschwindende Moment des Kanzaki-Kraftfelds darstellt:

$$P_{jk} = \sum_{n'} R_k^{n'} F_j^{n't} = P_{kj}. \quad (2.83)$$

Wegen der $1/R$ Abhängigkeit der Greenschen Funktion (2.81) fällt das Verschiebungsfeld eines Punktdefektes wie $1/R^2$ mit dem Abstand vom Defekt ab.

Aus dem Dipolkrafttensor und dem Tensor der elastischen Koeffizienten S_{ijkl} erhält man die mittleren Verzerrungen $\bar{\epsilon}_{ij}$ des Gitters

$$\bar{\epsilon}_{ij} = \frac{c}{v} \sum_{k,l} S_{ijkl} P_{kl}, \quad (2.84)$$

und die entsprechende Verschiebung der Braggreflexe $\delta\mathbf{G}$ lautet

$$\delta G_i = - \sum_j \bar{\epsilon}_{ij} G_j^0 = - \frac{c}{v} \sum_{k,l,j} S_{ijkl} P_{kl} G_j^0. \quad (2.85)$$

In einem *kubischen* Kristall ist die relative Volumenänderung $\Delta V/V = \sum_i \bar{\epsilon}_{ii}$ durch die Spur des Dipolkrafttensors gegeben:

$$\frac{\Delta V}{V} = \frac{3\Delta a}{a} = \frac{c \sum_i P_{ii}}{v(C_{11} + 2C_{12})}. \quad (2.86)$$

Die Größe $V_{rel} = \sum_i P_{ii}/(C_{11} + 2C_{12})$ wird auch als *Relaxationsvolumen* des Defekts bezeichnet. (Nach [51].)

2.8.2 Streuung an Punktdefekten: Braggreflexe

Aus Gl. (2.48) für *eine* gegebene Defektkonfiguration erhält man mit (2.79) für die gesamte Streuintensität

$$I(\mathbf{Q}) = \sum_{s,s'} f_s f_{s'}^* e^{i\mathbf{Q}(\mathbf{R}_s - \mathbf{R}_{s'})} \times \prod_t \exp(i\mathbf{Q}(\mathbf{u}_{st} - \mathbf{u}_{s't})c_t). \quad (2.87)$$

Um die Intensität in einem Streuexperiment zu erhalten, müssen wir über alle möglichen Defektkonfigurationen mitteln. Der Mittelwert einer jeden Exponentialfunktion im Produkt ist

$$\langle \exp(i\mathbf{Q}(\mathbf{u}_{st} - \mathbf{u}_{s't})c_t) \rangle = c \exp(i\mathbf{Q}(\mathbf{u}_{st} - \mathbf{u}_{s't})) + 1 - c. \quad (2.88)$$

Damit erhalten wir für das Produkt

$$\left\langle \prod_t \right\rangle = \exp \sum_t \ln[1 + c(e^{i\mathbf{Q}(\mathbf{u}_{st} - \mathbf{u}_{s't})} - 1)] = e^{-T_{s,s'}}. \quad (2.89)$$

Für kleine Defektkonzentrationen $c \ll 1$ können wir den Logarithmus bis zur ersten Ordnung entwickeln und erhalten

$$T_{s,s'} = c \sum_t (1 - e^{i\mathbf{Q}(\mathbf{u}_{st} - \mathbf{u}_{s't})}). \quad (2.90)$$

Der dominierende Beitrag zur kohärenten Braggstreuung stammt von Zellen, die jeweils weit voneinander entfernt sind und deren Verschiebungen nicht miteinander korreliert sind. Daher kann über beide Summen in Gl. (2.87) getrennt gemittelt werden [52]:

$$I(\mathbf{Q})_{\text{Bragg}} = \left| \left\langle \sum_s f_s(\mathbf{Q}) e^{i\mathbf{Q}\mathbf{R}_s} e^{i\mathbf{Q}\mathbf{u}_s} \right\rangle \right|^2 \quad (2.91)$$

$$I(\mathbf{Q})_{\text{Bragg}} = |f_s(\mathbf{Q})|^2 \exp(-2L) 8\pi^3 \frac{N}{v} \sum_{\mathbf{G}^0} \delta(\mathbf{Q} - \mathbf{G}^0 - \delta\mathbf{G}). \quad (2.92)$$

Dieses Ergebnis unterscheidet sich vom idealen (unendlichen) Kristall durch den veränderten reziproken Gitterpunkt $\mathbf{G} = \mathbf{G}^0 - \delta\mathbf{G}$, der die Dehnung oder Kontraktion des mittleren Gitters beschreibt. Die Intensität der Braggreflexe ist durch den statischen Debye-Waller-Faktor $\exp(-2L)$ mit

$$L = c \sum_t (1 - \cos \mathbf{Q}\mathbf{u}_{0t}) \quad \text{für} \quad c \ll 1 \quad (2.93)$$

vermindert. Dieser beschreibt den Anteil an Gitterplätzen, deren Streuwellen nicht mehr in Phase mit dem mittleren Gitter sind. Im Gegensatz zum thermischen DWF können in der Nähe eines Defekts sehr große Verschiebungen \mathbf{u}_t auftreten, so daß die Cosinus-Funktionen nicht entwickelt werden können: Der statische DWF ist daher im allgemeinen nicht proportional zu Q^2 [53].

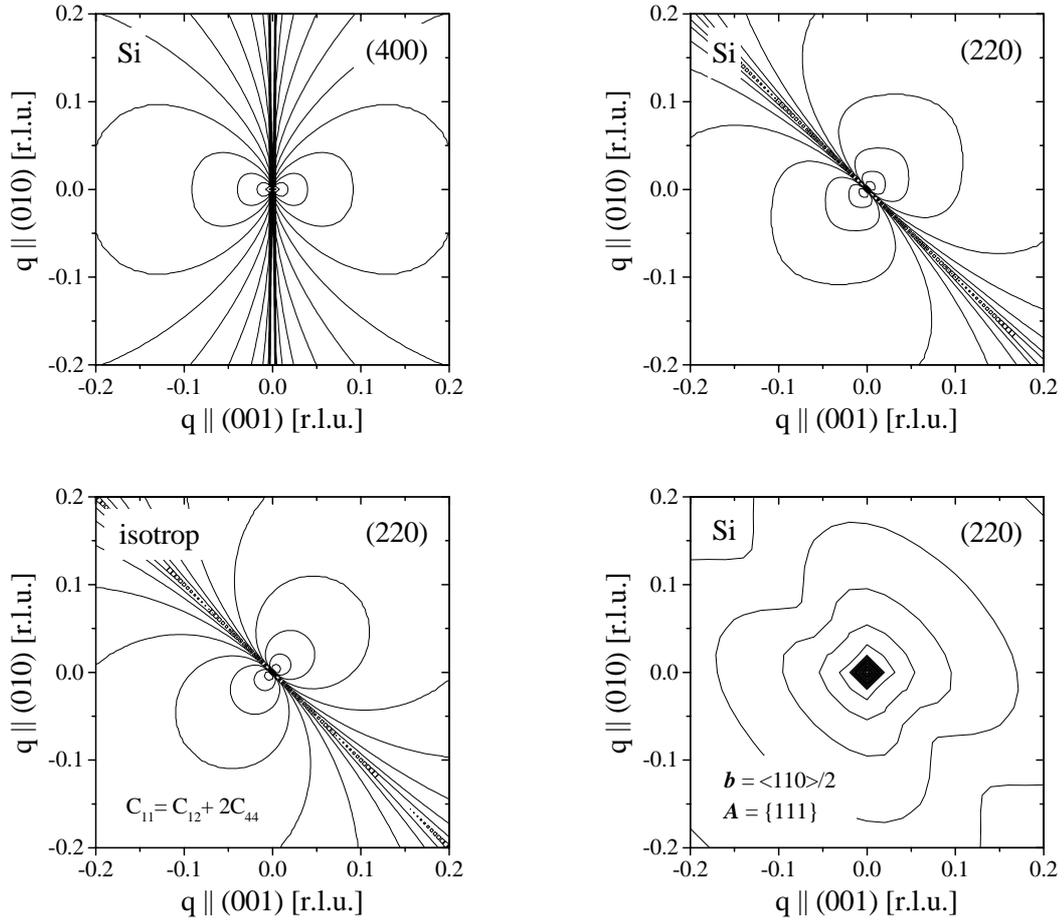


Abb.2.13. Winkelverteilung der diffusen Streuung berechnet für Volumenreflexe in Si. **Oben:** Kubischer Defekt in Silizium. Aufgrund der anisotropen elastischen Konstanten sind die Huang-Kugeln deformiert. **Unten links:** Pseudo-Si mit isotropen elastischen Konstanten. Die Kugeln sind perfekt. **Unten rechts:** Huang-Streuung von einem Versetzungsring mit Burgers-Vektor $\mathbf{b} = 1/2\langle 110 \rangle$ in einer $\{111\}$ -Ebene (vgl. Abschnitt 2.8.5).

2.8.3 Reflexnahe diffuse Streuung (Huang-Streuung)

Indem wir den kohärenten Anteil (2.91) von der gesamten Streuintensität (2.87) abziehen, erhalten wir den Beitrag der diffusen Streuung:

$$I(\mathbf{Q})_{\text{diff}} = \sum_{s s'} \left[\left\langle f_s f_{s'}^* e^{i\mathbf{Q}(\mathbf{R}_s - \mathbf{R}_{s'})} e^{i\mathbf{Q}(\mathbf{u}_s - \mathbf{u}_{s'})} \right\rangle - \left\langle f_s e^{i\mathbf{Q}\mathbf{R}_s} e^{i\mathbf{Q}\mathbf{u}_s} \right\rangle \left\langle f_{s'} e^{i\mathbf{Q}\mathbf{R}_{s'}} e^{i\mathbf{Q}\mathbf{u}_{s'}} \right\rangle \right] \quad (2.94)$$

Für kleine Defektkonzentrationen kann in der sog. Einzeldefektnäherung (ein Defekt im Ursprung) angenommen werden, daß die Streubeiträge der Defekte inkohärent addieren, da die Streuwellen von unkorreliert zufallsverteilten Defekten

außer Phase sind:

$$I(\mathbf{Q})_{\text{diff}} = cN \left| f_D(\mathbf{Q}) + f_s(\mathbf{Q}) \sum_s \exp(i\mathbf{Q}\mathbf{R}_s) \{ \exp(i\mathbf{Q}\mathbf{u}_{s0}) - 1 \} \right|^2. \quad (2.95)$$

Der Ausdruck im Betragsquadrat wird auch als Streufunktion des Defekts bezeichnet. Er enthält die Laue-Streuung des Defekts $f_D(\mathbf{Q})$ mit

$$f_D(\mathbf{Q}) = \begin{cases} f_I(\mathbf{Q}) e^{i\mathbf{Q}\mathbf{R}_i} & \text{interstitieller Defekt (Zwischengitterplatz)} \\ f_S(\mathbf{Q}) - f_n(\mathbf{Q}) & \text{substitutionelles Fremdatom} \\ -f_n(\mathbf{Q}) & \text{Leerstelle.} \end{cases} \quad (2.96)$$

Im folgenden betrachten wir den reflexnahen Bereich der diffusen Streuung bei kleinen Abständen $\mathbf{q} = \mathbf{Q} - \mathbf{G}$ vom reziproken Gitterpunkt. Dieser Bereich wird durch die langreichweitigen Verzerrungen im großen Abstand vom Defekt dominiert. Das Verzerrungsfeld kann hier durch Gl. (2.81) beschrieben werden, man erhält [52]

$$I(\mathbf{Q})_{\text{diff}} = cN e^{-2L} \left| f_D(\mathbf{Q}) - f_s(\mathbf{Q}) \frac{L}{c} + i f_s(\mathbf{Q}) \mathbf{Q} \cdot \tilde{\mathbf{u}}(\mathbf{q}) \right|^2 \quad (2.97)$$

mit der Fouriertransformierten $\tilde{\mathbf{u}}(\mathbf{q})$ des Verzerrungsfeldes mit den Komponenten

$$\tilde{u}_i(\mathbf{q}) = \frac{i}{qv} \sum_{j,l} \tilde{g}_{ij}(\boldsymbol{\kappa}) \kappa_l P_{jl} \quad \text{mit} \quad \boldsymbol{\kappa} = \frac{\mathbf{q}}{q} \quad (2.98)$$

Hier beschreibt $\tilde{g}_{ij}(\boldsymbol{\kappa})$ den inversen Tensor zu $\sum_{k,l} C_{ikjl} \kappa_k \kappa_l$, der in kubischen Kristallen durch folgenden Ausdruck gegeben ist [52]:

$$\tilde{g}_{ij}(\boldsymbol{\kappa}) = \frac{\delta_{ij}}{C_{44} + d\kappa_j^2} - \frac{\kappa_i \kappa_j}{(C_{44} + d\kappa_i^2)(C_{44} + d\kappa_j^2)} \frac{C_{44} + C_{12}}{1 + \sum_l \kappa_l^2 (C_{44} + C_{12}) / (C_{44} + d\kappa_l^2)}. \quad (2.99)$$

und $d = C_{11} - C_{12} - 2C_{44}$. Für Defekte, die keine kubische Symmetrie aufweisen ($P_{ij} \neq \delta_{ij} P_0$), muß dieser Ausdruck noch über alle möglichen Orientierungen gemittelt werden (siehe z.B. Gl. (25) in [52])

Der führende Term in Betragsquadrat Gl. (2.97) ist $|f_s(\mathbf{Q}) \mathbf{Q} \cdot \tilde{\mathbf{u}}(\mathbf{q})|^2$. Er beschreibt den *symmetrischen* Anteil der diffusen Streuung, die Huang-Streuung im engeren Sinne.

$$\begin{aligned} I(\mathbf{Q})_{\text{HDS}} &= cN e^{-2L} |f_s(\mathbf{Q})|^2 |\mathbf{Q} \cdot \tilde{\mathbf{u}}(\mathbf{q})|^2 \\ &= cN e^{-2L} |f_s(\mathbf{Q})|^2 \left(\frac{Q}{q} \right)^2 \frac{1}{v^2} \left| \sum_{i,j,l} \frac{Q_i}{Q} \tilde{g}_{ij}(\boldsymbol{\kappa}) \kappa_l P_{jl} \right|^2 \end{aligned} \quad (2.100)$$

Die diffuse Streuung ist proportional zur Anzahl der Defekte cN und zerfällt wie q^{-2} mit dem Abstand q vom reziproken Gitterpunkt. Die Richtungsabhängigkeit im reziproken Raum ist durch die Symmetrie des Doppelkrafttensors P_{ij} und die elastischen Konstanten gegeben. Abbildung 2.13 zeigt die berechnete Intensität für kubische Defekte und Versetzungsringe in Silizium. Im Falle kubischer Defekte zeigt die diffuse Streuung in angularer Richtung Knotenebenen verschwindender Intensität.

Der nächste Beitrag nach der symmetrischen Huang-Streuung ist der Interferenzterm zwischen den ersten beiden und dem dritten Term in Gl. (2.97). Da $\tilde{\mathbf{u}}(\mathbf{q})$ linear in \mathbf{q} ist, liefert dieser Term einen antisymmetrischen Beitrag zur diffusen Streuung um den reziproken Gitterpunkt \mathbf{G} . Physikalisch beschreibt der antisymmetrische Beitrag die Interferenz von Streuwellen, die am Fernfeld des Defektes gestreut wurden, mit den in der nahen Umgebung des Defekts gestreuten Wellen.

$$I(\mathbf{Q})_{\text{anti}} = cN e^{-2L} \operatorname{Re} \left\{ \left[f_D(\mathbf{Q}) - f_s(\mathbf{Q}) \frac{L}{c} \right] f_s(\mathbf{Q}) \right\} \frac{Q}{q} \frac{1}{v} \sum_{i,j,l} \frac{Q_i}{Q} \tilde{g}_{ij}(\boldsymbol{\kappa}) \kappa_l P_{jl} \quad (2.101)$$

Sind die lokalen Verzerrungen sehr klein ($L/c \ll 1$), kann der zweite Term vernachlässigt werden, und man erhält

$$I(\mathbf{Q})_{\text{anti}} = -2cN e^{-2L} \operatorname{Re} \{ f_D(\mathbf{Q}) f_s(\mathbf{Q}) \} \frac{Q}{q} \frac{1}{v} \sum_{i,j,l} \frac{Q_i}{Q} \tilde{g}_{ij}(\boldsymbol{\kappa}) \kappa_l P_{jl}. \quad (2.102)$$

Bei stark verzerrenden Defekten ($L/c \gg 1$) dominiert hingegen die Streuung an den verschobenen Atomen gegenüber dem Laue-Term des Defekts, und wir erhalten:

$$I(\mathbf{Q})_{\text{anti}} = 2cN e^{-2L} \operatorname{Re} \{ f_s^2(\mathbf{Q}) \} \frac{L}{c} \frac{Q}{q} \frac{1}{v} \sum_{i,j,l} \frac{Q_i}{Q} \tilde{g}_{ij}(\boldsymbol{\kappa}) \kappa_l P_{jl}. \quad (2.103)$$

2.8.4 Diffuse Streuung von Defekten in dünnen Schichten

Die Anwesenheit von Kristallgrenzen verursacht eine Relaxation der Verzerrungsfelder an der Oberfläche. Diese verändert sowohl die Verteilung als auch die q -Abhängigkeit der diffusen Streuung von Defekten nahe der Oberfläche. In dünnen Schichten und bei Streuung unter streifenden Winkeln wird dieser Effekt dominant.

Man unterscheidet drei Modelle einer dünnen Schicht: Ein freistehender dünner Film (Abb. 2.14a)) ohne Kontakt zu einem Substrat. Bei hinreichend großer Oberfläche kommt es durch die 'Infrarotdivergenz' der Verzerrungsfelder zu einer Verbreiterung der Braggreflexe selbst und zu einer starken Modifikation der diffusen Streuung [37, 54]. Dieser Fall ist auch für einen plastisch relaxierten dünnen

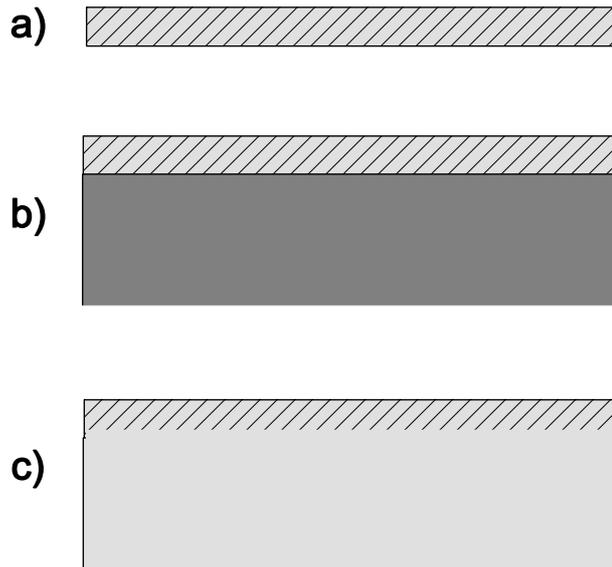


Abb.2.14. Defekte in dünnen Schichten. **a)** Freistehender dünner Film. **b)** Dünner Film fest verbunden mit einem Substrat unterschiedlicher elastischer Eigenschaften. **c)** Oberflächennahe Defekte in einem halbbunendlichen Kristall.

Film auf einem Substrat gegeben [55]. Der diametrale Grenzfall ist eine dünne Schicht, die fest mit einem unendlich steifen Festkörper verbunden ist. Durch das Substrat werden die Verzerrungsfelder und die diffuse Streuung völlig unterdrückt (Abb. 2.14b)). Zwischen diesen Extrembeispielen liegt eine oberflächennahe defektreiche Schicht, die einen Defektfilm mit den gleichen elastischen Konstanten wie das Substrat darstellt (Abb. 2.14c)). Dieser Fall ist z.B. durch die Oberflächendefekte nach Neutronenbestrahlung [55] oder Ionenimplantation [56], aber auch in pseudomorphen $\text{Si}_{1-x}\text{C}_x$ -Epischichten mit geringer C-Konzentration realisiert.

Die allgemeine Beschreibung der diffusen Streuung von einer oberflächennahen defektreichen Schicht erfordert numerische Verfahren zur Berechnung der statischen Verzerrungsfelder [54]. Für kubische Defekte in elastisch isotropen Medien ($C_{11} = \lambda + 2\mu$, $C_{12} = \lambda$, $C_{44} = \mu$ und $\sigma = \lambda/2(\lambda + \mu)$) existiert jedoch ein analytischer Ausdruck. Wir betrachten einen Defektfilm der Dicke D und spalten den Impulsübertragsvektor in seine Komponenten parallel und senkrecht zur Oberfläche auf: $\mathbf{Q} = (Q_l, Q_z)$ und $\mathbf{q} = (q_l, q_z)$. Die diffuse Streuung ist dann gegeben

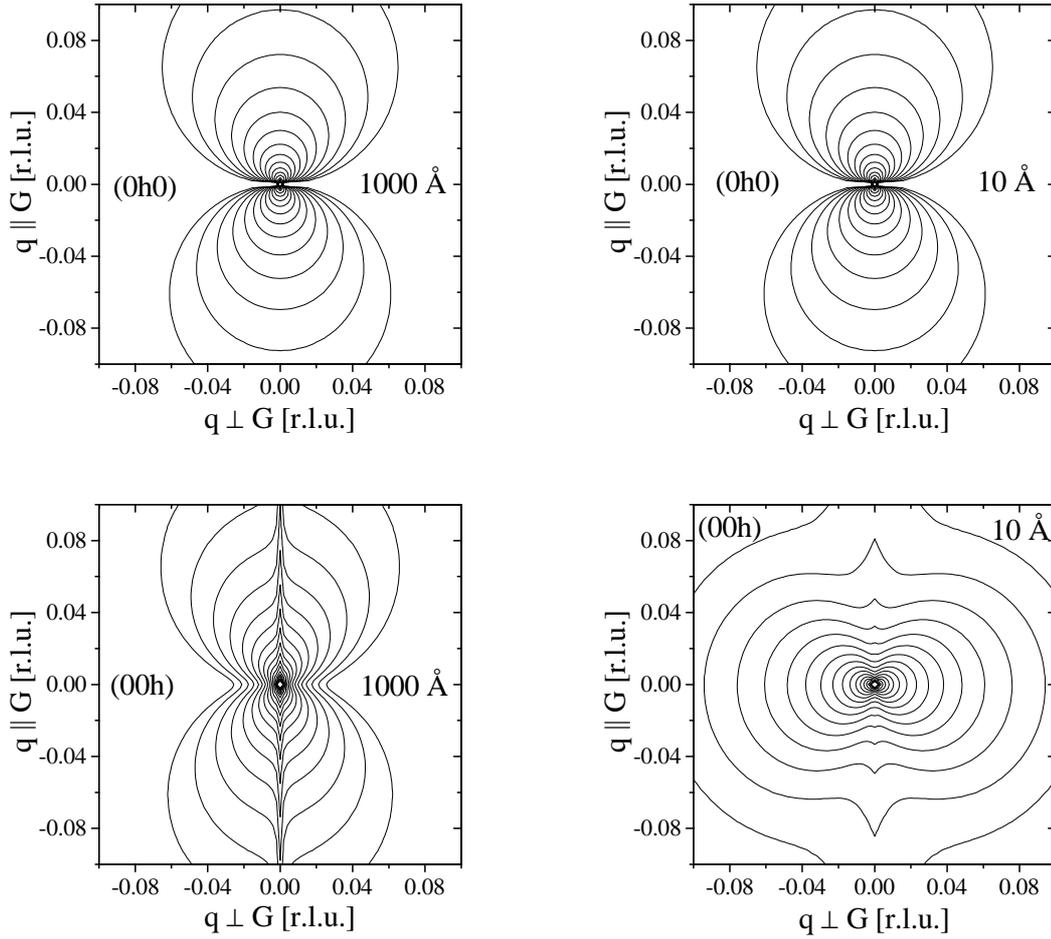


Abb.2.15. Winkelverteilung der diffusen Streuung berechnet für eine dünne Defektschicht auf einem (001)-Substrat. **Oben:** (0h0)-Reflex für 10 und 1000 Å Schichtdicke. Die Relaxation der Verzerrungen hat keinen Einfluß. **Unten:** (00h)-Reflex für 10 und 1000 Å Schichtdicke. Die Verteilung der diffusen Streuung verändert sich drastisch von Doppel-Kugeln mit einer Knotenebene zu einer elliptischen Verteilung.

durch [37]

$$I(\mathbf{Q})_{\text{HDS}} = N_d e^{-2L} |f_s(\mathbf{Q})|^2 \frac{1}{v^2} \left(\frac{P_0}{C_{11}} \right)^2 \times \left\{ \frac{(\mathbf{Q}\mathbf{q})^2}{q^4} - 2 \frac{\mathbf{Q}\mathbf{q} \operatorname{Re}[c_L(q_l + iq_z)\Phi]}{q^2 c_L(0)} + \frac{c_L(2q_l)}{c_L(0)} |\Phi|^2 \right\} \quad (2.104)$$

mit der *Laplace*-Transformation des Defektprofils $c(z)$

$$c_L(p) = \int_0^\infty e^{-pz} c(z) dz \quad (2.105)$$

und

$$2\Phi = \left(\frac{1}{q_l + iq_z} - \frac{3 - 4\sigma}{q_l - iq_z} \right) \left(\frac{\mathbf{Q}_l \mathbf{q}_l}{q_l} + iQ_z \right) + \frac{2q_l}{(q_l - iq_z)^2} \left(\frac{\mathbf{Q}_l \mathbf{q}_l}{q_l} - iQ_z \right). \quad (2.106)$$

Für große laterale Abstände zum Reflex ($q_l D \gg 1$) geht dieser Ausdruck in das bekannte Verhalten im Volumen über. Die Streuung ist hier empfindlich auf die Verzerrungen in einem Abstand vom Defekt, der deutlich kleiner als die Schichtdicke ist. Für $q_l D \ll 1$ ändert sich die Verteilung der diffusen Streuung drastisch, wenn der Reflex eine endliche Komponente $G_z \neq 0$ senkrecht zur Oberfläche aufweist. Die Huang-Doppelkugeln gehen dann in eine ovale Verteilung über, die keine Knotenebenen mehr in der angularen Richtung vom Reflex aufweist. Die q^{-2} -Abhängigkeit bleibt jedoch in dieser rein kinematischen Ableitung erhalten [37]. Für reine Oberflächenreflexe ($G_z = 0$) findet keine Änderung der Intensitätsverteilung statt (Abb. 2.15).

Grotehans et al. [56] haben in die Beschreibung der diffusen Streuung die Brechungseffekte für Röntgenstrahlen unter streifenden Winkeln einbezogen. Der imaginäre Anteil des komplexen Impulsübertrages im Medium $\text{Im } q'_z$ führt bei sehr kleinen lateralen Abständen q_l zum Reflex zu einem q_l^{-1} -Abfall der diffusen Streuung:

$$I(\mathbf{Q}) \propto \frac{|\mathbf{G}\hat{\mathbf{q}} + iq'_z|^2}{q_l |q'_z|^2}. \quad (2.107)$$

2.8.5 Diffuse Streuung von Clustern

Bisher wurde von zufallsverteilten Punktdefekten ohne Korrelationen ausgegangen. Ansammlungen von Punktdefekten zu sog. Clustern haben eine große Auswirkung auf die Streuung. Wir nehmen eine Konzentration von c_{cl} Defektclustern mit Radius R_{cl} an, die jeweils n_{cl} Punktdefekte enthalten. Die Gesamtkonzentration ist dann

$$c = c_{cl} n_{cl}. \quad (2.108)$$

Wenn die Defekte nicht stark miteinander wechselwirken, kann von einer linearen Überlagerung der langreichweitigen Verzerrungsfelder ausgegangen werden.

$$\mathbf{u}_{cl}(\mathbf{r}) = n_{cl} \mathbf{u}_{pt}(\mathbf{r}) \quad (2.109)$$

Daraus ergibt sich sofort, daß die gesamte Volumenänderung $\Delta V/V$ unbeeinflusst von der Agglomeration der Defekte ist. Die nähere Umgebung der Defekte erfährt jedoch durch die Bildung von Clustern eine starke Veränderung, die sich in einer

Zunahme des statischen Debye-Waller-Exponenten L Gl. (2.93) niederschlägt. Eine Abschätzung [52] ergibt:

$$L_{cl} \approx \left(1 + n_{cl} \frac{d_c}{R_{cl}}\right) L_{pt} \quad (2.110)$$

mit dem effektiven Radius d_c des Defekts.

Die reflexnahe diffuse Streuung ($q R_{cl} \ll 1$) skaliert wegen der linearen Überlagerung der langreichweitigen Verzerrungen mit der Anzahl der Defekte n_{cl} innerhalb des Clusters:

$$\begin{aligned} I(\mathbf{Q})_{\text{HDS}} &= c_{cl} N e^{-2L_{cl}} |f_s(\mathbf{Q})|^2 |\mathbf{Q} \cdot \tilde{\mathbf{u}}_{cl}(\mathbf{q})|^2 \\ &= n_{cl} c N e^{-2L_{cl}} |f_s(\mathbf{Q})|^2 |\mathbf{Q} \cdot \tilde{\mathbf{u}}_{pt}(\mathbf{q})|^2. \end{aligned} \quad (2.111)$$

Der veränderte statische DWF kann in einem Experiment durch Normierung auf die kohärente Braggstreuung separiert werden.

In größeren Abständen vom Reflex ($q R_{cl} \gg 1$) geht die diffuse Streuung in das *Stokes-Wilson-Regime* [57] über. Solange die Verzerrungen durch ihr asymptotisches Verhalten ($\mathbf{u}_{cl} = A_{cl}/r^2 \times \tau(\mathbf{r}/r)$) beschreiben werden, gilt:

$$I(\mathbf{Q})_{\text{SW}} = c_{cl} N |f_s(\mathbf{Q})|^2 \frac{|A_{cl}|}{v^2} \frac{Q}{q^4} \phi(\boldsymbol{\kappa}) \quad \boldsymbol{\kappa} = \frac{\mathbf{q}}{q}. \quad (2.112)$$

Für ein isotropes Verzerrungsfeld ist die Defektstärke durch $A_{cl} = n_{cl} l P_0/4\pi C_{11}$ gegeben [52]. Daher ist die diffuse Streuung im *Stokes-Wilson-Regime* proportional zur Gesamtkonzentration $c = c_{cl} n_{cl}$ der Defekte, sie zerfällt wie q^{-4} , während ihre Richtungsabhängigkeit $\phi(\boldsymbol{\kappa})$ keine Knotenebenen aufweist.

Ein wichtiger Spezialfall von Defekttagglomeraten sind kleine Versetzungsringe, deren Doppelkrafttensor durch den Burgersvektor \mathbf{b} und die Flächennormale $\mathbf{F} = \pi R_{loop}^2 \hat{\mathbf{F}}$ des Rings gegeben ist [58, 59]:

$$P_{ij} = (C_{11} \sum_i \Omega_{ii} + d \Omega_{ii}) \delta_{ij} + 2C_{44} \Omega_{ij} \quad (2.113)$$

mit

$$\Omega_{ij} = \frac{1}{2}(F_i b_j + F_j b_i) \quad (2.114)$$

und $d = C_{11} - C_{12} - 2C_{44}$. Die Verteilung der diffusen Streuung von Versetzungsringen ist in Abb. 2.13d) gezeigt.

Die räumliche Verteilung und q -Abhängigkeit der diffusen Streuung enthält somit Information über die Defektconfiguration. Die diffuse Streuung ermöglicht, die Symmetrie der Defekte zu identifizieren und erlaubt eine klare Unterscheidung zwischen gleichverteilten Punktdefekten und Ansammlungen von Defekten zu Clustern.

Die im Verlauf dieses Kapitels geschilderten Methoden sind die Grundlage bei der Auswertung der experimentellen Daten dieser Arbeit. Einzelne besondere Aspekte und methodische Weiterentwicklungen werden im Zusammenhang mit dem jeweiligen Experiment geschildert.

Kapitel 3

Grenzflächenmorphologie in verspannten und relaxierten $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$ -Schichten auf Gradientenpuffern

Die Möglichkeit von Anwendungen für Hochgeschwindigkeitsbauelemente als auch grundsätzliche Untersuchungen der Transport- und Wachstumseigenschaften von Hetero-Schichtsystemen haben in den letzten Jahren eine intensive Forschungstätigkeit an verspannten Si/SiGe-Schichten angeregt.

Von fundamentaler Bedeutung für die Realisierung von Hochgeschwindigkeitsbauelementen auf Si-Basis ist eine durchgreifende Erhöhung der Ladungsträgerbeweglichkeit gegenüber dem Volumenhalbleiter Silizium. Nach der Matthiesenschen Regel wird die Mobilität durch den Streuprozeß mit der kleinsten Relaxationszeit bestimmt. Dominierende Streumechanismen im Volumenhalbleiter sind Phononenstreuung, Streuung an ionisierten und neutralen Störstellen (Dotierungsatomen), Inter- und Intradbandstreuung sowie Legierungsstreuung in $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$ -Mischkristallen [60]. Hochdotierte Halbleiter verfügen zwar wegen ihrer hohen Ladungsträgerkonzentration über eine hohe Leitfähigkeit, die Beweglichkeit nimmt jedoch aufgrund der hohen Störstellenkonzentration ab. Im intrinsischen Silizium beträgt die Beweglichkeit bei Raumtemperatur etwa $1500 \text{ cm}^2/\text{Vs}$. Ein wesentlicher Schritt zu einer erhöhten Beweglichkeit in sogenannten HEMT¹-Bauelementen stellt daher die räumliche Trennung der beweglichen Ladungsträger von den Dotieratomen dar. Bei isomorphen III-V-Halbleiterheterostrukturen wird diese Trennung erzielt, indem ein niedrig dotierter Halbleiter kleiner Bandlücke mit einem hochdotierten Halbleiter großer Bandlücke in Kontakt gebracht wird. An der Grenzfläche entsteht in der Leitungsbandkante ein Potentialminimum, in welchem die beweglichen Ladungsträger ein zweidimensionales frei-

¹High Electron Mobility Transistor

es Trägergas bilden. Im pseudomorphen System $Si_{1-x}Ge_x/Si/Si_{1-x}Ge_x$ bewirkt die Verspannung infolge der Gitterfehlpassung eine geeignete Veränderung der Bandstruktur. Durch die im Vergleich mit Germanium 4.2% geringere Gitterkonstante von Silizium läßt sich im Legierungskristall $Si_{1-x}Ge_x$ die Gitterkonstante nach der Vegardschen Regel durch den Germaniumgehalt x einstellen. Wird auf eine *relaxierte* $Si_{1-x}Ge_x$ -Schicht reines Si unterhalb der kritischen Schichtdicke aufgewachsen, so bewirkt die Fehlanpassung der pseudomorphen Si-Schicht eine Zugspannung, wodurch die Leitungsbandunterkante im verspannten Si absinkt. Eine auf die einige Nanometer starke Siliziumschicht gewachsene hochdotierte $Si_{1-x}Ge_x$ -Schicht stellt die freien Ladungsträger zur Verfügung, die in das abgesenkte Leitungsband der verspannten Schicht wandern. Die ionisierten Donatoren verbleiben hinter der Heterobarriere und sind somit von den Ladungsträgern räumlich getrennt, während die Elektronen ein 2D-Trägergas im Si-Kanal nahe der Heterobarriere ausbilden. Voraussetzung für die Realisierung eines solchen Designs ist ein ausreichend scharfes Dotierungsprofil ('delta doping'), so daß keine Dotierungsatome in den Elektronenkanal diffundieren [1].

Sehr hohe Elektronen- [61–63] und Löcherbeweglichkeiten [64] wurden erreicht, nachdem die Dichte sog. Fadenversetzungen in der aktiven Schicht [2] durch Verwendung relaxierter $Si_{1-x}Ge_x$ -*Gradientenpuffer* mit einem langsam ansteigenden Ge-Gehalt vermindert werden konnte [65, 66]. Neben der Molekularstrahlepitaxie (MBE) eignen sich CVD-Verfahren besonders, um die materialintensiven dicken Gradientenpuffer herzustellen. Durch UHV-CVD² wurden ausreichend niedrige Wachstumstemperaturen erreicht [67, 68], um kurzweilige Rauigkeit auf der Längenskala der Fermi-Wellenlänge zu unterdrücken, wie sie in dünnen Si-Kanälen als Streuprozeß für Ladungsträger bedeutsam werden kann [69].

Eine typische Eigenschaft der Relaxation in Gradientenpuffern ist eine zerfurchte Oberflächenmorphologie, die in der Literatur gemeinhin als 'cross-hatch' bezeichnet wird. Dabei treten vertikale Höhenfluktuationen von einigen nm auf, deren typische laterale Korrelationslänge einige μm beträgt. Diese Furchen verlaufen parallel zu kristallographischen $\langle 110 \rangle$ Richtungen auf der (001)-Oberfläche. Sie werden einerseits auf das Abgleiten des Gitters auf (111)-Gleitebenen bei der Bildung von 'misfit'-Versetzungen zurückgeführt [70, 71], andererseits aber auch auf eine lokale Variation der Wachstumsrate nahe solcher spannungsabbauenden Versetzungen [72–74].

Zahlreiche Röntgenstreuungsuntersuchungen widmeten sich der Grenzflächenmorphologie in Si/Ge-Schichtsystemen. Tatsächlich wurde dadurch auch die Fortentwicklung der Streutheorie für Grenzflächen mit korrelierter Rauigkeit angetrieben. Die meisten dieser Studien behandelten molekularstrahlepitaktisch (MBE) gewachsene $Si_{1-x}Ge_x/Si$ -Supergitter auf Si(001)-Substraten [75–82]. Die Interdiffusion an der $Si_{1-x}Ge_x/Si$ -Grenzfläche wurde in den Arbeiten [77] und [79]

²Ultra High Vacuum Chemical Vapour Deposition

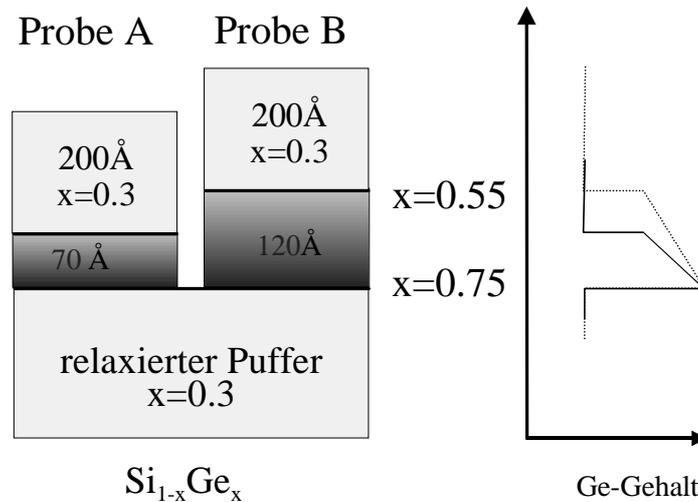


Abb. 3.1. Schematischer Aufbau der Proben. Auf einem relaxierten Si_{0.7}Ge_{0.3}-Gradientenpuffer wurde eine inverse Si_{1-x}Ge_x-Gradientenschicht abgeschieden. Die Stärke dieser Schicht beträgt 70 Å bzw. 120 Å bei Probe A bzw. B. Die Gradientenschicht wurde durch einen 200 Å Film Si_{0.7}Ge_{0.3} abgeschlossen.

untersucht. *Banerjee et al.* [83] untersuchten Interdiffusion in *nicht* epitaxialen Ge/Si-Schichten, die durch Ionenstrahlzerstäuben (IBSD³) hergestellt wurden. *Schlomka et al.* betrachteten die Replikation und das Skalenverhalten der Rauigkeit in polykristallinen und amorphen aufgedampften Ge-Filmen aus Si(001) [84] und Si(111) [85]. Ebenso wurde die Replikation der Grenzflächenmorphologie in Ge- und Si-Filmen auf lateral strukturierten Substraten untersucht [86]. Ein gemeinsames Ergebnis dieser Studien ist eine im allgemeinen starke vertikale Replikation der Rauigkeitsmorphologie von Si/Ge-Grenzflächen über das gesamte Schichtsystem, wobei die typische laterale Korrelationslänge dieser Rauigkeit sowohl in epitaktischen als auch amorphen oder polykristallinen Filmen einige μm beträgt. Trotz dieser großen Zahl von Arbeiten gab es bisher keine Röntgenstreuungsuntersuchung der Rauigkeitsmorphologie in verspannten und relaxierten Si_{1-x}Ge_x/Si-Schichten auf *relaxierten* Puffersystemen.

3.1 Probensystem und Fragestellung

Für die Untersuchungen stand eine Probenserie zur Verfügung, die im Rahmen einer Zusammenarbeit mit IBM⁴ von K. Ismail überlassen wurde. Die Proben wurden mittels UHV-CVD auf Si(001)-Substraten hergestellt. Die relevanten

³Ion Beam Sputter Deposition

⁴IBM T.J. Watson Research Center, Yorktown Heights, New York 10598

Schichten wurden auf einem relaxierten $Si_{1-y}Ge_y$ -Gradientenpuffer mit einem abschließenden Ge-Gehalt von 30% aufgebracht. Zunächst wurde eine *inverse* $Si_{1-x}Ge_x$ -Gradientenschicht gewachsen, beginnend mit einem Ge-Gehalt von 75%, der linear auf 55% abnimmt. Die Dicke der inversen Gradientenschicht beträgt 70 Å bei Probe A und 120 Å bei Probe B. Beide Schichtsysteme wurden mit einem 200 Å starken $Si_{0.7}Ge_{0.3}$ -Film abgeschlossen. Der Probenaufbau ist schematisch in Abb. 3.1 dargestellt.

Der entscheidende Unterschied besteht also in der Schichtdicke der inversen Gradientenschicht: Bei Probe A (70 Å) wird noch ein pseudomorphes Wachstum erwartet. Probe B (120 Å) übersteigt jedoch die kritische Schichtdicke und sollte daher relaxieren. Die zentrale Fragestellung ist nun der Einfluß der Relaxation auf die Rauigkeitsmorphologie der Grenzflächen, insbesondere auf einer lateralen Längenskala in der typischen Größenordnung der Fermi-Wellenlänge (30-40 nm) von Leitungselektronen in einem 2DEG.

3.2 Relaxation der verspannten Schicht: Beugung unter streifendem Einfall

Um den erwarteten Spannungszustand zu bestätigen, wurde der laterale Gitterparameter durch Beugung unter streifendem Einfall (GID) am (220)-Oberflächenreflex der Proben bestimmt. Abbildung 3.2a) zeigt die α_f -integrierte Intensität gegen den Streuwinkel 2θ . Probe A zeigt nur ein relativ scharfes Maximum bei einem Streuwinkel, der dem Gitterparameter von relaxiertem $Si_{0.7}Ge_{0.3}$ entspricht: Die inverse Gradientenschicht ist also pseudomorph auf dem darunterliegenden Puffer gewachsen. (Der Si-Substratreflex konnte infolge der dicken Pufferschicht nicht unter streifendem Einfall beobachtet werden.) Im Gegensatz zum pseudomorphen Schichtsystem zeigt Probe B ein zweites breiteres Maximum, das um die entsprechende Position einer relaxierten Schicht mit einem Germaniumgehalt von 75% zentriert ist.

Die Intensität des breiten Maximums nimmt verglichen mit dem scharfen Maximum für große Einfallswinkel α_i ab. Dies weist darauf hin, daß die gestreute Intensität des breiten Maximums aus einem oberflächennahen Bereich des Schichtsystems stammt, während die scharfe Intensitätsverteilung aus einer tieferen vergrabenen Region herrührt. Dies wird ebenso durch die α_f -aufgelösten Spektren in Abb. 3.2b) bestätigt: Bei der relaxierten Probe ist die gestreute Intensität des scharfen Maximums für Ausfallswinkel α_f unterhalb des kritischen Winkels α_c unterdrückt, wie es bei einer oberflächennahen Schicht mit abweichendem lateralen Gitterparameter oder einer amorphen Deckschicht erwartet wird (sog. 'dead layer'). Umgekehrt zeigt das breite Maximum ebenso für *kleine* Ausfallswinkel α_f unterhalb α_c den typischen Anstieg der Streuintensität eines Oberflächenreflexes, welcher nur durch die Transmission moduliert ist: Diese

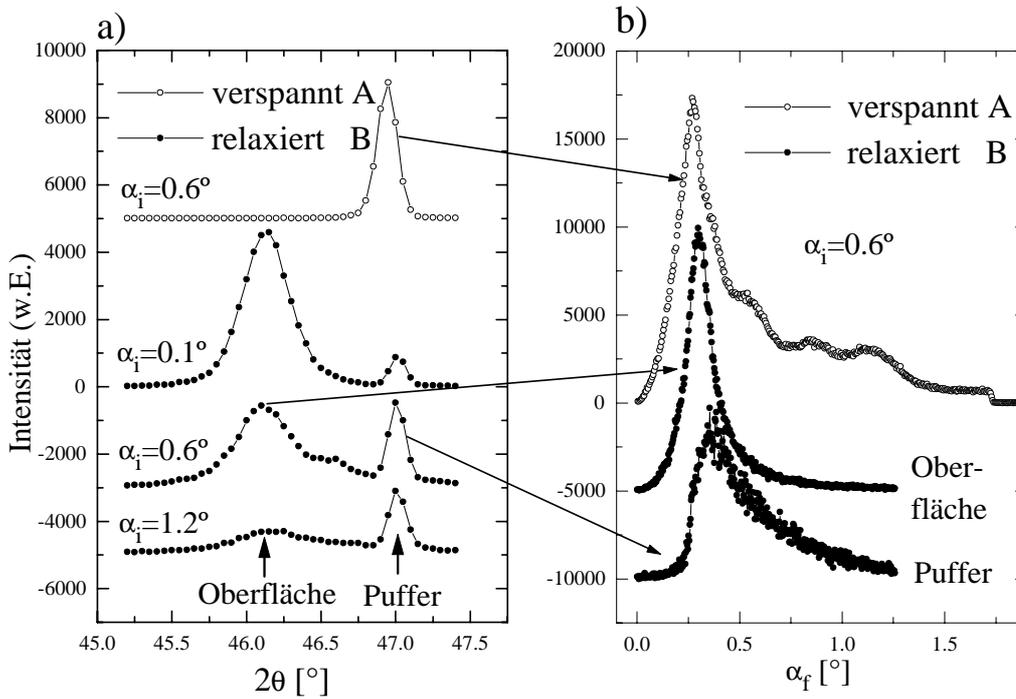


Abb.3.2. a) α_f -integrierte Intensität am (220)-Reflex der verspannten und der relaxierten Schicht. b) α_f -aufgelöste Intensitätsverteilung an der Position beider Maxima.

Schicht reicht bis an die Oberfläche der Probe.

Während das α_f -Spektrum der pseudomorphen Probe A entlang α_f infolge des Streukontrastes in $\chi_G(z)$ zwischen Schichten mit unterschiedlichem Gehalt moduliert ist [87], zeigt der Oberflächenreflex der relaxierten Probe keinerlei Schichtdickenmodulation.

3.3 Relaxation: Koplanare Beugung

Beugung unter streifenden Winkeln gibt nur eine Information über den lateralen Gitterparameter der oberflächennahen Schichten. Um zusätzliche Information über das Puffersystem und den vertikalen Gitterparameter der Schicht zu erhalten, wurde die Umgebung des asymmetrischen Si(224)-Reflexes mit koplanarer Beugung [88,89] untersucht. Die Untersuchungen fanden im Labor an einer Drehanode mit $\text{Cu}_{K\alpha 1}$ -Strahlung statt. Neben dem (224)-Reflex, der sowohl einen lateralen als auch einen vertikalen Impulsübertrag enthält, wurde auch der symmetrische Si(004)-Reflex aufgenommen, um die verspannungsinduzierte Verkipfung der Pufferschicht zu berücksichtigen [90,91].

Abbildung 3.3 zeigt die Kartierung des reziproken Raumes in der Umgebung

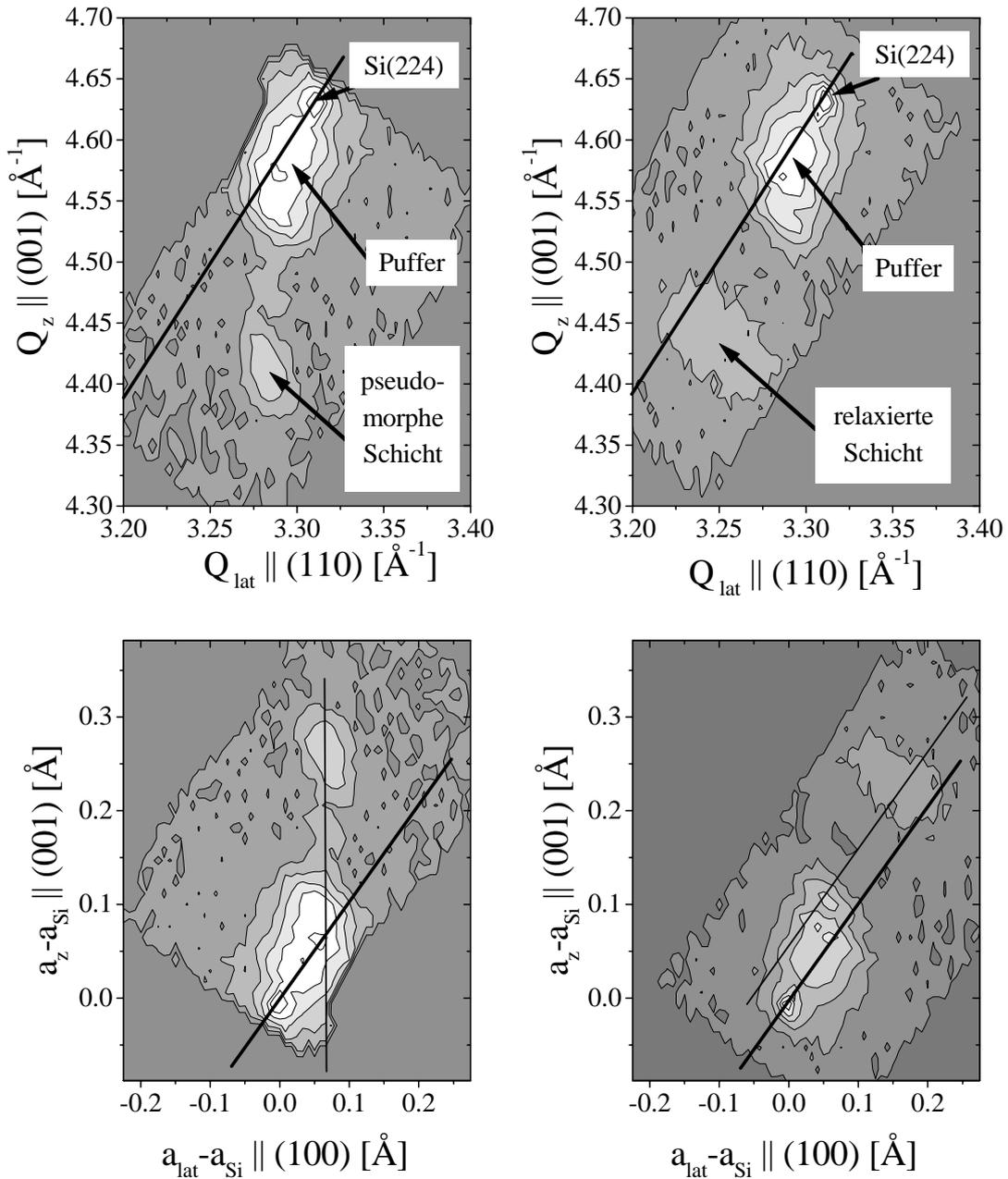


Abb.3.3. Beugung in der Umgebung des Si(224)-Reflexes. **Links:** Pseudomorphe Probe A **Rechts:** Relaxierte Probe B. Die Intensitätsverteilung im reziproken Raum (oben) wurde in den vertikalen (a_z) und lateralen Gitterparameter a_{lat} umgerechnet (unten).

des Si(224)-Reflexes. Deutlich zu erkennen ist jeweils der scharfe Substratrefflex und daran anschließend die diffuse Streuung vom relaxierten Gradienten-Puffersystem. Die eingezeichnete Gerade markiert die radiale Richtung $\langle 112 \rangle$

ausgehend vom Ursprung (000): Die Streuung von Schichten mit vollständig plastisch relaxiertem Gitterparameter liegt auf dieser 'Relaxationslinie'. Der Abschluß des Puffers zeigt eine kleine Restverspannung, wie an der Abweichung von der Relaxationslinie zu erkennen ist. Das abschließende Schichtsystem von Probe A ist pseudomorph verspannt und zeigt den gleichen lateralen Gitterparameter wie der Abschluß des Puffers. Bei Probe B ist das Schichtsystem relaxiert, wobei eine erhebliche Restverspannung beobachtet wird. Im unteren Teil der Abbildung ist die entsprechende Umrechnung in den lateralen und vertikalen Gitterparameter gezeigt.

3.4 Oberflächenmorphologie: Rasterkraftmikroskopie

Die Oberflächenmorphologie der Proben wurde mit einem kommerziellen *Topometrix Explorer* Rasterkraftmikroskop (AFM) untersucht. Abbildungen 3.4a) und b) zeigen Ausschnitte der Oberflächen von Probe A und B. Die Abtastrichtung (parallel zum unteren Bildrand) verläuft diagonal zum 'cross-hatch' entlang $\langle 100 \rangle$. Die Aufnahmen zeigen einen Bereich von $10 \times 10 \mu\text{m}^2$ mit einer Auflösung von 500×500 Punkten. Das beobachtete 'cross-hatch pattern' ist typisch für relaxierte $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$ -Legierungsschichten. Die Beobachtung des 'cross-hatch' an der Oberfläche weist bereits auf eine konforme Replikation der Grenzflächenrauigkeit über das Schichtsystem hinweg hin. Die RMS Rauigkeit wurde aus den Höhendaten berechnet und beträgt 34 \AA bei Schicht A bzw. 31 \AA bei Probe B.

Um der mit bloßem Auge erkennbaren Anisotropie der Oberflächenmorphologie gerecht zu werden, wurde die Höhen-Differenzfunktion $g(X, Y) \equiv \langle [z(0) - z(X, Y)]^2 \rangle$ für alle Richtungen (X, Y) bis zu einem maximalen lateralen Abstand von $3 \mu\text{m}$ berechnet. Zur Verbesserung der Statistik wurde der Mittelwert aus den vier Quadranten gebildet (Abb. 3.4 c) und d)). In Abbildung 3.5 ist die Rauigkeit $\sigma(X, Y) = \sqrt{g(X, Y)}/2$ doppelt-logarithmisch gegen den Abstand R entlang $\langle 100 \rangle$ und $\langle 110 \rangle$ aufgetragen.

Die Proportionalitätskonstante A und der Rauigkeitsexponent H wurden durch Anpassung eines Potenz-Zerfalls nach Gleichung (2.24) an den linearen Anstieg der Funktion $\log(g(R))$ abgeschätzt (vgl. Abb. 3.5). Um die laterale Korrelationslänge ξ der Rauigkeit zu bestimmen, verwendet man jene laterale Entfernung, bei welcher die Rauigkeit $\sigma(R)$ auf $\sqrt{(1 - 1/e)}$ (entsprechend $(1 - 1/e)$ von $g(R)$) ihres ersten Maximalwertes (Plateau) nach dem anfänglichen Anstieg beträgt. Dabei wurde eine starke Anisotropie der lateralen Korrelationslänge ξ und des Sättigungswertes der Rauigkeit zwischen den Richtungen $\langle 110 \rangle$ und $\langle 100 \rangle$ entdeckt. Die Rauigkeit entlang des 'cross hatch' (entlang $\langle 110 \rangle$) ist signifikant kleiner und beträgt etwa $2/3$ ihres Wertes 45° zum 'cross-hatch'

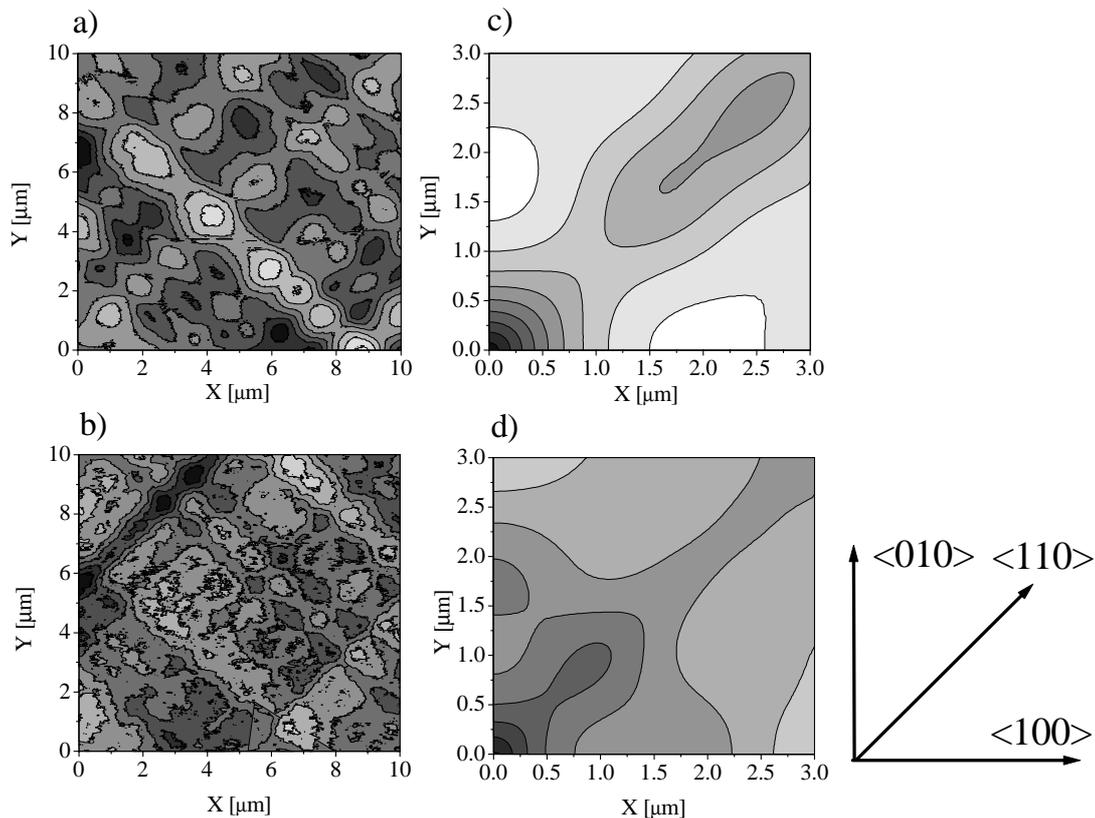


Abb.3.4. a) und b): AFM-Aufnahme der Oberflächenmorphologie von Probe A bzw. B. Ein Bereich von $10 \times 10 \mu\text{m}^2$ wurde abgetastet. Hell gibt hohe Bereiche wieder, dunkel sind tiefe Täler gezeigt. Das typische 'cross-hatch pattern' verläuft parallel zu den kristallographischen $\langle 110 \rangle$ Richtungen des Substrats. c) und d): Die berechnete Höhen-Höhen-Differenzfunktion $g(X,Y)$ beider Proben A und B ist anisotrop: Helttöne zeigen große Höhendifferenz. Auf beiden Proben ist die Höhendifferenz entlang $\langle 110 \rangle$ kleiner als in $\langle 100 \rangle$ Richtung für alle lateralen Entfernungen (X, Y) .

(entlang $\langle 100 \rangle$). Gleichzeitig ist auch die Korrelationslänge bei beiden Proben entlang $\langle 110 \rangle$ um einen Faktor $1/\sqrt{2}$ kleiner als entlang $\langle 100 \rangle$ und variiert von 0.4 bis $0.9 \mu\text{m}$. Der Rauigkeitsexponent H beträgt ≈ 0.9 bei der verspannten Probe A und ≈ 0.65 bei Probe B. Die Ergebnisse der AFM-Untersuchung sind in Tabelle 3.1 zusammengefasst.

Die berechnete Höhen-Differenzfunktion $g(X, Y)$ genügt strenggenommen nicht der Idealisierung in einem *isotropen* selbstaffinen Modell [92]. Auch der Verlauf entlang der Richtungen $\langle 110 \rangle$ und $\langle 100 \rangle$ zeigt nicht das asymptotische Verhalten eines kontinuierlichen Übergangs vom potenzartigen Zuwachs zur Sättigung bei $2\sigma^2$, vielmehr wird in der berechneten Höhendifferenz $g(R)$ eine kurzreichweitige Ordnung aufeinander folgender Höhenzüge des 'cross-hatch' beobachtet. Die hier vorgestellte Analyse bietet dennoch eine brauchbare Abschätzung für die

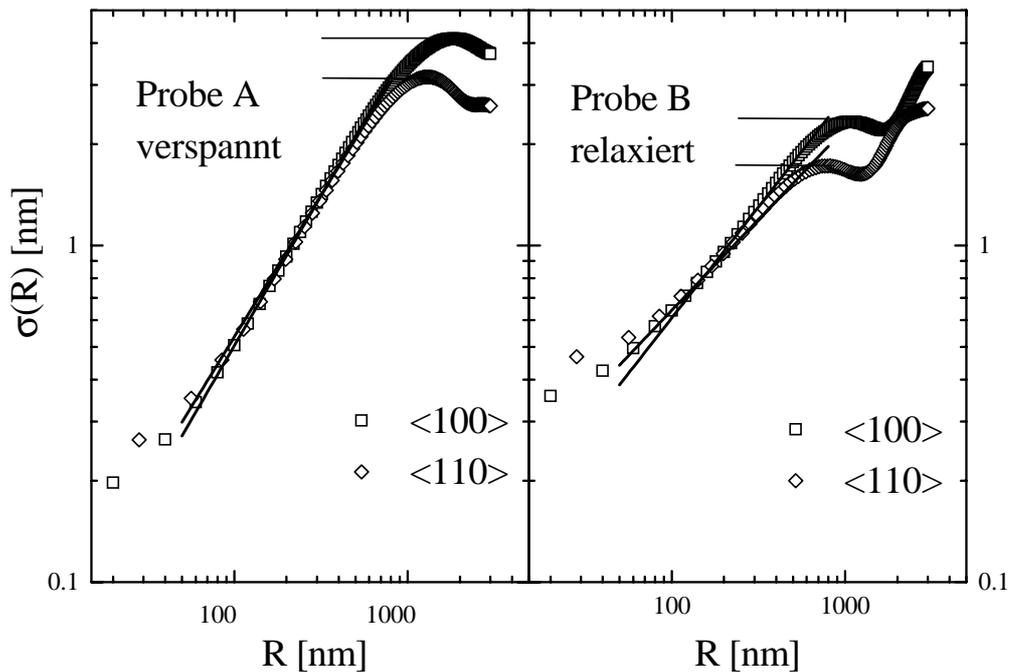


Abb.3.5. Eindimensionale Höhen-Differenzfunktion $\sigma(R) = \sqrt{g(R)/2}$ entlang der Richtungen $\langle 110 \rangle$ und $\langle 100 \rangle$. Die Steigung H für eine selbstaffine Höhen-Differenzfunktion $g(R) = AR^{2H}$ ist durch die Geraden angedeutet. Die laterale Korrelationslänge wird abgeschätzt, indem wir die laterale Entfernung zugrunde legen, bei der die Rauigkeit $c(R)$ gleich $\sqrt{(1-1/e)}$ ihres Wertes an ihrem ersten Maximum ist.

gesuchten Größen.

Da der 'cross-hatch' eine Folge der Relaxation des vergrabenen Puffersystems ist, kann aus seiner Beobachtung an der Oberfläche gefolgert werden, daß die Rauigkeitsmorphologie auf dieser lateralen Längenskala über den gesamten Schichtstapel gut repliziert wird.

3.5 Morphologie vergrabener Grenzflächen und vertikale Korrelationen: Diffuse Röntgenstreuung

Zur Untersuchung der diffusen Röntgenstreuung in Vorwärtsrichtung in und außerhalb der Einfallsebene wurde ein experimenteller Aufbau verwendet, wie er in Abb. 3.6 dargestellt ist. Ein positionsempfindlicher Detektor (PSD⁵) registriert

⁵Position Sensitive Detector

Tabelle 3.1. Ergebnisse der Rasterkraftmikroskopie

Probe _{<Richtung>}	σ (nm)	ξ (nm)	H	A
A _{<100>}	4.12	920	0.89	1.4×10^{-4}
A _{<110>}	3.17	710	0.84	2.5×10^{-4}
B _{<100>}	2.33	570	0.66	1.7×10^{-3}
B _{<110>}	1.73	390	0.54	5.7×10^{-3}

gestreute Photonen orts aufgelöst entlang seines Zähl drahtes. Der Zähl draht steht senkrecht zur Probenoberfläche und zeichnet für einen gegebenen Einfallswinkel α_i simultan einen Bereich von Ausfallswinkeln α_f auf. Für 'in-plane'-Messungen ($2\theta = 0$) liefert eine Variation des Einfallswinkels α_i eine Kartierung des reziproken Raumes in der Einfallsebene (RSM⁶). Bei einer 'out-of-plane'-Messung wird der Einfallswinkel α_i festgehalten, und der Winkel des Detektors zur Einfallsebene 2θ variiert. Die einzelnen Komponenten des Impulsübertrages \mathbf{q} ergeben sich dann aus Gleichung (2.15).

3.5.1 Langreichweitige laterale Korrelationen: Diffuse Streuung in der Einfallsebene

Die Rauigkeitsmorphologie und deren Replikation auf einer lateralen Längenskala im μm -Bereich wurde durch diffuse Röntgenstreuung in der Einfallsebene ('in-plane') bestimmt. Der dabei zugängliche kleine Bereich im lateralen Impulsübertrag \mathbf{q}_{\parallel} ist in idealer Weise maßgeschneidert für solche großen Längenskalen.

Die Streuexperimente in der Einfallsebene wurden im Labor an einer 18kW-Drehanode mit $\text{Cu}_{K\alpha 1}$ -Strahlung durchgeführt. (Eine Beschreibung des Diffraktometers 'Lisa' findet sich in [93]). Dabei wurde ein vertikaler Impulsübertrag q_z bis maximal 0.35 \AA^{-1} erreicht. In der Nähe der Totalreflexion ($q_z \leq 0.06 \text{ \AA}^{-1}$) wurde ein konventioneller NaJ-Szintillationsdetektor verwendet und Reflektivitäts- ($\alpha_i = \alpha_f$), Offset-Messungen ($\alpha_i = \alpha_f + \Delta$) und transversale Messungen der diffusen Streuung (bei festgehaltenem Streuwinkel $\alpha_i + \alpha_f = \text{const}$) durchgeführt. Streuung bei vertikalen Impulsüberträgen $0.06 \leq q_z \leq 0.35 \text{ \AA}^{-1}$ wurde mit einem positionsempfindlichen Detektor aufgezeichnet. Schwankungen der einfallenden Intensität wurden durch einen Monitorzähler korrigiert und die gemessene diffuse Streuintensität auf die durch Variation des Einfallswinkels α_i veränderte beleuchtete Probenfläche normiert. Die Divergenz und Größe des Primärstrahles sowie die Blende am PSD wurden so gewählt, daß eine 'vollständige Integration' der diffusen Streuung entlang q_y senkrecht zur Einfallsebene für die aus den AFM-Aufnahmen zu erwartende laterale Längenskala gewährleistet war [12, 94].

⁶Reciprocal Space Mapping

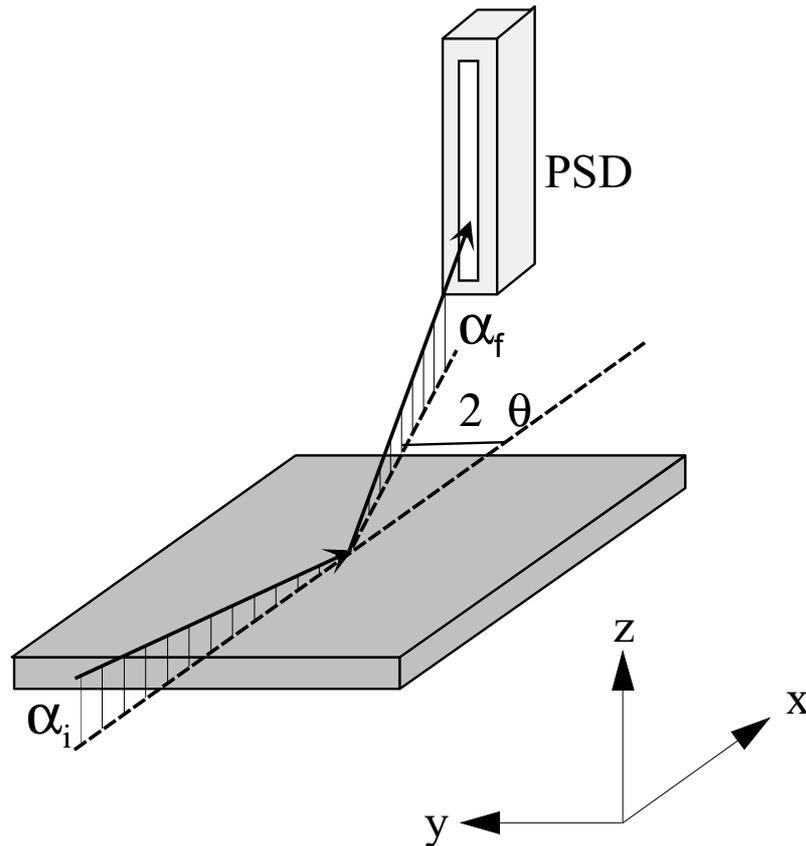


Abb.3.6. Experimenteller Aufbau zur Messung der diffusen Streuung in und außerhalb der Einfallsebene. Der Röntgenstrahl trifft auf die Probe unter dem Einfallswinkel α_i . Die gestreute Intensität wird unter dem Ausfallswinkel α_f zur Probenoberfläche und unter 2θ zur Einfallsebene aufgezeichnet. Der positionsempfindliche Detektor (PSD) erlaubt die simultane Aufzeichnung eines Ausfallswinkelbereichs und reduziert die erforderliche Meßzeit.

Die Anisotropie der Rauheitsmorphologie wurde berücksichtigt, indem die diffuse Streuung bei verschiedenem Azimut jeweils mit der Einfallsebene parallel zur $\langle 110 \rangle$ bzw. $\langle 100 \rangle$ Richtung gemessen wurde. Abbildung 3.7 zeigt die Kartierung des reziproken Raumes (RSM) beider Proben A und B für beide azimuthalen Orientierungen. Die Graustufen sind logarithmisch skaliert, die Konturen zeigen Isointensitätslinien, die durch einen Faktor 3 getrennt sind.

Um die Abhängigkeit der spekulären Reflektivität und diffusen Streuung vom vertikalen Impulsübertrag q_z zu untersuchen, wurden vertikale Schnitte durch das RSM gelegt. Die Schnitte sind um $q_x = 7.5 \times 10^{-5} \text{ \AA}^{-1}$ zentriert und integrieren über einen Bereich von $\Delta q_x = 5.0 \times 10^{-5} \text{ \AA}^{-1}$. Sie repräsentieren die q_z -Abhängigkeit an nicht spekulärer Position. Die diffuse Streuung für $q_z < 0.096 \text{ \AA}^{-1}$ wurde durch Offset-Messungen mit einem Offset von 0.04° bestimmt.

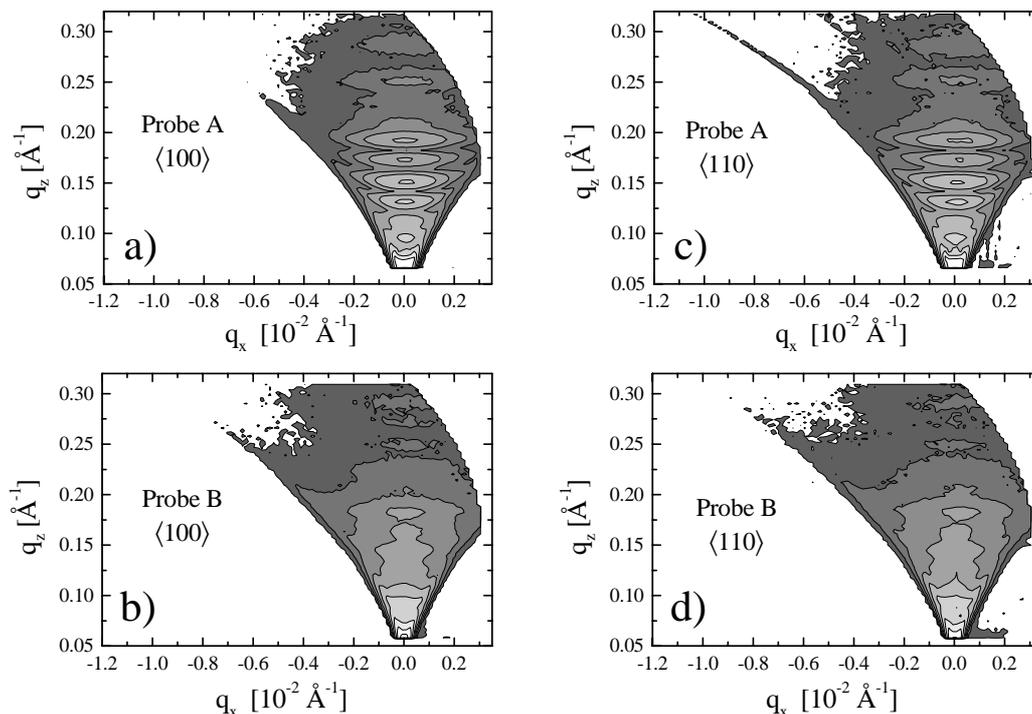


Abb.3.7. Diffuse Streuung in der Einfallsebene. **a)** und **b)**: Proben A und B jeweils mit der Einfallsebene in $\langle 100 \rangle$ Richtung, **c)** und **d)**: Proben A und B jeweils in $\langle 110 \rangle$ Richtung. Die Konturlinien sind durch einen Faktor 3 getrennt. Die Streuintensität ist rein diffus und zeigt bei Probe A eine Modulation mit dem vertikalen Impulsübertrag q_z .

Abbildung 3.8 zeigt eine Zusammensetzung der Schnitte und der Messungen mit konventionellem NaJ-Detektor. Ein Vergleich der *diffusen* Streuung zeigt keinen signifikanten Unterschied für die beiden Orientierungen $\langle 110 \rangle$ bzw. $\langle 100 \rangle$. Ein deutlicher Unterschied ist jedoch in der spekulären Reflektivität zu beobachten: Entlang der $\langle 100 \rangle$ Richtung verschwindet die Reflektivität früher im diffusen Untergrund als entlang $\langle 110 \rangle$. Die Rauigkeit diagonal zum 'cross-hatch' ist also größer als parallel zu den Riefen, in Übereinstimmung mit dem Ergebnis aus der Rasterkraftmikroskopie. Dies wird auch in transversalen Messungen ('rocking-scans') nahe der Totalreflexion deutlich (Abb. 3.9). Hier ist in der Orientierung parallel $\langle 110 \rangle$ ein klares spekuläres Maximum zu beobachten, das parallel $\langle 100 \rangle$ ausbleibt. Die beobachtete (bei Probe A stärker ausgeprägte) Modulation der Streuintensität besteht also ausschließlich aus diffuser Streuung.

Der Zerfall des Strukturformfaktors als Funktion des *lateralen* Impulsübertrags q_x enthält die Information über die lateralen Korrelationslängen der Rauigkeitsmorphologie. Der Strukturformfaktor und seine Abhängigkeit vom vertikalen Impulsübertrag wurde mittels *horizontaler* Schnitte (Abb. 3.10) durch die gemessene

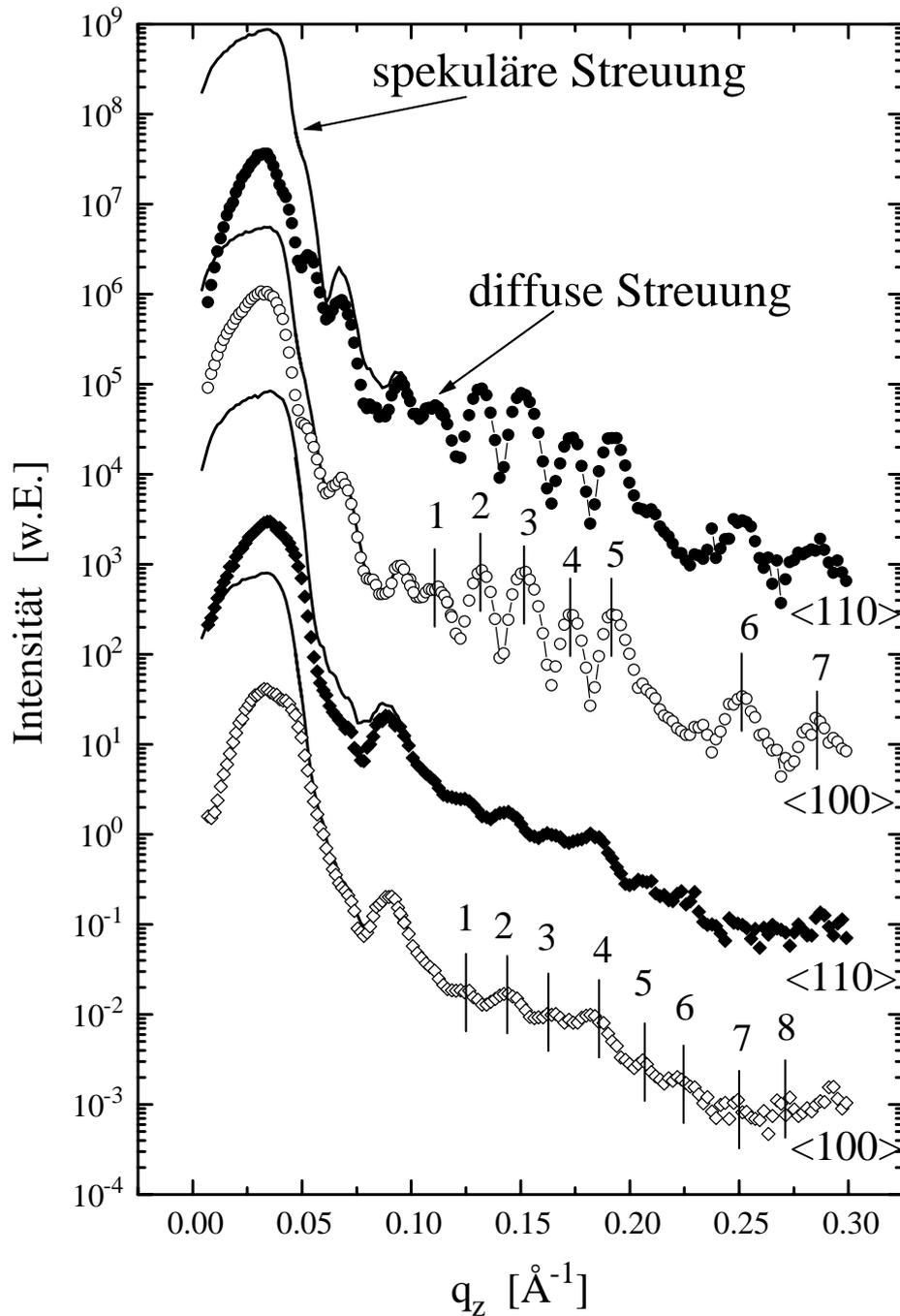


Abb.3.8. Gemessene Streuintensität als Funktion des vertikalen Impulsübertrages bei Probe A (\circ) und B (\diamond). Die durchgezogene Linie zeigt die Intensität auf dem spekulären Pfad, Meßpunkte zeigen den diffusen *Untergrund*. Entlang der $\langle 100 \rangle$ Richtung (offene Symbole) verschwindet die spekuläre Reflektivität bereits bei kleineren q_z im diffusen Untergrund als entlang der $\langle 110 \rangle$ Richtung (volle Symbole). Zur leichteren Übersicht sind die Intensitätswerte jeweils mit einem Faktor 100 relativ zueinander skaliert. Numerierte Balken geben die q_z -Position der horizontalen Schnitte in Abb. 3.10.

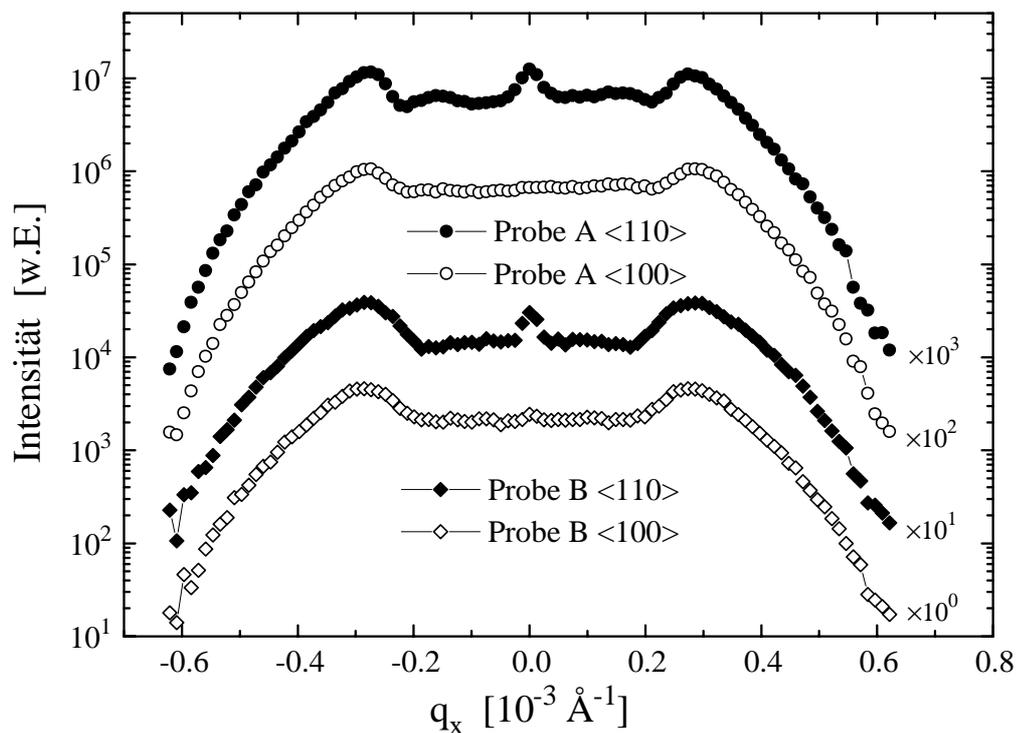


Abb.3.9. Transversale Messung ('rocking-scan') der diffusen Streuung bei $q_z = 0.07 \text{ \AA}^{-1}$. Die Anisotropie der Rauigkeit wird am spekulären Maximum bei $q_x = 0$ deutlich, das nur entlang der $\langle 110 \rangle$ Richtung auftritt, in $\langle 100 \rangle$ Richtung jedoch im diffusen Untergrund verschwindet. Die Daten sind ausleuchtungskorrigiert und zur besseren Übersichtlichkeit jeweils um einen Faktor 10 skaliert.

Kartierung der diffusen Streuung bestimmt. Die Schnitte liegen an den in Abb. 3.8 bezeichneten Positionen auf den jeweiligen Maxima der Modulation der diffusen Streuung und integrieren über einen q_z -Bereich von 0.004 \AA^{-1} , dieser Bereich ist deutlich schärfer als die Modulationsperiode⁷ von etwa 0.02 \AA^{-1} . Hier fällt zunächst besonders auf, daß die Breite des Strukturfaktors in q_x mit dem vertikalen Impulsübertrag q_z zunimmt. Daher kann man die laterale Korrelationslänge nicht direkt aus der Breite des Strukturfaktors bestimmen, wie es im Grenzfall *kleiner Rauigkeit* $q_z \sigma \ll 1$ möglich war. Wir können jedoch den Strukturfaktor in einem Bereich, der nicht durch optische Effekte ('Yoneda-wing' in der Nähe von α_i oder $\alpha_f = \alpha_c$) beeinflusst ist, gut durch eine Gaußverteilung anpassen. Die Breite der Gaußverteilung nimmt *linear* mit dem vertikalen Impulsübertrag zu. Dies entspricht dem Strukturfaktor aus Gleichung (2.32) im Grenzfall einer sehr

⁷Strenggenommen wäre eine Integration über die gesamte 'Brillouinzone', d.h. über eine ganze Periode der Modulation erforderlich. Dies hatte jedoch keinerlei Einfluß auf den zentralen Verlauf des Strukturfaktors, führte jedoch zu einer künstlichen Verschiebung der Yoneda-Maxima.

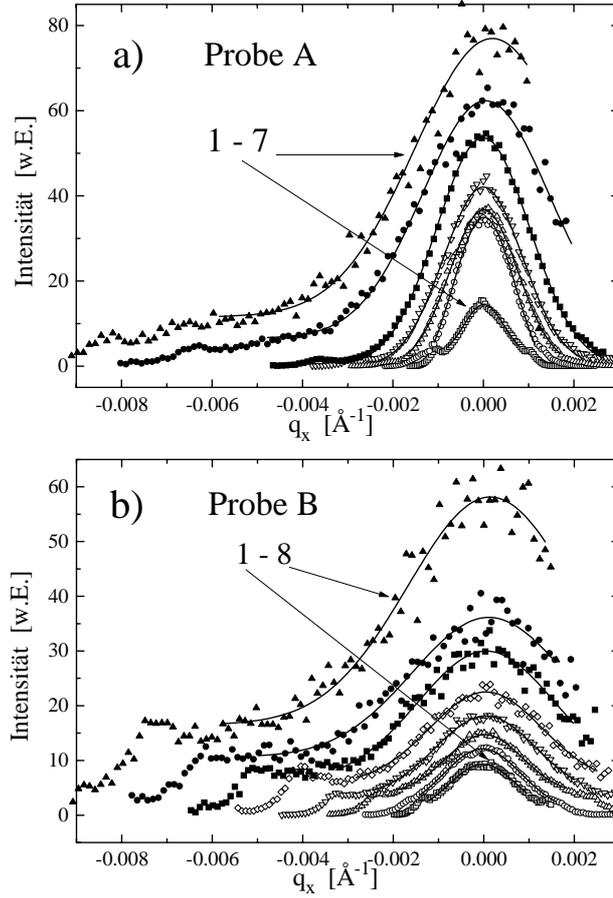


Abb.3.10. Horizontale Schnitte der diffusen Streuung in Abb. 3.7 der Probe A a) und B b) zusammen mit der Anpassung einer Gaußverteilung (durchgezogenen Linien) an den gemessenen Strukturfaktor. Die Numerierung gibt die Position der Schnitte in Abb. 3.8 wieder. (Die Intensität wurde zur besseren Übersicht beliebig skaliert.)

großen Rauigkeit $q_z\sigma \gg 1$. Hier kann die Grenzflächenmorphologie durch den einfachen Ausdruck $g(R) = AR^{2H}$ genähert werden und wir erhalten für $H = 1$ den einfachen analytischen Ausdruck

$$S(\mathbf{q}) = \frac{2\pi}{Aq_z^4} \exp\left(\frac{-q_r^2}{Aq_z^2}\right). \quad (3.1)$$

Durch eine lineare Anpassung (Abb. 3.11) der Breite des Strukturfaktors in q_x als Funktion des vertikalen Impulsübertrags bestimmen wir die Proportionalitätskonstante A und erhalten $A = (1.91 \pm 0.17) \times 10^{-4}$ für die pseudomorphe Probe A bzw. $A = (2.55 \pm 0.32) \times 10^{-4}$ bei der relaxierten Probe B.

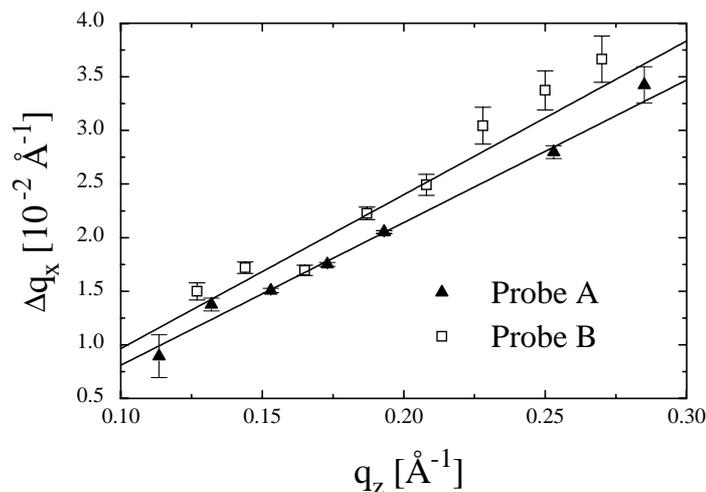


Abb.3.11. Lineare Anpassung der Breite Δq_x der Gaußverteilung als Funktion von q_z zur Bestimmung der Proportionalitätskonstante A in Gl. (3.1).

3.5.2 Kurzreichweitige laterale Korrelationen: Diffuse Streuung außerhalb der Einfallsebene

Eine vollständige Beschreibung der Grenzflächenmorphologie erfordert darüber hinaus die Bestimmung *kleiner* lateraler Korrelationslängen. Die dafür benötigten *großen* lateralen Impulsüberträge können bei kleinen q_z nur durch Röntgenstreuung außerhalb der Einfallsebene ('out-of-plane') erreicht werden.

'Out-of-plane'-Messungen wurden am Oberflächendiffraktometer des Instrumentes BW2 des HASYLAB⁸/DESY⁹ in Hamburg durchgeführt. Die diffuse Streuung wurde bis zu einem 'out-of-plane'-Winkel von $2\theta = 1.20^\circ$ mit einem PSD aufgezeichnet. Der maximale laterale Impulsübertrag beträgt $q_y = 0.085 \text{\AA}^{-1}$ bei einer Wellenlänge von $\lambda = 1.55 \text{\AA}$. Dies liegt etwa eine Größenordnung über dem maximal erreichten lateralen Impulsübertrag von $q_y = 0.012 \text{\AA}^{-1}$ in der Einfallsebene. Vor dem PSD befand sich eine Blende, die 2 mm geöffnet war, um eine ausreichend hohe Intensität zu registrieren. Damit ergibt sich eine Auflösung $\Delta q_y = 0.007 \text{\AA}^{-1}$ bei einer Distanz von 900 mm zwischen PSD und Probe.

In Abbildung 3.12 ist eine Kartierung der diffusen Streuung von Probe B außerhalb der Einfallsebene dargestellt. Die Intensität wurde bei einem Einfallswinkel von $0.60^\circ = 2\alpha_c$ durch PSD-Spektren bei veränderten 2θ aufgenommen und anschließend zusammengesetzt. Deutlich zu erkennen ist ein Ausläufer diffuser Streuung bei lateralem Impulsübertrag $0.01 \text{\AA}^{-1} \leq q_y \leq 0.085 \text{\AA}^{-1}$. Ein solcher

⁸Hamburger Synchrotronstrahlungslabor

⁹Deutsches Elektronen-Synchrotron

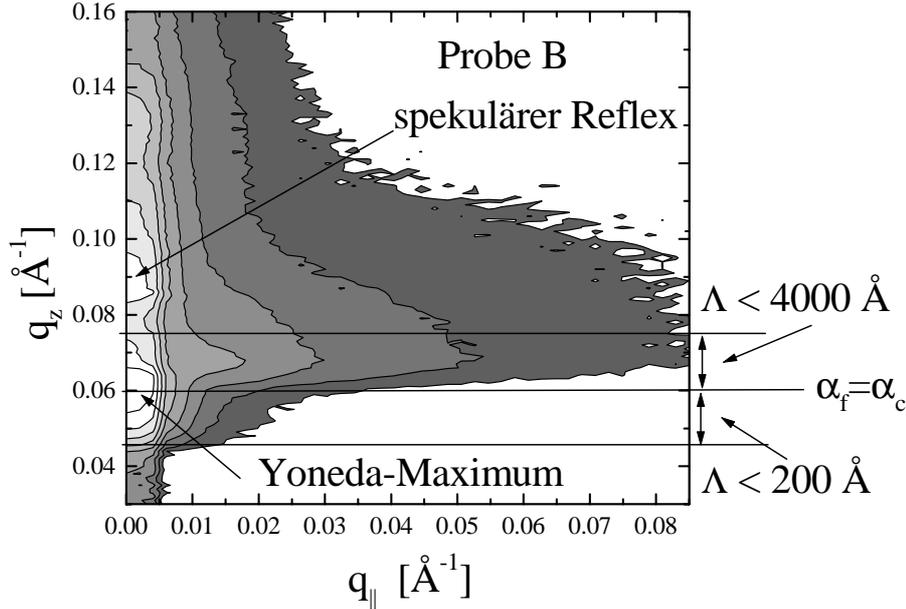


Abb.3.12. Diffuse Streuung außerhalb der Einfallsebene von der relaxierten Probe B. Der 'Flügel' diffuser Streuung bei lateralem Impulsübertrag $q_{\parallel} > 0.01 \text{ \AA}^{-1}$ wird nur bei dieser Probe beobachtet und ist bei Ausfallswinkeln α_f unterhalb des kritischen Winkels α_c vollständig unterdrückt.

Beitrag zur diffusen Streuung wird bei Probe A *nicht* beobachtet. Wie in Abbildung 3.12 ersichtlich, ist die Streuintensität für Ausfallswinkel α_f unterhalb des kritischen Winkels α_c unterdrückt. Betrachtet man die mittlere Streutiefe Λ für die entsprechenden Ein- und Ausfallswinkel ($\Lambda \leq 200 \text{ \AA}$ für $\alpha_f \leq \alpha_c$ und $200 \text{ \AA} \leq \Lambda \leq 4000 \text{ \AA}$ bei $\alpha_f \geq \alpha_c$), so wird deutlich, daß die beobachtete diffuse Streuung bei großem lateralem Impulsübertrag von einer vergrabenen Grenzfläche stammt. Abbildung 3.13 zeigt horizontale Schnitte über die in Abb. 3.12 bezeichneten Bereiche unter- und oberhalb des kritischen Winkels. Probe A weist keine diffuse Streuung bei großen lateralen Impulsüberträgen auf, unabhängig vom Ausfallswinkel bzw. der Streutiefe. Dies würde nach den bisher aus den AFM-Aufnahmen und der diffusen Streuung *in* der Einfallsebene bestimmten lateralen Korrelationslängen in der Größenordnung von μm auch nicht erwartet. Im Gegensatz dazu wird der 'Flügel' diffuser Streuung von Probe B nochmals im Schnitt für $\alpha_i \geq \alpha_c$ sichtbar: Hier tritt eine deutliche Schulter bei $q_y \approx 0.02 \text{ \AA}^{-1}$ auf, die einer lateralen Korrelationslänge von 320 \AA entspricht. Diese kurzwellige Rauigkeit ist nicht an der Oberfläche repliziert und wird dem Relaxationsprozeß in dieser Probe zugeschrieben.

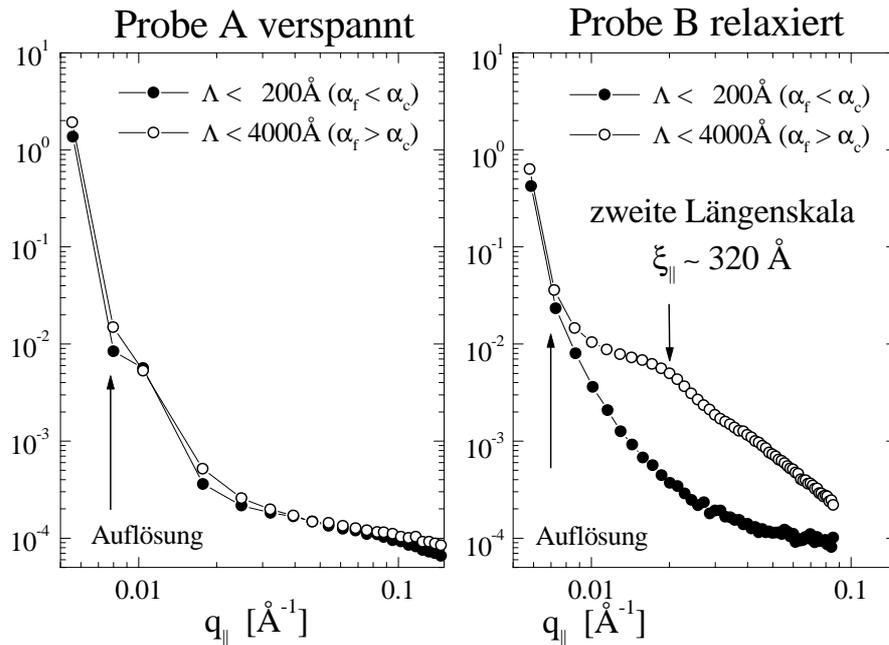


Abb.3.13. Horizontale Schnitte an den in Abb. 3.12 bezeichneten Positionen für verschieden Streutiefe Λ . Probe A zeigt praktisch keine diffuse Streuung bei $q_{\parallel} > 0.01 \text{ \AA}^{-1}$. Probe B weist für große Streutiefe eine Schulter im Zerfall der diffusen Streuung bei $q_{\parallel} \approx 0.02 \text{ \AA}^{-1}$ auf.

3.6 Diskussion und Zusammenfassung

Vergleicht man die Ergebnisse aus der Rasterkraftmikroskopie mit jenen aus der diffusen Röntgenstreuung, findet man teils eine gute Übereinstimmung, teils aber auch Abweichungen, die diskutiert werden müssen.

- **Anisotropie der Rauigkeit:** In Übereinstimmung mit den AFM-Ergebnissen zeigt auch die Röntgenstreuung, insbesondere die spekuläre Reflektivität eine Anisotropie der Rauigkeit entlang der $\langle 110 \rangle$ und $\langle 100 \rangle$ Richtung. (Aus der diffusen Streuung selbst kann diese Erkenntnis nicht abgeleitet werden, da infolge der Verbreiterung des Strukturfaktors mit dem senkrechten Impulsübertrag q_z diese Anisotropie verwischt wird. Die RSMs der *diffusen* Streuung in $\langle 110 \rangle$ und $\langle 100 \rangle$ Richtung sind voneinander nicht zu unterscheiden.)
- **Morphologie der Rauigkeit:** Bei der pseudomorphen Probe A finden wir eine gute Übereinstimmung zwischen AFM und Röntgenstreuung. Die Berechnung der Höhen-Differenzfunktion aus den AFM-Daten liefert einen Rauigkeitsexponenten von $H = 0.84$ bis $H = 0.89$. Dieser Wert

liegt nahe bei eins. Nimmt man für die Auswertung des Strukturfaktors in der Einfallsebene einen Exponenten $H = 1$ an, erhält man für die Proportionalitätskonstante A einen Wert in der gleichen Größenordnung wie aus den AFM-Daten (1.9×10^{-4} bzw. 1.4 bis 2.5×10^{-4}). Dies ist in guter Übereinstimmung mit dem Ergebnis von *Mou* und *Hsu* [92]. In ihren AFM-Untersuchungen an MBE- und CVD-gewachsenen relaxierten $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$ -Puffern fanden diese Autoren ein universelles Skalverhalten mit Rauigkeitsexponenten $H = 1$ und A im Bereich von 0.1 bis 6×10^{-4} . Man darf daher annehmen, daß die Rauigkeitsmorphologie des Puffers beim Wachstum der pseudomorphen Probe A durch den gesamten Schichtstapel repliziert wurde, wie dies auch durch die ausgeprägte q_z -Modulation der diffusen Streuung nahegelegt wird.

Im Gegensatz zum pseudomorphen Schichtsystem wurden bei der relaxierten Probe B Abweichungen zwischen den Ergebnissen aus AFM und Röntgenstreuung beobachtet. Die aus den AFM-Daten der Oberflächenmorphologie gewonnene Konstante $A = 1.7$ bis 5.7×10^{-3} weicht um eine Größenordnung von dem Röntgenergebnis $A = 2.6 \times 10^{-4}$ ab. Zudem läßt der Rauigkeitsexponent $H = 0.6$ der Oberfläche die Annahme $H = 1$ für die Auswertung der Röntgenstreuung weniger gut gerechtfertigt erscheinen. Hier zeigt aber die q_z -Abhängigkeit der diffusen Streuung eine schwächer ausgeprägte Replikation der Rauigkeit, so daß die AFM-Ergebnisse für die *Oberfläche* nicht direkt mit der über die Grenzflächen *mittelnden* Röntgenstreuung verglichen werden dürfen. Zudem zeigte die Röntgenstreuung außerhalb der Einfallsebene bei dieser Probe eine zweite Längenskala der Rauigkeit.

- **Zweite Längenskala:** Die typische laterale Längenskala der Rauigkeitsmorphologie des beobachteten 'cross-hatch' beträgt 0.5 bis $1 \mu\text{m}$, wie in Übereinstimmung von AFM und diffuser Röntgenstreuung in der Einfallsebene gezeigt werden konnte. Bei der relaxierten Probe B wurde zusätzlich an der vergrabenen Grenzfläche Rauigkeit auf einer lateralen Längenskala von 300 \AA gefunden (diffuse Streuung außerhalb der Einfallsebene). Diese kurzwellige Rauigkeit wird nicht an der Oberfläche repliziert und ist daher nicht für AFM-Untersuchungen zugänglich. Sie liegt auf der gleichen Längenskala wie die Fermi-Wellenlänge von freien Ladungsträgern in diesem Materialsystem und ist daher für technologische Anwendungen relevant.

Kapitel 4

Diffuse Streuung und Ausscheidungsstreuung an $\text{Si}_{1-x}\text{C}_x$ -Epischichten und β -SiC-Ausscheidungen

Die Bindungslänge zwischen einem Si-Atom und einem C-Atom ist deutlich kürzer als die Bindungslänge zwischen zwei Si-Atomen. Entsprechend beträgt die Gitterkonstante in der Zinkblende-Struktur von β -SiC nur 4.356 Å gegenüber 5.431 Å im Si-Gitter [3]. Wird Kohlenstoff auf substitutionellen Gitterplätzen in einem Si-Wirtsgitter eingebaut, so schrumpft das mittlere Gitter infolge des langreichweitigen Verzerrungsfeldes eines solchen Defektatoms. Substitutionelle $\text{Si}_{1-x}\text{C}_x$ - und $\text{Si}_{1-x-y}\text{Ge}_x\text{C}_y$ -Legierungsschichten eröffnen damit einen zusätzlichen Freiheitsgrad, um den intrinsischen Gitterparameter einer Schicht und damit deren pseudomorphe Verspannung auf einem Substrat unabhängig vom Germaniumgehalt einzustellen. Typische Anwendungen solcher Legierungsschichten sind dicke spannungskompensierte $\text{Si}_{1-x-y}\text{Ge}_x\text{C}_y$ -Schichten [95], zugverspannte $\text{Si}_{1-x}\text{C}_x$ - und $\text{Si}_{1-x-y}\text{Ge}_x\text{C}_y$ -Epischichten [96] und symmetrisch verspannte Supergitter [97], die direkt auf einem Si(001)-Substrat gewachsen werden können und daher kein aufwendig herzustellendes Puffersystem erfordern. Aufgrund des großen Unterschieds in der Bindungslänge ist das Gitter in der Nähe eines substitutionellen C-Atoms so stark deformiert, daß die Beweglichkeit von 'misfit'-Versetzungen in verspannten $\text{Si}_{1-x-y}\text{Ge}_x\text{C}_y$ -Legierungen verringert ist [98]. Die kritische Schichtdicke in $\text{Si}_{1-x-y}\text{Ge}_x\text{C}_y$ -Schichten wird dadurch zusätzlich erhöht und die Dichte von Nadelversetzungen verringert [99].

Die Hauptschwierigkeit beim Wachstum von $\text{Si}_{1-x}\text{C}_x$ -Schichten ist die sehr geringe thermodynamische Gleichgewichtslöslichkeit von Kohlenstoff in Si ($x_{max} \approx 10^{-5}$ C/Si am Schmelzpunkt von Si [3]). Nennenswerte C-Konzentrationen von einigen Prozent können nur durch Einfrieren einer erhöhten sogenannten Oberflächenlöslichkeit von Kohlenstoff auf der Si-Oberfläche [100] erreicht werden.

Dies ist durch kinetisch limitiertes Wachstum fernab vom thermodynamischen Gleichgewicht gegeben, wie z.B. durch 'remote plasma' CVD [101], Molekularstrahlepitaxie (MBE) [102, 103] und 'solid phase'-Epitaxie nach Implantation [104].

Osten *et al.* untersuchten den Einbau von Kohlenstoff während des Wachstums [105] in einem Temperaturbereich zwischen 350 °C und 600 °C als Funktion der Wachstumsrate und fanden, daß sowohl niedrige Temperaturen als auch kleine Wachstumsraten den substitutionellen Einbau begünstigen. Für perfektes epitaktisches Wachstum von substitutionellen $Si_{1-x}C_x$ -Epischichten [106] ergibt sich ein enges Temperaturfenster: Einerseits erfordert epitaktisches Wachstum ausreichend hohe Temperaturen oberhalb von 450 °C, um eine *kristalline* Schicht herzustellen, andererseits verringert sich der Anteil an substitutionell eingebautem Kohlenstoff drastisch bei höheren Temperaturen. So wurde durch IR-Absorptionsspektroskopie die Bildung von β -SiC-Ausscheidungen während des Wachstums bei 600 °C nachgewiesen.

Ist eine $Si_{1-x}C_x$ -Epischicht erst einmal erfolgreich gewachsen, so stellt sich die Frage nach ihrer thermischen Stabilität bei hohen Temperaturen, wie sie üblicherweise bei verschiedenen Prozeßschritten in der industriellen Bauelementefertigung erreicht werden. Das Ausheizverhalten nach dem Wachstum wurde von zahlreichen Gruppen untersucht: Dabei wurde keine Relaxation, d.h. kein Verlust an substitutionellem Kohlenstoff bei kurzem Ausheizen unterhalb von 800 °C gefunden [107, 108]. Bei höheren Temperaturen bis 1050 °C wurde ein wesentlicher Verlust an substitutionellem Kohlenstoff durch Röntgenbeugung und Raman-Spektroskopie nachgewiesen [106], wobei durch SIMS¹-Untersuchungen ein Heraus-Diffundieren des Kohlenstoffs aus der Schicht ausgeschlossen wurde. Dagegen zeigte Beugungs-Transmissionselektronenmikroskopie inkohärente, d.h. relaxierte sphärische β -SiC-Ausscheidungen von einheitlicher Größe, die jedoch die gleiche kristallographische Orientierung aufwiesen wie das Wirtsgitter. Der Durchmesser der Ausscheidungen erwies sich als ausschließlich abhängig vom ursprünglichen Kohlenstoffgehalt und betrug 3 bis 7 nm (für einen C-Gehalt von 0.5% bis 5%) [109, 110]. Offenbar wird Kohlenstoff aus einer Umgebung konstanter Größe „eingesammelt“, was auf eine diffusionsbegrenzte Nukleation hinweist. Diese These wird auch durch das exponentielle Zeitverhalten der Relaxation erhärtet, die einem Arrhénius-Gesetz gehorcht [111].

4.1 Zielsetzung

Im Rahmen dieser Arbeit soll die thermische Stabilität des substitutionellen Kohlenstoffs und die Bildung von β -SiC-Ausscheidungen in $Si_{1-x}C_x$ -Epischichten nach Tempern ex-situ als Funktion des ursprünglichen Kohlenstoffgehalts und der

¹Secondary Ion Mass Spectroscopy

Temperaturbehandlung durch Röntgenstreuung untersucht werden. Im Vordergrund stehen dabei neben dem substitutionellen Kohlenstoffgehalt das Verzerrungsfeld und die Unordnung, die durch die substitutionellen Defektatome hervorgerufen wird, sowie die Größe und Konzentration der β -SiC-Ausscheidungen. Aus der Sicht der Streutheorie ergeben sich dabei folgende Aspekte:

- **Substitutioneller Kohlenstoffgehalt:** Der Einbau substitutioneller Defektatome bewirkt zunächst eine Verringerung des mittleren Gitterparameters der $\text{Si}_{1-x}\text{C}_x$ -Legierung. Im Falle einer pseudomorphen Schicht auf einem Substrat kann das Gitter jedoch nur senkrecht zur Grenzfläche relaxieren, parallel zur Grenzfläche wird der Epischicht die Gitterkonstante des Substrats aufgeprägt. Der vertikale Gitterparameter und damit der substitutionelle Kohlenstoffgehalt kann durch koplanare Beugung bestimmt werden.
- **Verzerrungsfeld:** Neben der mittleren Kontraktion des Gitters bewirkt das langreichweitige Verzerrungsfeld der stochastisch verteilten Defektatome eine Abweichung vom perfekten Gitter. Diese Unordnung kann über die diffuse Huang-Streuung in der Umgebung des Braggreflexes beobachtet werden. Da die untersuchten Schichten nur einige hundert Ångström dick sind, muß die diffuse Streuung oberflächensensitiv unter streifenden Ein- und Ausfallswinkeln untersucht werden, um Streubeiträge aus dem Substrat gering zu halten.
- **β -SiC-Ausscheidungen:** Die Bildung von inkohärenten Ausscheidungen in der Epischicht hat einen zweifachen Effekt auf das Streusignal: Einerseits erzeugen sie ein weiteres Bragg-Maximum am entsprechenden reziproken Gitterpunkt des β -SiC-Kristalls. Form und Intensität dieses Reflexes ergeben Aufschluß über Größe und Konzentration der Ausscheidungen. Zum anderen wird aber auch die diffuse Streuung in der Umgebung des Braggreflexes der Epischicht moduliert. Die Ausscheidungen verhalten sich wie Löcher in der perfekten Matrix und bewirken aufgrund des Babinet'schen Prinzips eine durch den Formfaktor der Ausscheidungen induzierte diffuse Streuung in der Umgebung des Epischicht-Reflexes.

Die Untersuchungen fanden in enger Zusammenarbeit mit dem Institut für Halbleiterphysik der Johannes Kepler Universität Linz statt. Die Proben wurden in Linz hergestellt, der Temperaturbehandlung unterzogen, sowie deren substitutioneller Kohlenstoffgehalt durch koplanare Beugung bestimmt. Der Schwerpunkt dieser Arbeit lag auf der Untersuchung der diffusen Streuung unter streifendem Einfall, die während verschiedener Meßzeiten an Instrumenten am HASYLAB, Hamburg und an der ESRF², Grenoble, durchgeführt wurde.

²European Synchrotron Radiation Facility

4.2 Probenserie

Zur Untersuchung stand eine systematische Probenserie zu Verfügung. Bei der Bestimmung der defektinduzierten Huang-Streuung ist es besonders wichtig, die Streuintensitäten miteinander zu vergleichen, insbesondere muß von der gemessenen diffusen Streuung der $Si_{1-x}C_x$ -Schicht der Beitrag der thermisch diffusen Streuung (TDS) abgezogen werden. Dies geschieht, indem eine Leermessung an einer reinen Si-Schicht durchgeführt wird. Um den Einfluß von Substratfehlorientierung und anderen Faktoren auf die diffuse Streuung zu eliminieren, wurden alle Proben auf dem selben Substrat-Wafer hergestellt. Dazu wurde zunächst ein Si(001) 'float-zone' Wafer in vier Stücke geteilt. Auf diesen Stücken wurden dann die Schichten gewachsen. Nach einer Reinigung und einem abschließenden Ausheizen wurde zunächst eine ca. 950 Å dicke Si-Pufferschicht beginnend bei einer Wachstumstemperatur von 500 °C aufgebracht. Während des Wachstums der Pufferschicht wurde die Temperatur kontinuierlich auf 450 °C abgesenkt, dann wurden die eigentlichen Epischichten mit einem nominellen Kohlenstoffgehalt von 0, 0.7, 1.1 und 1.5% abgeschieden. Die nominelle Schichtdicke der Epischicht beträgt 950 Å.

Tabelle 4.1. Probenserie zur Untersuchung der Huang-Streuung

Probe	Tempern	x vor Tempern	x nach Tempern	Rauhigkeit [Å]
M-SC 558	A	-	1.47%	2.5
	B	600 °C 1h	1.45%	1.8
	C	800 °C 1h	1.50%	8.0
	D	1000 °C 1h	1.49%	200
M-SC 559	A	-	0%	
	B	600 °C 1h	0%	
	C	800 °C 1h	0%	
	D	1000 °C 1h	0%	
M-SC 560	A	-	0.70%	
	B	600 °C 1h	0.71%	-
	C	800 °C 1h	0.68%	0.66%
	D	1000 °C 1h	0.67%	0%
M-SC 561	A	-	1.17%	
	B	600 °C 1h	1.11%	1.12%
	C	800 °C 1h	1.16%	0.99%
	D	1000 °C 1h	1.11%	0%

Die so hergestellten Proben wurden dann jeweils in vier Stücke gespalten und der Gitterparameter der Epischicht durch Röntgenbeugung am (004)-Reflex

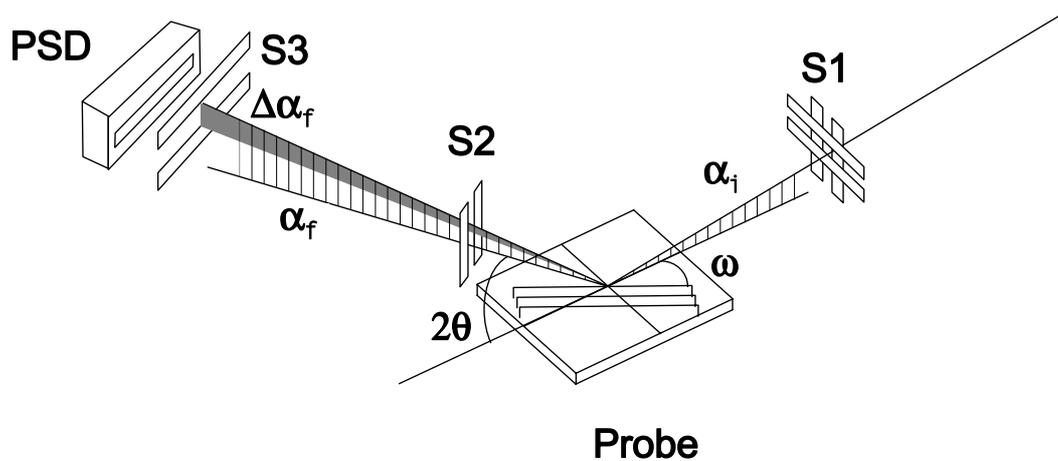


Abb. 4.1. Experimenteller Aufbau zur Messung der diffusen Huang-Streuung unter streifendem Einfall.

bestimmt. Anschließend wurden die Proben der Temperaturbehandlung unterzogen. Zu jeder C-Konzentration wurde jeweils ein Stück 60 min bei 600 °C, 800 °C und 1000 °C getempert, das vierte Stück wurde nicht behandelt ('as grown').

Nach der Temperaturbehandlung wurde der Gitterparameter aller Teilstücke wiederum am (004)-Reflex bestimmt und daraus der substitutionelle Kohlenstoffgehalt bestimmt. Der Berechnung des Kohlenstoffgehalts liegt das theoretische Modell von P.C. Kelires [112] zugrunde, das die experimentell beobachtete Abweichung des Gitterparameters von der Vegardschen Interpolation zwischen Si und Diamant bzw. β -SiC in $\text{Si}_{1-x}\text{C}_x$ -Legierungen gut wiedergibt [113]. An der 1.5% C Probe wurden zudem AFM-Messungen der Oberflächenmorphologie durchgeführt. Dabei wurde eine dramatische Zunahme der Rauigkeit von 2 Å auf 200 Å nach Tempern bei 1000 °C festgestellt. Die Probenparameter sind in Tabelle 4.1 zusammengefaßt.

4.3 Experimenteller Aufbau

Die typischerweise sehr geringen Streuintensitäten, wie sie bei der Beugung unter streifendem Ein- und Ausfall auftreten, erfordern eine hohe Primärintensität. Insbesondere die Untersuchung der *diffusen* Streuung in der Umgebung von Oberflächenreflexen macht die Nutzung von Synchrotronstrahlungsquellen unabdingbar. Selbst an einem Ablenkmagneten ist die Primärintensität nicht ausreichend, alle Messungen wurden daher an den Wiggler W1 und BW2 am HASYLAB, Hamburg und an den Undulatoren ID3 und ID10B an der ESRF, Grenoble,

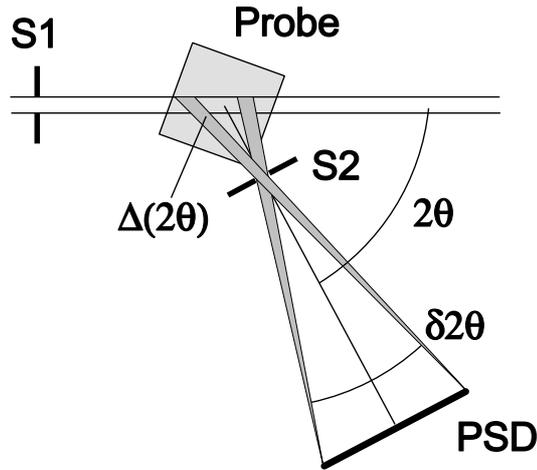


Abb.4.2. Auflösung und Abbildungseigenschaften des experimentellen Aufbaus. Die Auflösung ist hauptsächlich durch die Blende S2 bestimmt, die Pixel-Auflösung des Detektors von 50 bis 100 μm ist vernachlässigbar.

durchgeführt.

Zur Messung der diffusen Streuung wurde ein experimenteller Aufbau verwendet (Abb. 4.1), wie er im wesentlichen auf *Grotehans et al.* [56] zurückgeht. Der monochromatisierte und kollimierte Röntgenstrahl wird durch ein Blenden-system S1 definiert und trifft unter dem streifenden Einfallswinkel α_i auf die Probe, deren Netzebenen einen Winkel ω mit der Einfallsebene der Strahlung einschließen. Die gestreuten Photonen werden unter dem Streuwinkel 2θ registriert. Um den geringen Streuintensitäten Rechnung zu tragen, wird hierfür ein eindimensionaler positionsempfindlicher Detektor (PSD) verwendet, der parallel zur Oberfläche angebracht ist und somit die simultane Aufzeichnung der Intensität über einen Bereich $\delta 2\theta$ von Streuwinkeln erlaubt. Die Auflösung in $\Delta(2\theta)$ ist durch die Blende S2 gegeben, die in dieser Geometrie als abbildende Lochblende fungiert. Daher muß der Abstand zwischen der Probe und der Blende S2 abhängig vom Abstand zum Detektor und vom Streuwinkel stets so klein gewählt werden, daß nur die beleuchtete Fläche auf der Probe in den Detektor abgebildet wird (Abb. 4.2). Die gestreute Intensität wird über einen Ausfallswinkelbereich $\Delta\alpha_f$ integriert, der durch die Blende S3 unmittelbar vor dem Detektor definiert ist (Abb. 4.1). Für die Messungen wurde ein Einfallswinkel α_i von $1.5\alpha_c$ gewählt und die Intensität von α_c bis $3\alpha_c$ in α_f integriert.

Die Proben wurden mit einem Ansaughalter an das Goniometer befestigt, die Oberflächennormale wurde mit einem Laser parallel zur ω -Achse des Diffraktometers eingerichtet. Dieses Verfahren erlaubte ein rasches und sehr reprodu-

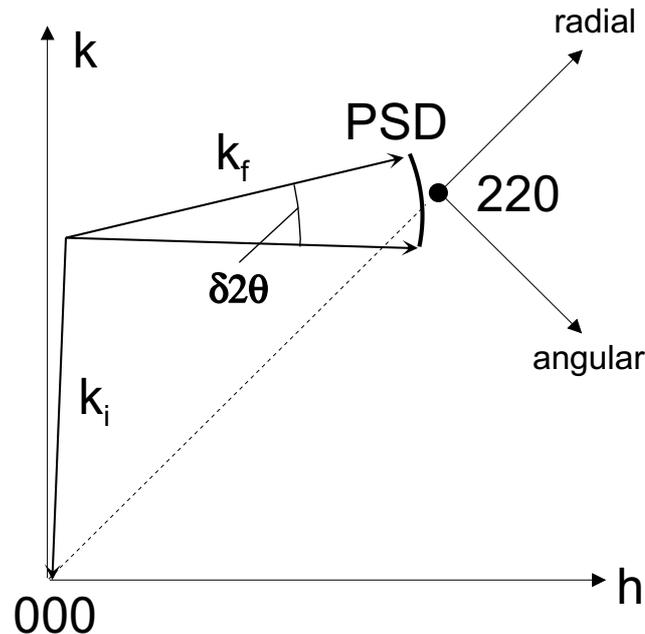


Abb. 4.3. Der experimentelle Aufbau im reziproken Raum. Der PSD überdeckt einen Streifen, der durch entsprechende Veränderung der Winkel ω und 2θ in radialer und angularer Richtung verschoben werden kann. Die zusammengesetzten Daten ergeben dann eine Kartierung des reziproken Raumes in der Umgebung des (220)-Oberflächenreflexes.

zierbares Wechseln und Justieren der Proben. Es zeigte sich, daß durch eine Helium-gespülte Probenumgebung der Untergrund der Luftstreuung um einen Faktor 10 verringert werden konnte.

Die zugehörige Situation im reziproken Raum ist in Abbildung 4.3 dargestellt. Der PSD überdeckt einen Streifen, der durch $\omega/2\theta$ - und ω -Messungen in radialer bzw. angularer Richtung um den (220)-Oberflächenreflex verschoben werden kann.

Für die detaillierten Messungen am β -SiC-Reflex wurde der PSD senkrecht zur Oberfläche, d.h. entlang des Ausfallswinkels α_f angebracht und die Intensität über den gesamten Detektor integriert.

4.4 Messungen und Ergebnisse

Dieser Abschnitt stellt die experimentellen Ergebnisse vor. Zunächst wird ein qualitativer Überblick über die Messungen gegeben, dann werden die Daten und deren Auswertung im einzelnen dargestellt.

Abbildung 4.4 zeigt die Streuintensität in der Umgebung des Si(220)-Oberflächenreflexes der 1.5% C Probe nach einstündigem Tempern bei 1000°C. Die

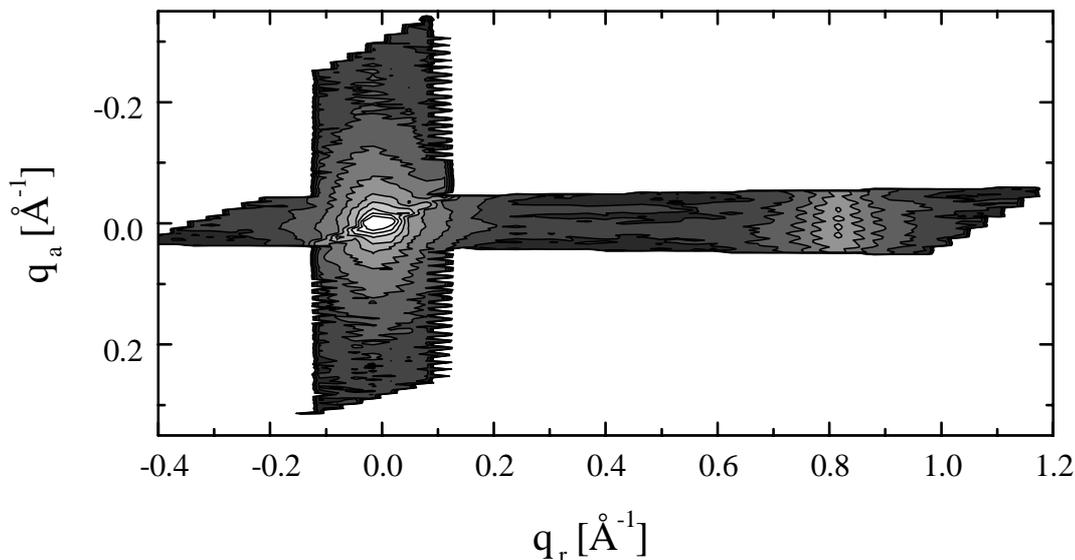


Abb.4.4. RSM der diffusen Streuung in der Umgebung des Si(220)-Oberflächenreflexes der Probe M-SC 558D (1.5% C, 1000 °C). Die Daten wurden aus angularen und radialen Messungen zusammengesetzt. Die Koordinaten bezeichnen den radialen bzw. angularen Abstand vom Siliziumreflex. Neben der diffusen Streuung in der Umgebung des Si(220)-Reflexes ist ein deutliches Maximum bei $q_r \approx 0.8 \text{ \AA}^{-1}$ zu erkennen, das von den β -SiC-Ausscheidungen stammt (BW2, HASYLAB).

Daten wurden aus angularen und radialen Messungen zu einer Kartierung des reziproken Raumes (RSM) zusammengesetzt. Neben der diffusen Streuung am Si(220)-Reflex ist ein weiteres Maximum erkennbar, das von den in dieser Probe gebildeten Ausscheidungen stammt.

Durch die aufgenommenen Datensätze wurden Schnitte gelegt, um den Verlauf der gestreuten Intensität entlang der radialen und angularen Richtung im reziproken Raum zu untersuchen. Abbildung 4.5 zeigt die gestreute Intensität von den verschiedenen Teilstücken der 1.5% C-Probe nach dem Tempern im Vergleich mit reinem Si als Funktion des radialen Impulsübertrages. Deutlich ist zu erkennen, wie sich mit zunehmender Temperatur ein zunächst sehr schwacher β -SiC-Reflex zu einem ausgeprägten Maximum entwickelt. Unerwartet ist hierbei, daß schon bei der unbehandelten ('as grown') Probe ein Karbid-Reflex beobachtet wird.

Im folgenden Abschnitt wird die durch die substitutionellen Punktdefekte (Huang-Streuung) und die durch den Formfaktor der Ausscheidungen ('Loch-Streuung') hervorgerufene diffuse Streuung in der unmittelbaren Umgebung des Si(220)-Reflexes diskutiert. Danach werden die Messungen am Ausscheidungsreflex selbst vorgestellt und die Größenverteilung und Konzentration der Ausscheidungen bestimmt.

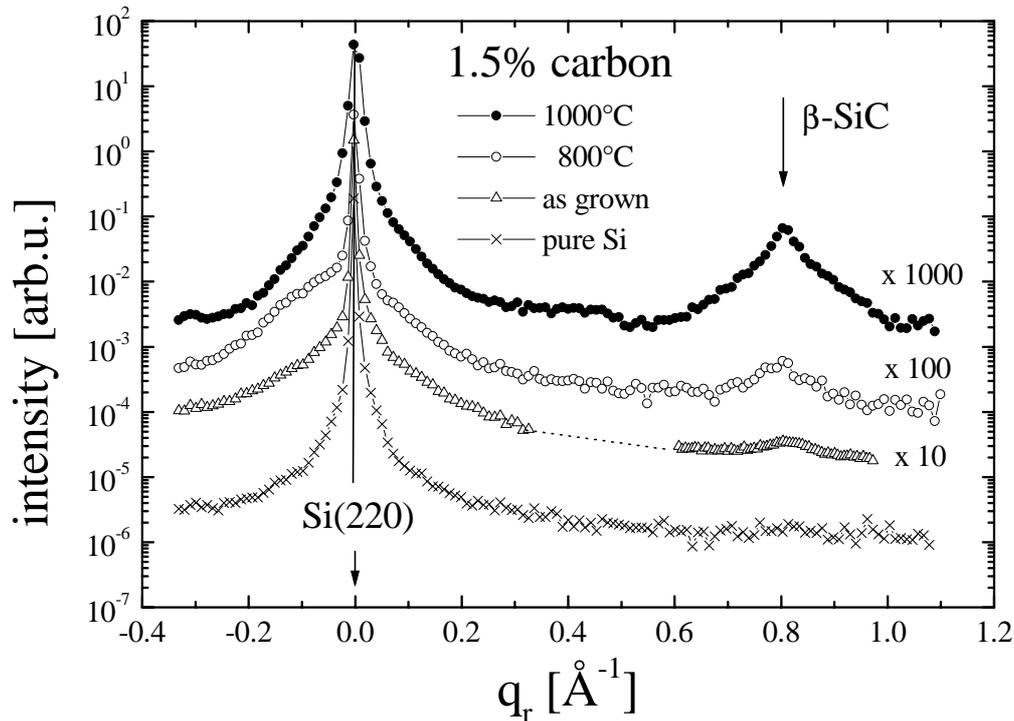


Abb. 4.5. Streuintensität von einer $\text{Si}_{1-x}\text{C}_x$ -Epischicht mit 1.5% Kohlenstoffgehalt (M-SC 558) (as grown, 800 °C und 1000 °C) im Vergleich mit reinem Silizium in der Umgebung des (220)-Si-Oberflächenreflexes als Funktion des radialen Impulsübertrages. Die Meßdaten sind der besseren Übersicht wegen jeweils um einen Faktor 10 verschoben. Neben dem Si-Oberflächenreflex ist schon bei der unbehandelten $\text{Si}_{1-x}\text{C}_x$ -Schicht ein sehr schwaches Maximum an der Position des β -SiC-(220)-Reflexes erkennbar, das durch Tempern zu einem deutlichen Reflex wächst. (BW2, HASYLAB, und ID10B, ESRF).

4.4.1 Bragg-Streuung (GID)

Zur Charakterisierung der Proben wurden konventionelle GID-Messungen am Si(220)-Oberflächenreflex (Instrument D4, HASYLAB, $\lambda = 1.604 \text{ \AA}$) durchgeführt (zur Streugeometrie vgl. Abbildung 2.11). Es wurde keinerlei Relaxation des lateralen Gitterparameters beobachtet, die Schichten sind perfekt pseudomorph. Die α_f -Spektren zeigen bei reinem Si und bei den unbehandelten $\text{Si}_{1-x}\text{C}_x$ -Schichten eine dynamische Verbreiterung³ des Maximums bei $\alpha_f = \alpha_c$, die durch den perfekten Kristall hervorgerufen wird. Nach dem Tempern wird das Profil kinematisch, d.h. es zeigt das erwartete scharfe Maximum des α_f -Profils am kritischen Winkel. Die erhöhte Rauigkeit nach der Behandlung bei 1000 °C spiegelt sich im

³Dynamische Effekte führen bei der Beugung zu einer endlichen Breite des Braggreflexes unter der sog. Darwin-Kurve. Unter streifenden Winkeln wird diese laterale Reflexverbreiterung durch die Projektion entlang des Ausfallswinkels α_f auch bei einer vergleichsweise schlechten lateralen Auflösung sichtbar [114].

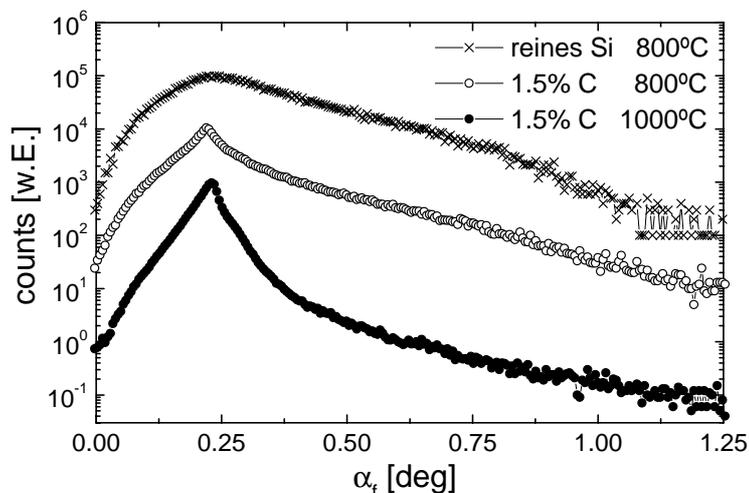


Abb.4.6. α_f -Spektren einer reinen Si-Schicht und der 1.5%-C Schichten nach Tempern bei 800 °C und 1000 °C gemessen am kritischen Winkel $\alpha_i = \alpha_c = 0.23^\circ$. Das Spektrum der reinen Si-Schicht ist dynamisch verbreitert und zeigt damit die hohe Qualität der MBE-gewachsenen Si-Pufferschicht. Beide $Si_{1-x}C_x$ -Schichten zeigen ein kinematisches Profil, nach 1000 °C ist der Abfall mit α_f durch die hohe Oberflächenrauigkeit bedingt stärker. (Die Spektren sind zur besseren Übersicht beliebig skaliert).

schnelleren Abfall der Intensität mit dem Ausfallswinkel α_f wider (Abb. 4.6).

Zudem wurde die unmittelbare Umgebung der Oberflächenreflexe untersucht. Die dazu notwendige hohe Auflösung wurde durch einen zusätzlichen Si(111)-Analysatorkristall in niedrig dispersiver Anordnung anstelle der Schlitzblenden vor dem PSD realisiert (TC-GID⁴). Abbildung 4.7 zeigt den Braggreflex und die diffuse Streuung in seiner Umgebung in angularer Richtung für 0.7% und 1.5% C aufgenommen bei $\alpha_i = \alpha_c$. Unter dem scharfen Braggmaximum wird nach dem Tempern ein breiter Untergrund beobachtet, der bei 0.7% C erst bei 1000 °C auftritt, bei 1.5% C bereits bei 800 °C. Die diffuse Streuung von Punktdefekten konnte in dieser Anordnung wegen der zu niedrigen Eingangsintensität nicht beobachtet werden.

4.4.2 Huang-Streuung

Die hier vorgestellten Ergebnisse beruhen auf Meßkampagnen, die im Juli 1998 am Instrument BW2 am HASYLAB, Hamburg, und im September 1998 am Instrument ID3 an der ESRF in Grenoble stattfanden. Wichtige Erfahrungen wurden im März 1997 an der Beamline ID10A (Troika I) an der ESRF gesammelt, die wesentlich zum nachfolgenden Erfolg beigetragen haben.

⁴Triple-Crystal-GID

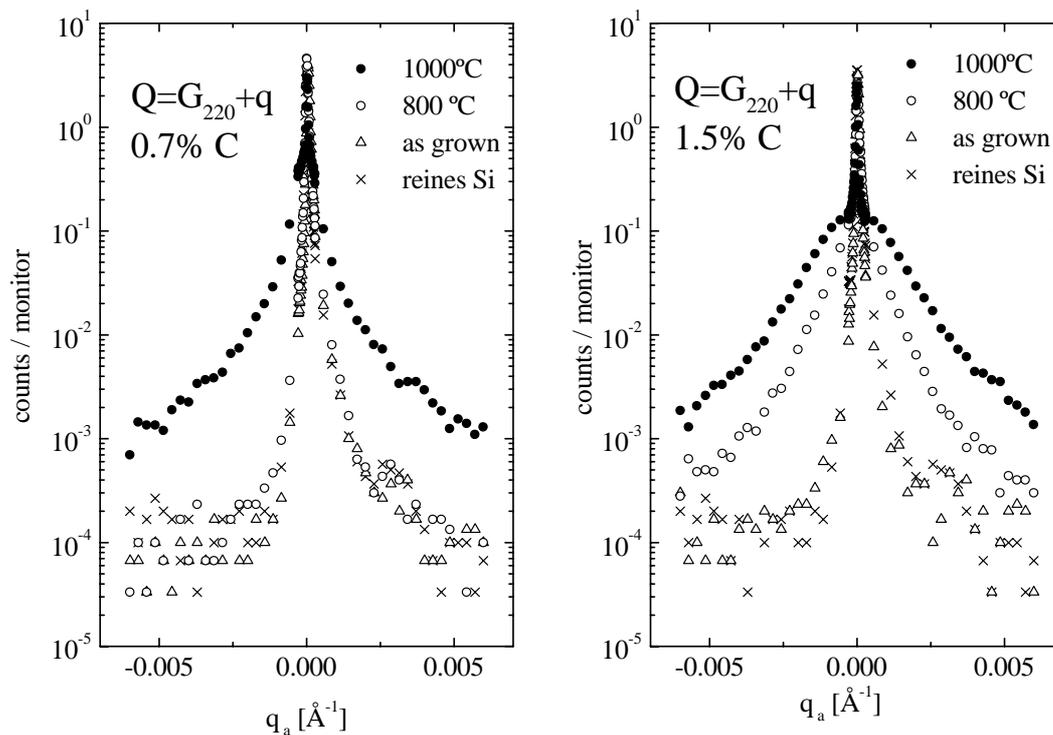


Abb.4.7. α_f -integrierte Intensität am Si(220)-Oberflächenreflex und diffuse Streuung in angularer Richtung. Die laterale Auflösung wurde durch einen Si(111)-Analysatorkristall erhöht. Neben dem scharfen Braggmaximum zeigen die Proben nach Tempern eine deutliche Erhöhung des Untergrundes, die bei 1.5% C schon bei 800 °C eintritt, bei 0.7% C erst bei 1000 °C.

Korrekturen der gemessenen Intensität

Vor der weiteren Auswertung wurden die in Abb. 4.5 gezeigten Daten korrigiert. Zunächst wurde die diffuse Streuung der reinen Si-Schicht abgezogen, um den Untergrund aus thermisch diffuser Streuung (TDS) zu eliminieren. Man geht davon aus, daß das Phononenspektrum und die thermisch diffuse Streuung durch den Einbau der hier betrachteten geringen Kohlenstoffgehalte nicht wesentlich beeinflusst wird. Eine Reihe von Q -abhängigen Korrekturfaktoren sind im folgenden aufgeführt:

- **Polarisation:** Der Einfluß der Polarisation auf die gestreute Intensität unter streifenden Ein- und Ausfallswinkeln ist vom experimentellen Aufbau abhängig. Die für die in dieser Arbeit geschilderten Experimente genutzte Synchrotronstrahlung ist linear in der Ringebene polarisiert. Bei einer experimentellen Anordnung mit der Einfallsebene senkrecht zur Ringebene (D4 am HASYLAB, ID3 und ID10A an der ESRF) ist die Intensität in

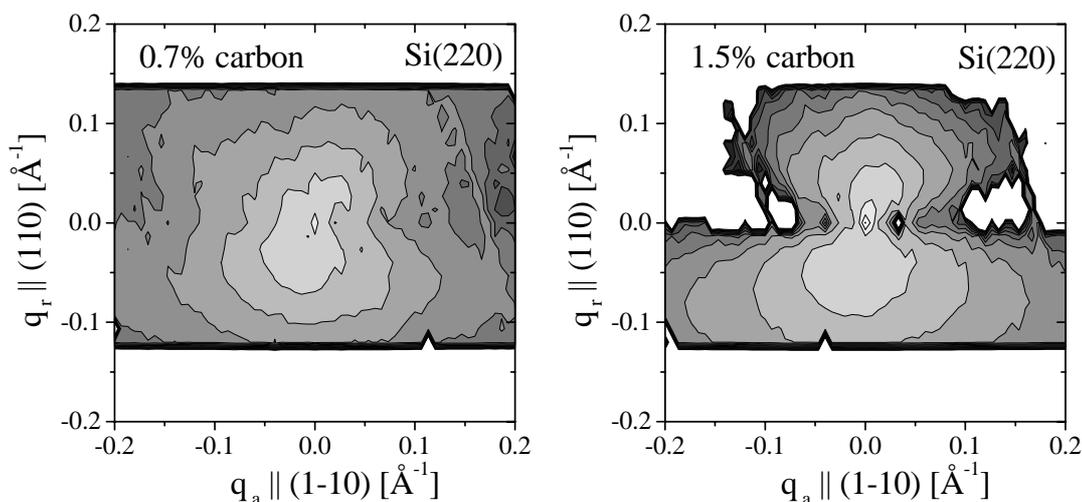


Abb.4.8. Defektinduzierte diffuse Streuung von unbehandelten $Si_{1-x}C_x$ -Episichten nach Subtraktion der thermisch diffusen Streuung von reinem Si. Bei 0.7% C ist eine schwache Einschnürung in der angularen Richtung q_a zu erkennen, die bei 1.5% C deutlich ausgeprägt ist. Die 'Doppeltropfen'-Form ist charakteristisch für Punktdefekte mit kubischem Dipolkrafttensor P_{ij} (ID3, ESRF).

erster Näherung [7] proportional zu $(\cos 2\theta)^2$. In einer Streugeometrie mit der Einfallsebene parallel zur Ringebene (W1, BW2 am HASYLAB, ID10B an der ESRF) ist die gestreute Intensität in erster Näherung unabhängig vom Streuwinkel 2θ .

- **Atomformfaktor:** Der Atomformfaktor $f(Q)$ liegt tabelliert in [38] vor. Zur Korrektur wurden die Werte interpoliert. (In zahlreichen Arbeiten in der Literatur wird $f(Q)$ konstant gleich $f(G_{hkl})$ gesetzt.)
- **Q^2 -Abhängigkeit:** Die Korrektur ist trivial. (Wird in der Literatur oft konstant gleich G_{hkl}^2 gesetzt.)
- **statischer Debye-Waller-Faktor:** Der statische DWF ist unbekannt. In einem konventionellen koplanaren Beugungsexperiment kann der statische DWF durch Normierung auf die integrierte Bragg-Intensität eliminiert werden. Dieses Verfahren ist hier nicht möglich: Am kritischen Winkel zeigt reines Si ein dynamisches Streuprofil, während die $Si_{1-x}C_x$ -Episichten kinematisch streuen. Die Intensität eines dynamisch streuenden Oberflächenreflexes ist jedoch erniedrigt gegenüber dem kinematischen Fall [114]. Daher können am kritischen Winkel die Bragg-Intensitäten von den verschiedenen Episichten nicht auf die reine Si-Referenz normiert werden. Ober-

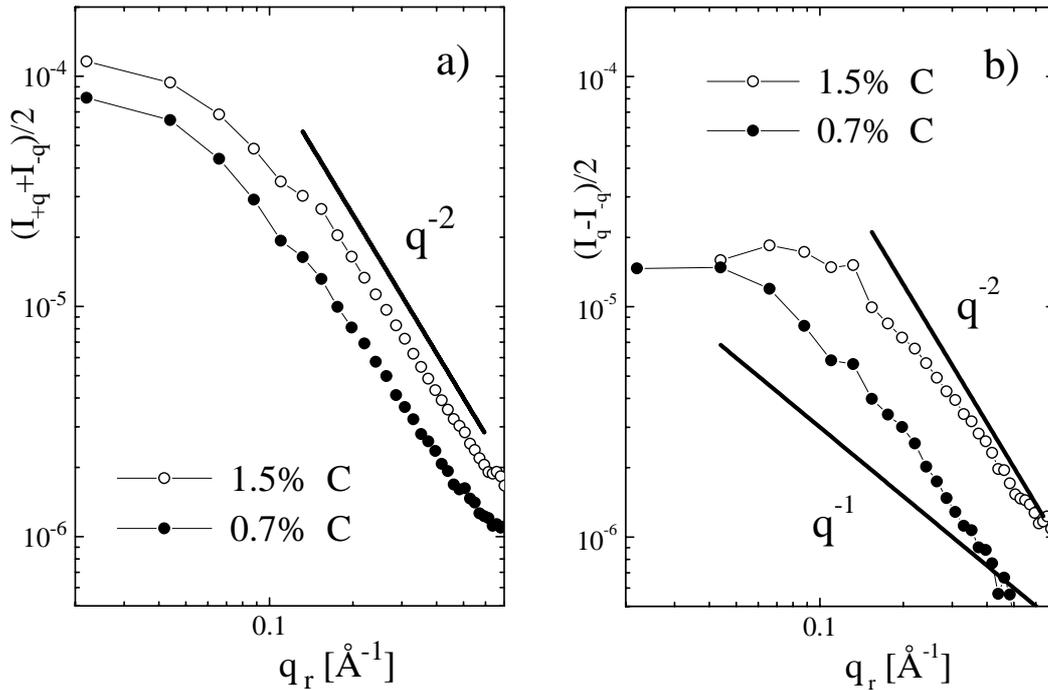


Abb.4.9. a) Symmetrischer Anteil der defektinduzierten diffusen Streuung bei unbehandelten $\text{Si}_{1-x}\text{C}_x$ -Schichten. Der Zerfall mit dem Abstand vom Reflex gehorcht einem q^{-2} Potenzgesetz und skaliert mit der Defektkonzentration. b) Antisymmetrischer Anteil. Die q -Abhängigkeit liegt zwischen q^{-1} und q^{-2} .

halb des kritischen Winkels wird die gebeugte Intensität jedoch stark durch die Oberflächenrauigkeit beeinflusst (Gl. 2.75). Da die Proben nach der thermischen Behandlung eine stark unterschiedliche Rauigkeit aufweisen, ist eine Normierung im kinematischen Beugungsregime ebenfalls nicht möglich.

Die ersten drei Korrekturen bewirken eine Asymmetrie der gemessenen Intensität, die in erster Näherung gut durch eine Gerade beschrieben wird. Daher fallen sie bei der Berechnung der symmetrischen Intensität $I(\mathbf{Q})_{\text{HDS}}$ heraus. Zu Berechnung des antisymmetrischen Anteils der diffusen Streuung $I(\mathbf{Q})_{\text{anti}}$ müssen sie jedoch berücksichtigt werden.

Symmetrie der Defekte

Aus der Richtungsverteilung der defektinduzierten diffusen Streuung können Rückschlüsse auf die Symmetrie des Defekts und seines Dipolkrafttensors gezogen

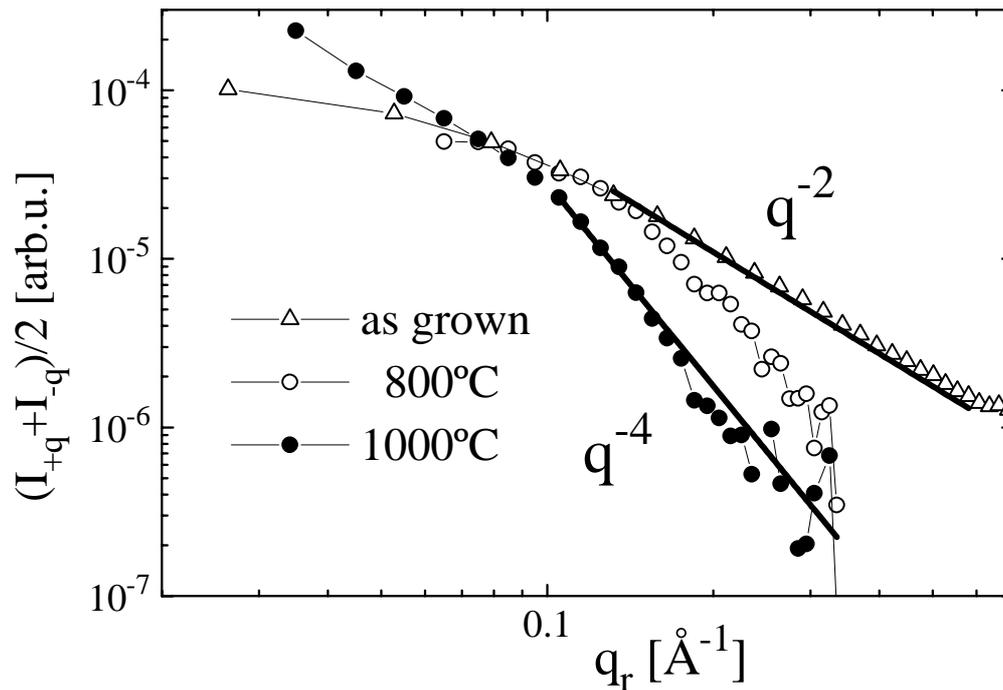


Abb.4.10. Defektinduzierter symmetrischer Anteil der diffusen Streuung von 1.5% C-Proben nach Tempern. Von der gemessenen Intensität wurde die Streuung von reinem Si abgezogen und die Q -abhängige Asymmetrie durch den Atomformfaktor $f(Q)$ und die Polarisation korrigiert. Bei der unbehandelten Probe findet man einen q^{-2} -Abfall, der nach dem Tempern in einen q^{-4} -Zerfall übergeht.

werden (vgl. Abschnitt 2.8.3 und Abb. 2.13). Die Verteilung der diffusen Streuung von ungetemperten $\text{Si}_{1-x}\text{C}_x$ -Epischichten nach Abzug der thermisch diffusen Streuung (TDS) der reinen Si-Referenzprobe ist in Abb. 4.8 gezeigt. Bei 0.7% Kohlenstoffgehalt ist eine schwache Einschnürung der Isointensitätskonturen in angularer Richtung zu erkennen. Bei der 1.5% Probe ist die Einschnürung deutlich ausgeprägt, die Richtungsverteilung zeigt die 'Doppeltropfen'-Form, wie sie für Punktdefekte mit kubischer Symmetrie erwartet wird. Obwohl die substitutionellen Gitterplätze im Si keine exakte kubische Symmetrie aufweisen, wird das langreichweitige Verzerrungsfeld offenbar gut durch einen Dipolkrafttensor mit kubischer Symmetrie beschrieben.

Huang-Streuung

Um die q -Abhängigkeit der defektinduzierten Streuung zu untersuchen, wurde das Untergrundsignal des reinen Siliziums abgezogen und die verbleibende Intensität in einen symmetrischen und antisymmetrischen Anteil aufgespalten. Abbildung 4.9 a) zeigt den Zerfall der symmetrischen Huang-Streuung von un-

behandelten 'as grown' Schichten: Es wird eine gute Übereinstimmung mit einem q^{-2} Potenzgesetz gefunden, wie es für die diffuse Streuung von Punktdefekten erwartet wird. Die Abweichung von q^{-2} bei kleinen $q_r < 0.1 \text{ \AA}^{-1}$ ist auflösungsbedingt [115]. Der antisymmetrische Anteil der diffusen Streuung ist in Abb. 4.9 b) gezeigt. Die erwartete q^{-1} -Abhängigkeit wird nicht beobachtet, vielmehr liegt der Zerfall zwischen q^{-1} und q^{-2} .

Abbildung 4.10 zeigt den symmetrischen Anteil der defektinduzierten diffusen Streuung von 1.5% C-Proben nach Tempern im Vergleich. Der q^{-2} -Zerfall bei der unbehandelten Probe geht in einen q^{-4} -Zerfall über. Dieser ist jedoch nicht auf Stokes-Wilson-Streuung infolge einer Agglomeration von substitutionellen Kohlenstoffatomen zurückzuführen, da die Probe nach Tempern bei 1000 °C bereits völlig relaxiert ist und keinen substitutionellen Kohlenstoff mehr enthält. Wie im folgenden Abschnitt gezeigt wird, ist vielmehr davon auszugehen, daß nach dem Tempern ein Übergang von der verzerrungsinduzierten zur *Formfaktor-induzierten* diffusen Streuung an Löchern in der Si-Matrix stattgefunden hat.

4.4.3 β -SiC-Reflex

Der β -SiC-Reflex wurde zunächst während der Meßzeit am BW2 bei den Proben nach Tempern bei 800 °C und 1000 °C nachgewiesen. Überraschend wurde während einer abschließenden Meßreihe am Undulator ID3 durch die sehr viel höhere Intensität auch an den unbehandelten Proben ein schwacher Karbid-Reflex sichtbar. Darauf wurden gezielt noch einmal alle Proben an einem Undulator untersucht: Die folgenden Messungen wurden im Februar 1999 am Strahlrohr ID10B (Troika II), ESRF, durchgeführt.

Abbildung 4.11 zeigt den Karbid-Reflex der Proben mit 0.7% und 1.5% anfänglichem substitutionellen Kohlenstoffgehalt. (An der 0.7% Schicht konnten alle vier Proben gemessen werden, bei 1.5% mußte aus zeitlichen Gründen auf die 600 °C Probe verzichtet werden.) Dabei fällt zunächst folgendes auf: Alle $\text{Si}_{1-x}\text{C}_x$ -Schichten zeigen ein Streusignal am β -SiC-Reflex. Die reine Si-Schicht zeigt keinerlei Streumaximum an dieser Position. Somit kann ausgeschlossen werden, daß das β -SiC-Maximum auf eventuelle Verunreinigungen während des Wachstums oder danach zurückzuführen sei.

Der β -SiC-Reflex befindet sich bei den Proben 0.7% 'as grown' und 600 °C auf einem Untergrund, der auf die Ausläufer der defektinduzierten Huang-Streuung zurückzuführen ist. Dieser Untergrund ist bei der 600 °C-Probe deutlich niedriger. Bei dieser Schicht ist aber keinerlei Verlust von substitutionellem Kohlenstoff nachgewiesen worden (vgl. Tab. 4.1). Die Abnahme des diffusen Untergrunds ist ein klarer Hinweis, daß nicht nur substitutionelle Kohlenstoffatome zur diffusen Streuung bei den 'as grown' Proben beitragen, sondern auch andere Wachstumsdefekte, die bei 600 °C ausheilen, ohne daß der substitutionelle Kohlenstoffgehalt abnimmt [116].

Die gemessene Streuintensität am β -SiC-Reflex kann in radialer Richtung

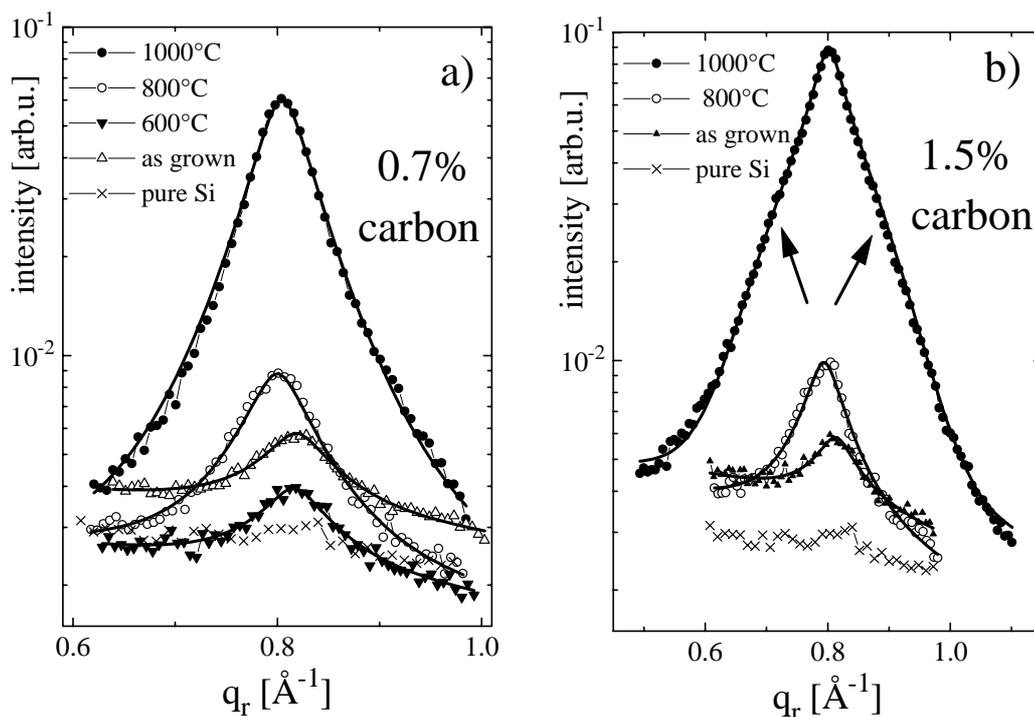


Abb.4.11. (220) Reflexprofil der β -SiC-Ausscheidungen in radialer Richtung für a) 0.7% und für b) 1.5% Kohlenstoffgehalt nach unterschiedlichem Tempern. Die durchgezogenen Linien zeigen Simulationsrechnungen nach Gl.(4.2).

perfekt durch eine Lorentz-Verteilung angepaßt werden. (Eine Ausnahme bildet nur die 1.5% C-Schicht nach Tempern bei 1000 °C: Hier ist eine Kombination aus Lorentz- und Gauß-Verteilung notwendig, um die Form des Maximums zu beschreiben.) Ein Lorentz-förmiges Profil kann nicht durch monodisperse β -SiC-Ausscheidungen erklärt werden. Eine Modulation der Reflexform durch eine Spannungsverbreiterung kann ausgeschlossen werden, da die Position des Maximums einem unverspannten β -SiC-Kristall mit einer Gitterkonstante von 4.36 Å entspricht [3]. Für die in Abb. 4.11 gezeigten Anpassungen der Daten wurde daher eine Größenverteilung für die β -SiC-Ausscheidungen angenommen.

In angularer Richtung (Abb. 4.12) sind die β -SiC-Reflexe gegenüber der radialen Richtung verbreitert und zeigen ein Gauß-förmiges Profil. Dieses kann durch eine leichte Mosaikverkipfung der Kristallite erklärt werden.

Um das gemessene radiale Reflexprofil zu erklären, betrachten wir zunächst den Formfaktor für die Streuung von N stochastisch verteilten Kugeln ohne Korrelationen untereinander. Die gestreute Intensität ist proportional zu ihrer An-

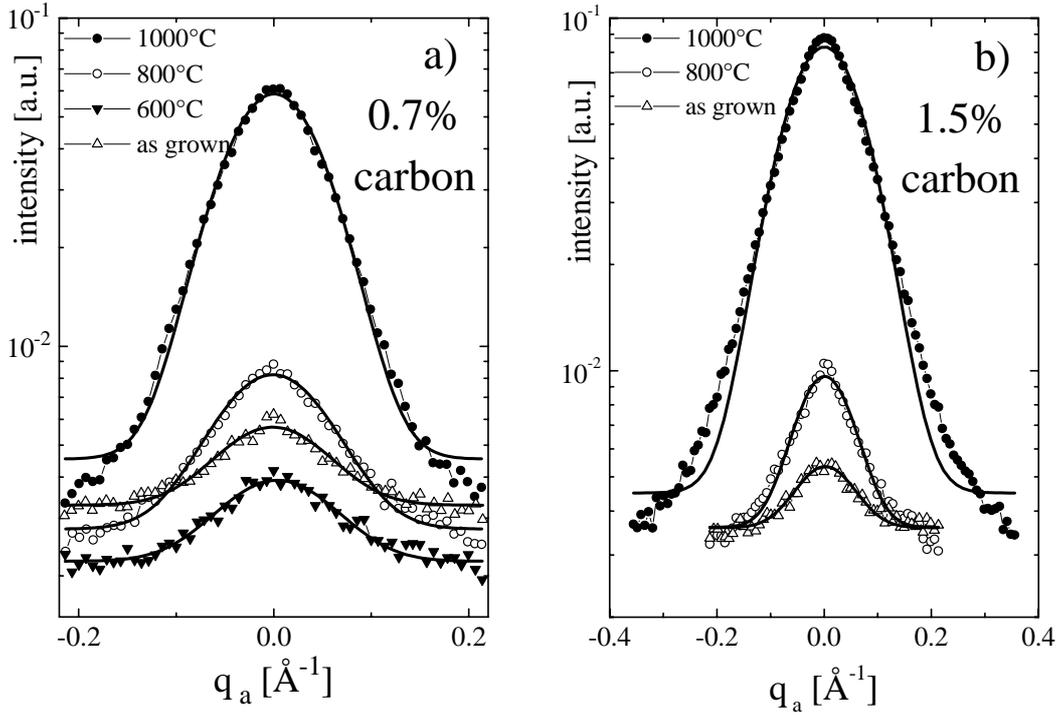


Abb.4.12. Angulare Verteilung der gestreuten Intensität am (220) Reflex der β -SiC-Ausscheidungen für a) 0.7% und für b) 1.5% Kohlenstoff. Das Maximum ist breiter als in radialer Richtung und wird durch eine Gauß-Verteilung gut angepaßt (durchgezogene Linie). Diese wird durch die Annahme einer Mosaikverkipfung der Kristallite erklärt.

zahl N und zum Quadrat ihres Volumens V [40]

$$I(q) \sim N V^2 S(q), \quad S(q) = \left[3 \frac{\sin qR - qR \cos qR}{(qR)^3} \right]^2. \quad (4.1)$$

Die Streufunktion $S(q)$ folgt aus der Fouriertransformation der Kugel. Im Fall von stochastisch verteilten Kugeln, deren Radius R einer Größenverteilung $f(R)$ gehorcht, ergibt sich die gestreute Intensität aus einer inkohärenten Summation über alle Streuer, oder im Falle einer kontinuierlichen Verteilung aus [117]

$$I(q) \sim \int dR f(R) R^6 S(q), \quad (4.2)$$

wobei $4\pi/3 \int dR f(R) R^3$ das gesamte Volumen aller Streuer ist. Als Verteilungsfunktion wurde eine Log-Normalverteilung

$$f(R) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \frac{1}{R\sigma} \exp\left\{-\frac{1}{2}[\ln(R/a)]^2 \sigma^{-2}\right\} \quad (4.3)$$

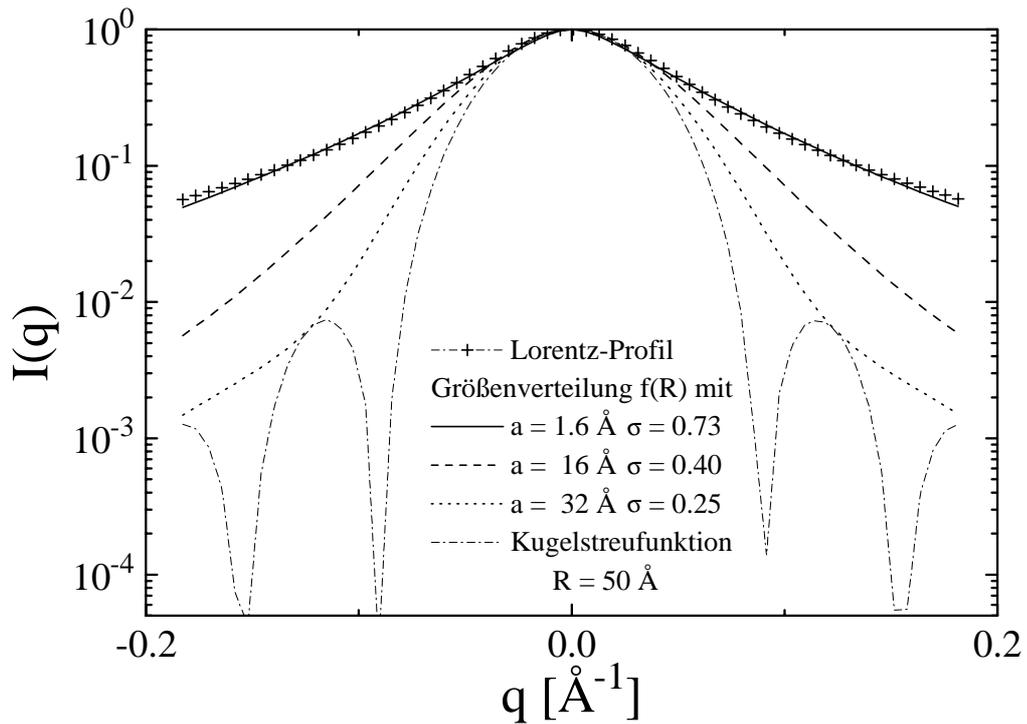


Abb.4.13. Simulation der Streuintensität für verschiedene Parametersätze a und σ der Log-Normalverteilung (vgl. Abb. 4.14) im Vergleich mit einem Lorentz-Profil und der Kugelstreuungsfunktion für monodisperse Ausscheidungen mit Radius $R = 50 \text{ \AA}$. Die berechneten Intensitäten sind auf eins normiert.

angenommen, die durch den Mittelwert a und die Breite σ charakterisiert ist.

Das Profil des Streuquerschnittes ist sehr empfindlich auf die Wahl der Parameter der Verteilungsfunktion. Eine scharfe Verteilungsfunktion ergibt erwartungsgemäß eine Streuverteilung, die der Kugelstreuungsfunktion sehr ähnlich ist. Wegen der Gewichtung des Formfaktors $S(q)$ mit R^6 in Gleichung (4.2) dominieren große Kugeln in einer breiteren Größenverteilung das Streusignal. Am Maximum ist die Form des Streuquerschnittes hauptsächlich durch die Ausläufer der Größenverteilung bestimmt. Die Auswertung der Halbwertsbreite allein kann daher zu extrem überschätzten Teilchengrößen führen. Der Verlauf der Flanken ist durch die Breite der Größenverteilung bestimmt: Eine scharfe Verteilung ergibt ein eher Gauß-förmiges Profil, das eine gute Approximation der Kugelstreuungsfunktion bis zum ersten Nulldurchgang ist, während eine breite Verteilung zu einem Streuquerschnitt führt, der einem Lorentz-Profil sehr nahe kommt. Man beachte, daß die Log-Normalverteilung mit den Parametern $a = 1.6 \text{ \AA}$ und $\sigma = 0.73$ (Abb. 4.14) nahezu dieselbe Halbwertsbreite aufweist, wie die Kugelstreuungsfunktion für einen Radius $R = 50 \text{ \AA}$ (Abb. 4.13)!

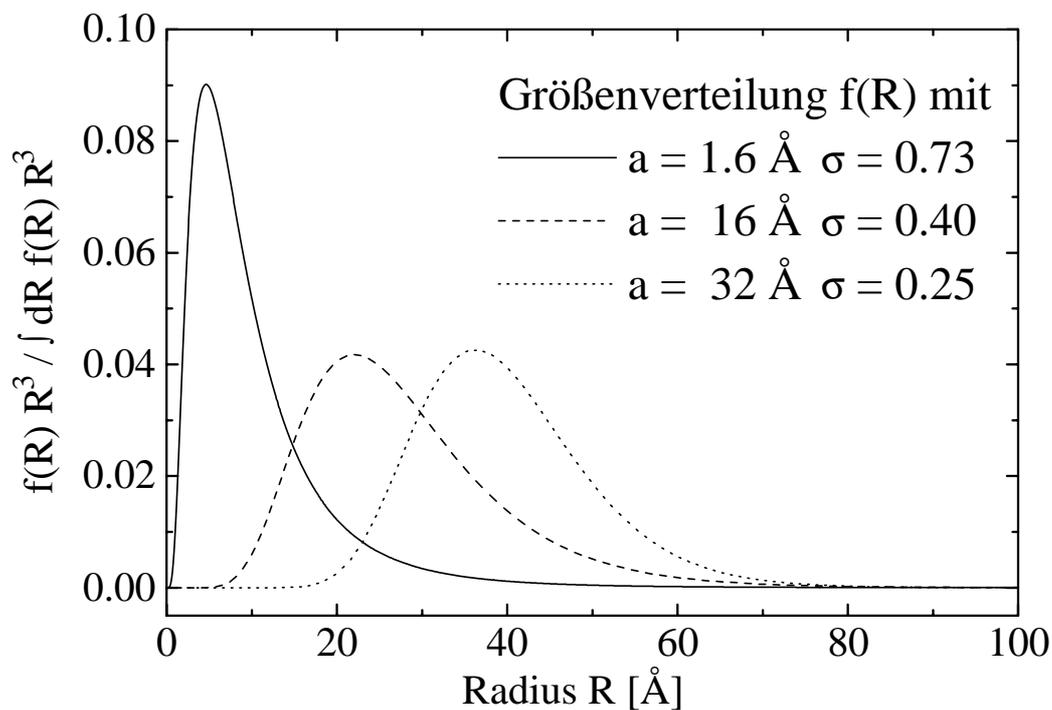


Abb.4.14. Verteilungsfunktion zu den berechneten Streuintensitäten in Abb. 4.13. Die Verteilung ist auf das integrale Volumen normiert.

Für die Anpassungen in Abb. 4.11 wurden die Größenverteilungen aus Abb. 4.15 verwendet. Zusätzlich wurde ein linearer Untergrund angenommen, der sich aus den Ausläufern der diffusen Streuung vom Silizium-Reflex und einem konstanten Beitrag zusammensetzt. Es ergibt sich folgendes Bild: Der Karbid-Reflex aller Proben bis einschließlich 800°C kann durch die gleiche Verteilungsfunktion beschrieben werden. Lediglich das Gesamtvolumen, also die Anzahl der Ausscheidungen, nimmt bei 800°C zu. Die unbehandelten Proben und die Schicht nach Tempern bei 600°C zeigen das gleiche Gesamtvolumen, d.h. der Gehalt von Kohlenstoff im Präzipitat ist nicht abhängig von der anfänglichen substitutionellen Kohlenstoffkonzentration. Für diese Proben ergibt sich eine breite Größenverteilung, deren Volumenanteil $4\pi/3 f(R) R^3$ ein Maximum bei ca. 5 \AA aufweist. Bei 0.7% 1000°C schiebt die Verteilung ein wenig zu größeren Radien und wird breiter. Im Gegensatz dazu können die experimentellen Daten der 1.5% C-Schicht nach Tempern bei 1000°C nicht durch eine einfache Log-Normalverteilung angepaßt werden. Eine 'naive' Analyse des Streuprofiles ergibt eine Kombination aus einer Lorentz-Verteilung und einem Gauß-förmigen Anteil. Letzterer verursacht die schwachen Schultern im Abfall des β -SiC-Reflexes (be-

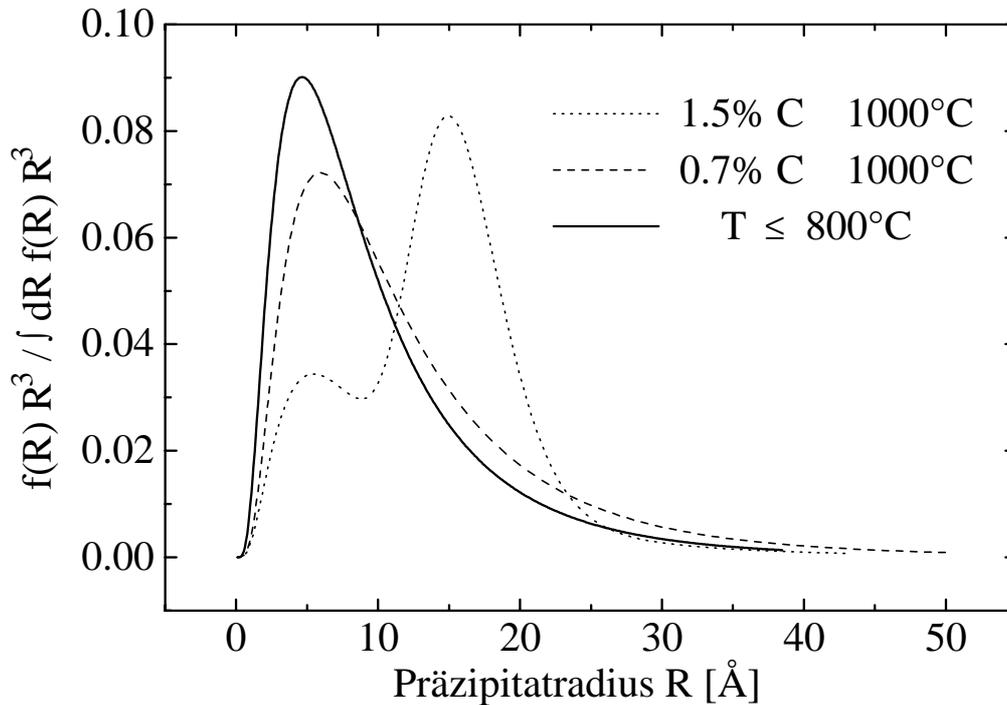


Abb.4.15. Volumenanteil von β -SiC-Ausscheidungen mit Radius R . Nach Tempern bis 800°C konnte die gleiche Größenverteilung angenommen werden, um die gemessenen Daten anzupassen (durchgezogene Linie). Nach Tempern bei 1000°C wird eine Modifikation der Größenverteilung beobachtet: Für $0.7\% \text{ C}$ schiebt die Verteilung zu größeren Radien, für $1.5\% \text{ C}$ ist eine bimodale Größenverteilung notwendig, um die gemessenen Daten anzupassen. Die Parameter der Größenverteilungsfunktion sind in Tabelle 4.2 zusammengefaßt.

zeichnet durch Pfeile in Abb. 4.11 b)). Die Kombination aus Lorentz- und Gauß-artigem Anteil hat eine Entsprechung in einer bimodalen Größenverteilungsfunktion. Ein breiter Anteil mit einem Maximum des Volumenanteils bei etwa 5 \AA verursacht die Lorentz-artige Komponente. Der Beitrag von großen Ausscheidungen in dieser breiten Verteilung ist verantwortlich für das relativ scharfe Maximum des Streusignals, das monodispersen Kugeln von etwa 70 \AA entspräche. Die Schultern im Streusignal werden durch einen schärferen Anteil an der Größenverteilung mit einem Maximum bei 15 \AA verursacht. Der Volumenanteil ist in Abbildung 4.15 dargestellt.

Aus der Intensität am Maximum kann dann das gesamte Streuvolumen aller Ausscheidungen berechnet werden, sofern es für eine Probe bekannt ist. In diesem Fall wurde das Streuvolumen auf die Probe mit 0.7% anfänglichem Kohlenstoffgehalt nach Tempern bei 1000°C normiert. Es wurde angenommen, daß in der unbehandelten Probe ausschließlich substitutioneller Kohlenstoff vorhanden

Tabelle 4.2. Ergebnisse aus den Anpassungen an die Streudaten in Abb. 4.11. Die Fehler im Kohlenstoffgehalt der Ausscheidungen wurden durch eine χ^2 -Analyse ermittelt und bezeichnen ein 68%-Konfidenzintervall. Systematische Fehler bei der Bestimmung des Kohlenstoffgehalts der Probe 0.7% 1000 °C sind darin nicht berücksichtigt.

Probe	a [Å]	σ	C-Gehalt [at.%]
0.7% as grown	1.6	0.73	(0.06 ± 0.03)%
0.7% 600 °C	1.6	0.73	(0.04 ± 0.02)%
0.7% 800 °C	1.6	0.73	(0.16 ± 0.03)%
0.7% 1000 °C	2.15	0.72	(0.70 ± 0.03)%
1.5% as grown	1.6	0.73	(0.05 ± 0.04)%
1.5% 800 °C	1.6	0.73	(0.16 ± 0.03)%
1.5% 1000 °C	1.82 / 14	0.745 / 0.2	(1.48 ± 0.09)%

ist, der nach dem Tempern vollständig in die Ausscheidungen übergegangen ist. Die Parameter der Log-Normalverteilung und die sich aus obiger Annahme ergebenden Kohlenstoffgehalte in den Ausscheidungen (in at.%) sind in Tabelle 4.2 zusammengefaßt.

4.5 Diskussion

Die Bestimmung der Kohlenstoffkonzentration in den Ausscheidungen beruht auf einem Vergleich der relativen Streuvolumina. Sie steht und fällt mit der Normierung auf das integrale Streuvolumen in einer Referenzprobe, in diesem Fall der Probe 0.7% C/1000 °C. Bisher wurde davon ausgegangen, daß nach 1 h Tempern bei 1000 °C der gesamte ursprüngliche Kohlenstoff der Schicht in β -SiC-Ausscheidungen gebunden ist. Die auf dieser Annahme beruhenden C-Gehalte in den Präzipitaten bei tieferen Temperaturen ('as grown', 600 °C und 800 °C) sind sehr hoch. Es stellt sich die Frage, ob die Ausscheidungsbildung nach 1 h bei 1000 °C tatsächlich abgeschlossen ist und sich diese Proben im thermodynamischen Gleichgewicht befinden. Daher wurde die Probe 1.5% C/1000 °C in zwei gleiche Stücke geteilt und eines davon weitere 3 h bei 1000 °C ausgeheizt. Der β -SiC-Reflex beider Teilstücke wurde danach am Wiggler 7-2 am SSRL⁵ von H. Metzger untersucht.

Hier ergab sich ein völlig überraschendes Bild: Die Proben sind nach 1 h bei 1000 °C nicht im Gleichgewicht, sowohl Reflexform als auch integrierte Intensität sind nach weiteren 3 h Ausheizen verändert. Der β -SiC-Reflex wird schärfer entsprechend einer Tendenz zu größeren Ausscheidungen. Gleichzeitig nimmt die

⁵Stanford Synchrotron Radiation Laboratory, Stanford, Kalifornien

integrierte Intensität ab , das bedeutet, daß auch der Kohlenstoffgehalt in den Ausscheidungen abnimmt. Die Statistik der Messungen erlaubt jedoch keine signifikante χ^2 -Anpassung an die Daten, die Kohlenstoffgehalte können daher nur in ihrer Tendenz diskutiert werden.

Dieses überraschende Ergebnis eröffnet Spielraum für Spekulationen, ob bei 0.7%/1000 °C der Kohlenstoff *schon* oder *noch* vollständig in den Ausscheidungen gebunden ist, bzw. ob signifikante Anteile an interstitiellem Kohlenstoff in der Schicht gebunden sind [118]. Die absoluten Werte für die Kohlenstoffkonzentrationen in den anderen Proben sind daher mit einer großen systematischen Unsicherheit behaftet.

4.6 Zusammenfassung und Ausblick

Die Untersuchung der diffusen Streuung von $\text{Si}_{1-x}\text{C}_x$ -Epischichten ergibt folgendes Bild: Bei den 'as grown' Proben zeigt die diffuse Streuung in der Umgebung des Si(220)-Oberflächenreflexes eine klare Signatur der Verzerrungsstreuung. Die defektinduzierte Huang-Streuung zerfällt wie q^{-2} mit dem Abstand vom Braggreflex. Ihre Richtungsverteilung zeigt eine deutliche Einschnürung in der angularen Richtung, die 'Doppeltropfen'-Form der Verzerrungsstreuung belegt eine Symmetrie des substitutionellen Defektplatzes, die der kubischen sehr nahe kommt.

Nach Tempern bei Temperaturen $T \geq 800$ °C geht der substitutionelle Kohlenstoff in relaxierte sphärische β -SiC-Ausscheidungen über. An die Stelle der Verzerrungsstreuung tritt die formfaktorinduzierte diffuse Streuung der von den Präzipitaten gebildeten 'Löcher' in der Si-Matrix. Die diffuse Streuung zeigt im Porod-Bereich einen q^{-4} -Zerfall. Die Analyse des gleichzeitig auftretenden β -SiC-Braggreflexes erlaubt die Bestimmung der Größenverteilung und der relativen Kohlenstoffgehalte in den Ausscheidungen. Diese werden bereits in den 'as grown' Proben nachgewiesen. Die Bestimmung der absoluten Kohlenstoffgehalte in den Ausscheidungen beruht auf der Normierung auf die 0.7% C/1000 °C-Probe und ist daher mit einer systematischen Unsicherheit verbunden.

Alle Schichten bleiben während der Temperaturbehandlung pseudomorph, d.h. der laterale Gitterparameter ist immer an das Substrat gebunden, während die tetragonale Verzerrung des Gitters mit dem Verlust an substitutionellem Kohlenstoff verschwindet.

Weitere Untersuchungen an $\text{Si}_{1-x}\text{C}_x$ -Epischichtsystemen können verbliebene offene Fragen beantworten. Vor allem ist nicht geklärt, ob es sich beim Nachweis von β -SiC-Ausscheidungen in ungetemperten Proben um einen Einzelfall oder ein allgemeingültiges Resultat handelt. Aufklärung hierüber könnten Untersuchungen an weiteren Probenserien schaffen, u.U. auch an vorhandenen, bereits mit anderen Methoden wie IR-Spektroskopie untersuchten Proben.

Von einiger Bedeutung für die Genauigkeit der hier vorgestellten Methode zur Bestimmung des Streuvolumens der Ausscheidungen ist auch eine bessere

Kenntnis darüber, nach welchem Zeitraum das thermodynamische Gleichgewicht der Ausscheidungsbildung erreicht wird. Eine Untersuchung der Ausscheidungsstreuung an einer Probenserie mit systematisch variiertem Temperzeit – eventuell in Kombination mit Transmissionselektronenmikroskopie (TEM) und Sekundärionenmassenspektroskopie (SIMS) – kann darüber Aufschluß geben.

Kapitel 5

Germanium-Inseln auf Bor-terminiertem Si(111)

In der Si/Ge-Heteroepitaxie werden je nach gewünschter Anwendung zwei grundsätzlich verschiedene Zielsetzungen verfolgt. Für elektronische Bauelemente auf der Basis von Heteroschichtsystemen strebt man nach planaren, möglichst defektfreien verspannten oder relaxierten Schichten auf einem Si-Substrat (vgl. auch Kapitel 3). Hier ist ein lagenweises (2D) Wachstum erwünscht, um die Anzahl von Defekten wie Domänengrenzen oder Versetzungen innerhalb der Schicht gering zu halten. Umgekehrt verspricht die spontane Bildung von Inseln beim sog. 3D-Wachstum einen neuen Ansatz zur Herstellung selbstorganisierter 'quantum dot arrays', die aufgrund von quantenmechanischen Effekten für die Herstellung opto-elektronischer Bauelemente genutzt werden. Da die optischen Eigenschaften solcher 'Quantendot'-Bauelemente sehr stark von der Größe der Inseln abhängen, ist die Kontrolle der Größenverteilung beim Wachstum Voraussetzung für technologische Anwendungen. Ein grundlegendes Verständnis des Wachstumsprozesses ist daher notwendig.

Neben der Substrattemperatur und der Wachstumsgeschwindigkeit hat auch die Anwesenheit von Fremdatomen einen großen Einfluß auf die Wachstumskinetik und Gleichgewichtskonfiguration dünner Schichten. Fremdatome können eine völlige Umstrukturierung der Substratoberfläche hervorrufen. So zeigen Gallium- und Bor-terminierte Si(111)-Oberflächen eine $\sqrt{3} \times \sqrt{3}R30^\circ$ -Rekonstruktion anstelle der bekannten (7×7) -Rekonstruktion. Verunreinigungen können 'dangling bonds' absättigen und so die laterale Diffusion von Adatomen stark erhöhen. Sogenannte 'surfactants' schwimmen an der Oberfläche der wachsenden Schicht auf und verändern die Oberflächenenergie der Wachstumsfront. Durch gezielte Verunreinigungen kann daher die Struktur und Morphologie dünner Filme im Sinne des planaren 2D-Wachstums oder der Erzeugung von selbstorganisierten Inselstrukturen beeinflußt werden.

Seit der Beobachtung der Germanium 'hut cluster' auf Si(001) durch *Mo et al.* [119] haben zahlreiche Gruppen facettierte Inseln auf (001)-orientierten Sub-

straten untersucht. Bei ihren STM-Studien von aufgedampften Ge-Schichten fanden die Autoren bei einer Schichtdicke von 3 ML einen Übergang von lagenweisem Wachstum zur Bildung von dreidimensionalen Ge-Inseln. Am Übergang beobachteten sie eine intermediäre Phase von pseudomorphen vierseitigen Pyramiden, die durch $\{105\}$ -Facetten begrenzt sind. Diese 'hut cluster' haben entsprechend zur Orientierung der Seitenflächen eine rechteckige Basis von typischerweise $100 \times 450 \text{ \AA}^2$, deren Hauptachse entlang der $\langle 100 \rangle$ und $\langle 010 \rangle$ Richtungen verläuft. Da die 'hut cluster' bevorzugt bei niedrigeren Temperaturen unterhalb 800°C entstehen, wird angenommen, daß sie eine metastabile Phase darstellen, die einen effektiven Ausgleich der Gitterfehlpassung erlaubt. Diese Vermutung wird durch neuere theoretische [120] und experimentelle Arbeiten [121] bestätigt. Durch CTR-Streuung konnten *Steinfort et al.* [122] zeigen, daß die Pyramiden zur Spitze hin elastisch relaxieren und so einen großen Teil ihrer Verspannungsenergie abbauen. Problematisch für optische Anwendungen ist jedoch die Neigung der 'hut cluster', bevorzugt entlang einer der beiden Hauptachsen zu wachsen und dadurch eine breite Größenverteilung anzunehmen. Durch das Wachstum auf stark fehlorientierten Substraten [123] konnte diese Elongation unterdrückt werden.

Inseln anderer Morphologie wurden ebenso beobachtet: Dabei spielt besonders die Anwesenheit von 'surfactants' eine große Rolle. *Horn-von Hoegen et al.* konnten durch Anwesenheit von Sb beim Wachstum und anschließendem Tempern die Morphologie der Inseln reversibel von $\{105\}$ -facettierten Pyramiden über Kegel mit einer Neigung von 12° zum Substrat zu $\{117\}$ -facettierten Inseln einstellen [124]. *Eaglesham et al.* betonen, daß 'surfactants' nicht nur die Kinetik des Wachstums, sondern über die Oberflächenenergie auch die Konfiguration im thermodynamischen Gleichgewicht bestimmen: Beim Tempern unter einem Fluß von In oder Sb nach dem Wachstum fanden sie eine Neigung zu (001)-Facetten im System Ge:Sb, während reines Ge und Ge unter In-Fluß $\{113\}$ -Facetten bevorzugen. Daher fördert Antimon flache Inseln, die früher zusammenwachsen und so ein planares (001)-Schichtwachstum ermöglichen [125]. CVD-Wachstum auf Si(001) begünstigt offenbar eine Kombination aus $\{111\}$ und $\{113\}$ -Facetten bei der Inselbildung [126, 127].

Einen völlig andersartigen Ansatz verfolgen *Dorsch et al.* [128] mit dem Wachstum pseudomorpher $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$ -Inseln durch Flüssigphasenepitaxie (LPE¹). Das Wachstum erfolgt bei hohen Temperaturen nahe dem thermodynamischen Gleichgewicht. Über den Ge-Gehalt in den Inseln können die Autoren die Inselgröße von wenigen nm bis zu einigen μm einstellen. Da die Inselgröße nur von der Zusammensetzung abhängt, verändert die insgesamt abgeschiedene Materialmenge einzig die Belegungsdichte der Inseln auf dem Substrat, die bei geringen Dichten stochastisch verteilt sind, bei höherer Dichte jedoch eine laterale Ordnung zeigen, wie durch AFM-Messungen und GISAXS-Experimente gezeigt wurde [129].

¹Liquid Phase Epitaxy

Die Si(111)-Oberfläche ist für das Wachstum planarer relaxierter Germaniumschichten besonders interessant, da die (111)-Grenzfläche zugleich auch eine Gleitebene für verspannungsabbauende Versetzungen ist. *LeGoues et al.* [130] konnten unter Verwendung von Sb als 'surfactant' defektfreie Ge-Schichten herstellen, die durch ein periodisches Versetzungsnetzwerk [131] an der Grenzfläche vollständig relaxiert sind. Entscheidend für das planare 2D-Wachstum der relaxierten Schicht ist jedoch die Bildung pseudomorpher Ge-Inseln auf einem etwa 3 ML dicken Ge-Benetzungsfilm im sog. Stranski-Krastanov-Wachstumsregime [132], die beim Zusammenwachsen ab etwa 8 ML Nukleationskeime für das Versetzungsnetzwerk zur Verfügung stellen. Die Inseln bestehen aus dreiseitigen Ge-Pyramiden, deren Seiten durch {113}-Facetten gebildet werden, wie *Horn-von Hoegen et al.* durch Beugung niedrigerenergetischer Elektronen zeigen konnten [131]. Ihre Basislänge beträgt etwa 50 Å. *Voigtländer und Zinner* [133] fanden bei ihren STM-Untersuchungen des Wachstums von Ge auf Sb-dotiertem Si(111) nach 6 ML einen abrupten Übergang von lagenweisem Wachstum zur Bildung von relaxierten {113}-facettierten Pyramiden mit einer Basislänge von 700 Å. *Köhler et al.* [134] untersuchten das Wachstum sowohl auf reinen (7×7)-rekonstruierten Si(111)-Substraten, als auch auf Bor- $\sqrt{3} \times \sqrt{3}R30^\circ$ -rekonstruierten Si(111)-Oberflächen. Bis zu einer Ge-Schichtdicke von 4 ML beobachteten die Autoren ein lagenweises Wachstum, ab 4 ML Ge einen Übergang zu relaxierten 3D-Inseln auf einem pseudomorphen Ge-Film. Bei 9 ML (etwa 15 Å) fanden sie {113}-facettierte Pyramiden mit einer Basislänge von 300 bis 1000 Å, einer Höhe von 50 bis 100 Å und einer (111)-Facette auf dem Dach der abgeschnittenen Inseln. Die rekonstruierte Oberfläche wurde durch Tempern von B-dotierten Si(111)-Substraten erzeugt. Die Autoren sind sich jedoch unklar über die exakte Position der Bor-Atome auf dem Substrat. Für ähnlich behandelte B-dotierte Substrate (Tempern bei 900 °C) fanden *Headrick et al.* [135], daß das Bor den substitutionellen S_5 -Platz unterhalb des T_4 -Adatomplatzes besetzt.

In Zusammenarbeit mit der Universität der Bundeswehr, München, wurden Germanium- und Bor- δ -Schichten in der Si-Epitaxie [136–138] untersucht. Dabei wurden nach dem Wachstum von Ge auf Bor-terminierten Si(111)-Substraten pyramidenförmige Ge-Inseln entdeckt, deren Morphologie den Inseln bei *Köhler et al.* [134] gleicht. Allerdings entstanden die Inseln bei einer viel höheren nominellen Schichtdicke von 15 nm. Sie weisen eine relativ scharfe Größenverteilung auf und sind entlang kristallographischer $[1\bar{1}0]$ Richtungen orientiert. Dabei zeigen sie eine starke Tendenz zu lateraler Ordnung entlang fehlorientierungsinduzierter Stufenkanten (Abb. 5.2). Erste Arbeiten wurden von R. Paniago während seines Aufenthaltes als 'post-doctoral fellow' in München an diesem System durchgeführt. Dabei stand die Charakterisierung der Oberflächenmorphologie durch AFM und Röntgenkleinwinkelstreuung unter streifenden Winkeln im Vordergrund. In Zusammenarbeit mit M. Rauscher am Lehrstuhl Prof. H. Wagner, LMU München, wurde eine adäquate Streutheorie im Rahmen der 'Distorted-Wave-Born-Approximation' entwickelt, die die Kleinwinkelstreuung von freiste-

henden Inseln in der Nähe der externen Totalreflexion beschreibt. Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurden die ersten Voruntersuchungen fortgeführt und auf eine systematische Variation der Wachstumsparameter ausgedehnt.

5.1 Zielsetzung

Im Rahmen dieser Arbeit sollen folgende Fragestellungen beantwortet werden:

- **Einfluß von Bor auf das Inselwachstum:** Die grundsätzliche Frage war, inwiefern Bor überhaupt für die Bildung von dreiseitigen Ge-Pyramiden verantwortlich ist. Daneben sollte geklärt werden, welche Auswirkung die Menge abgeschiedenen Bors, bzw. die Bildung einer $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Oberflächenphase auf die Morphologie und die kristalline Struktur der Inseln hat. Es wurden daher 15 nm Ge-Schichten auf Substraten ohne Bor-Terminierung und mit 0.11 bis 0.66 ML Bor hergestellt.
- **Einfluß des 'miscut' auf die laterale Ordnung:** Bei der 'alten' Probe wurde eine laterale Ordnung der Inseln senkrecht zu 'miscut'-induzierten Stufenkanten gefunden. Für die neue Serie wurden daher Substrate mit einem deutlich geringeren 'miscut' ausgewählt.
- **Einfluß der Ge-Schichtdicke auf die Inselmorphologie:** Zudem sollte geklärt werden, ob es eine ausgezeichnete Schichtdicke gibt, bei der besonders regelmäßige oder geordnete Inseln entstehen. Dazu wurden auf $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Oberflächenphasen Schichten von nominell 2 bis 80 nm Ge abgeschieden.
- **Verspannung und Relaxation:** Die Inseln sind partiell in Richtung der intrinsischen Gitterkonstante von Volumenmaterial relaxiert. Aufgrund der Restverspannung wird eine komplexe Verteilung des Gitterparameters innerhalb der Inseln erwartet. Die kristalline Struktur wird durch Beugungsmethoden unter streifenden Winkeln untersucht.

5.2 Probenserie

Für die Untersuchungen wurde eine neue Probenserie von J. Schulze (Universität der Bundeswehr München/Neubiberg) hergestellt. Als Substrat wurden kommerzielle n-Typ Si(111) Wafer der Firma Wacker verwendet. Die Proben wurden zunächst einer Reinigungsprozedur unterzogen (RCA-Reinigung, H₂-Plasma-Ätzen und anschließende thermische Desorption bei 700 °C). Danach wurde eine 150 nm dicke Pufferschicht (intrinsisches) i-Si bei einer Temperatur von

Tabelle 5.1. Überblick der vorhandenen Proben

Wafer	Stück	Schicht	Bor-Bedeckung	Bemerkung
'wafer'	-	-	-	Si(111) auf 150nm i-Si
# 3/472	/1	15 nm Si	-	15 nm Si auf Si
	/2	15 nm Si	0.33 ML	15 nm Si auf B $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$
# 3/473	/1	15 nm Ge	-	15 nm Ge auf Si
	/2	15 nm Ge	0.33 ML	15 nm Ge auf B $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$
# 3/474	/1	20 nm Ge	0.33 ML	20 nm Ge auf B $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$
	/2	40 nm Ge	0.33 ML	40 nm Ge auf B $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$
	/3	60 nm Ge	0.33 ML	60 nm Ge auf B $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$
	/4	80 nm Ge	0.33 ML	80 nm Ge auf B $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$
# 3/475	/1	15 nm Ge	0.11 ML	15 nm Ge auf 0.11 ML B/Si
	/2	15 nm Ge	0.22 ML	15 nm Ge auf 0.22 ML B/Si
# 3/476	/1	15 nm Ge	0.33 ML	15 nm Ge auf 0.33 ML B/Si
	/2	15 nm Ge	0.66 ML	15 nm Ge auf 0.66 ML B/Si
# 3/478	/1	2 nm Ge	0.33 ML	2 nm Ge auf B $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$
	/2	4 nm Ge	0.33 ML	4 nm Ge auf B $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$
	/3	6 nm Ge	0.33 ML	6 nm Ge auf B $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$
	/4	8 nm Ge	0.33 ML	8 nm Ge auf B $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$
'alte' Probe		15 nm Ge	0.33 ML	'miscut' 0.5°

den bis zu vier verschiedene Schichten auf demselben Wafer gewachsen, indem mittels einer Profilblende Teile des Substrats abgeschattet wurden. An einer Stichprobe² wurde die kristallographische Fehlorientierung der (111)-Netzebenen zur Oberfläche ('miscut') bestimmt (0.14°). Dieser Wert liegt deutlich unterhalb des kritischen Winkels α_c für Si und Ge der bei den verschiedenen Streuexperimenten verwendeten Röntgenstrahlung.

5.3 Morphologie der Inseln: Rasterkraftmikroskopie

Zur Charakterisierung der Oberflächenmorphologie der Ge-Schichten wurden zunächst AFM-Aufnahmen erstellt. Dabei konnte auf die Möglichkeiten innerhalb der Kooperation des *Center for NanoScience* (CeNS) an der Sektion Physik zurückgegriffen werden (Lehrstuhl Prof. J.P. Kotthaus und Lehrstuhl Prof. H. Gaub).

Abbildung 5.2 zeigt die Oberfläche der 'alten' Probe. Deutlich erkennbar sind orientierte dreieckige Inseln. Die Seiten der Pyramiden sind durch $\{113\}$ -

²Anhand einer systematischen Studie der Variation des 'miscut' an verschiedenen Wafern aus einer Charge kann man davon ausgehen, daß die Streuung um diesen Wert bei etwa $\pm 0.02^\circ$ liegt [137].

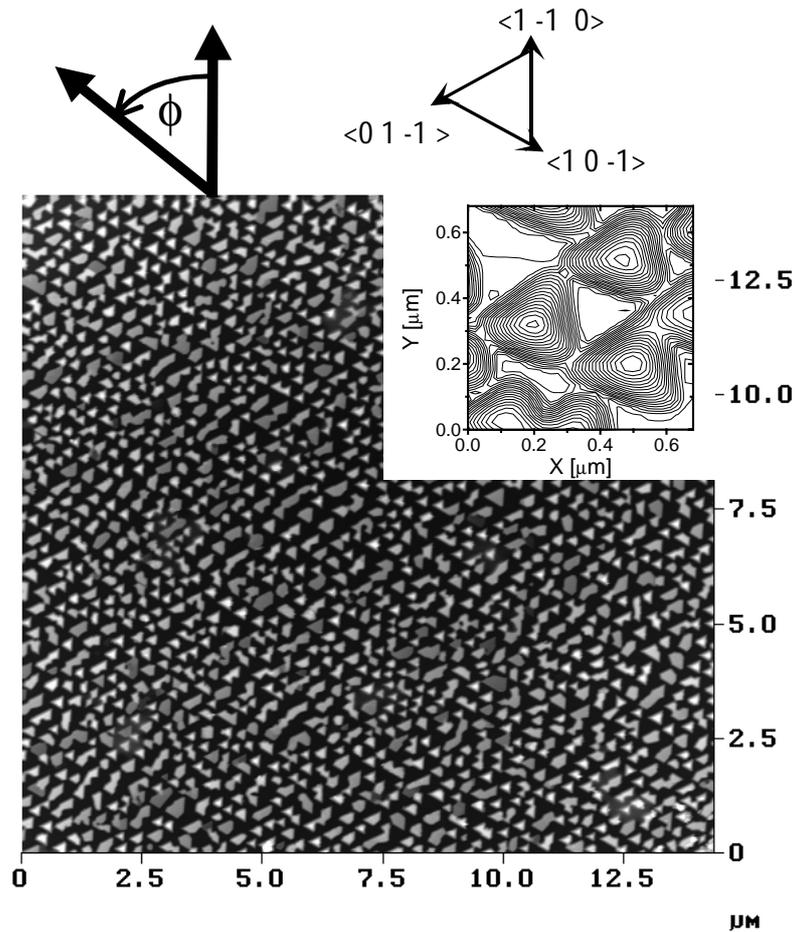


Abb.5.2. 15 nm Ge / 0.33 ML B / Si(111) ('alte' Probe). Auf der Oberfläche befinden sich dreiseitige Pyramiden, deren Basisseiten entlang der drei $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ -Richtungen orientiert sind. Die Inseln zeigen eine laterale Ordnung senkrecht zu fehlordnungsinduzierten Stufenkanten. Die azimutale Richtung des Substrat-'miscut' ist durch Φ bezeichnet (Aufnahme: R. Paniago und A. Kriele, di MultiModeTM).

Facetten begrenzt³, entsprechend sind die Seiten der Basis entlang der drei $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ -Richtungen orientiert. Die Länge L der Basisseite beträgt etwa 250 bis 320 nm, die Höhe H 35 bis 50 nm. Viele Inseln zeigen eine abgeschnittene Spitze und enden mit einer (111)-Facette. Bei dieser Probe wird zudem eine laterale Ordnung der Inseln beobachtet: Die Inseln reihen sich entlang einer Richtung, die senkrecht zur azimutalen Orientierung des Substrat-'miscut' steht. Es wird daher angenommen, daß fehlorientierungsinduzierte Stufenkanten eine Rolle bei der Nukleation der

³Die experimentelle Evidenz für die Indizierung der Facette wird durch die genaue Bestimmung des Facettenwinkels durch GISAXS (Abschnitt 5.4) und CTR-Streuung (Abschnitt 5.6) gegeben.

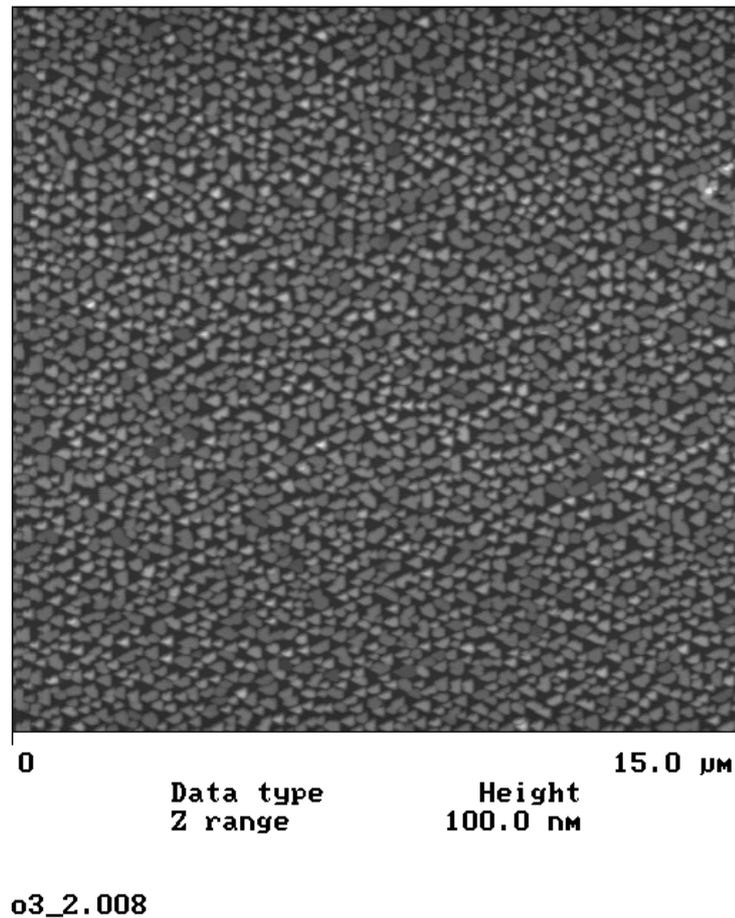


Abb.5.3. 15 nm Ge / 0.33 ML B / Si(111) (Probe #3/473/2). Die Oberfläche zeigt ausgerichtete dreiseitige Pyramiden, die jedoch keine laterale Ordnung aufweisen. Die Substratfehlorientierung beträgt 0.14° . (Aufnahme: J. Domke, di BioScopeTM)

Inseln spielen.

Bei der entsprechenden Probe mit kleinerer Substratfehlorientierung der neuen Serie (Probe #3/473/2) konnte das Wachstum der Pyramiden reproduziert werden. Es werden freistehende dreiseitige Inseln beobachtet ($L = 200$ bis 400 nm, $H = 25$ bis 45 nm), die orientiert sind, aber keine laterale Ordnung untereinander aufweisen (Abb. 5.3 und B.6).

Die aus den Höhendaten der AFM-Aufnahmen berechnete Höhen-Differenzfunktion $g(X, Y)$ zeigt die laterale Ordnung der beiden Proben (Abb. 5.4). Bei der 'alten' Probe sind Korrelationen zwischen benachbarten Inselreihen zu erkennen, deren Reichweite etwa $1 \mu\text{m}$ beträgt. Die Probe der neuen Serie zeigt im Gegensatz dazu eine isotrope Höhen-Differenzfunktion.

Wird auf die Bor-Oberflächenphase verzichtet, bildet sich anstelle der orien-

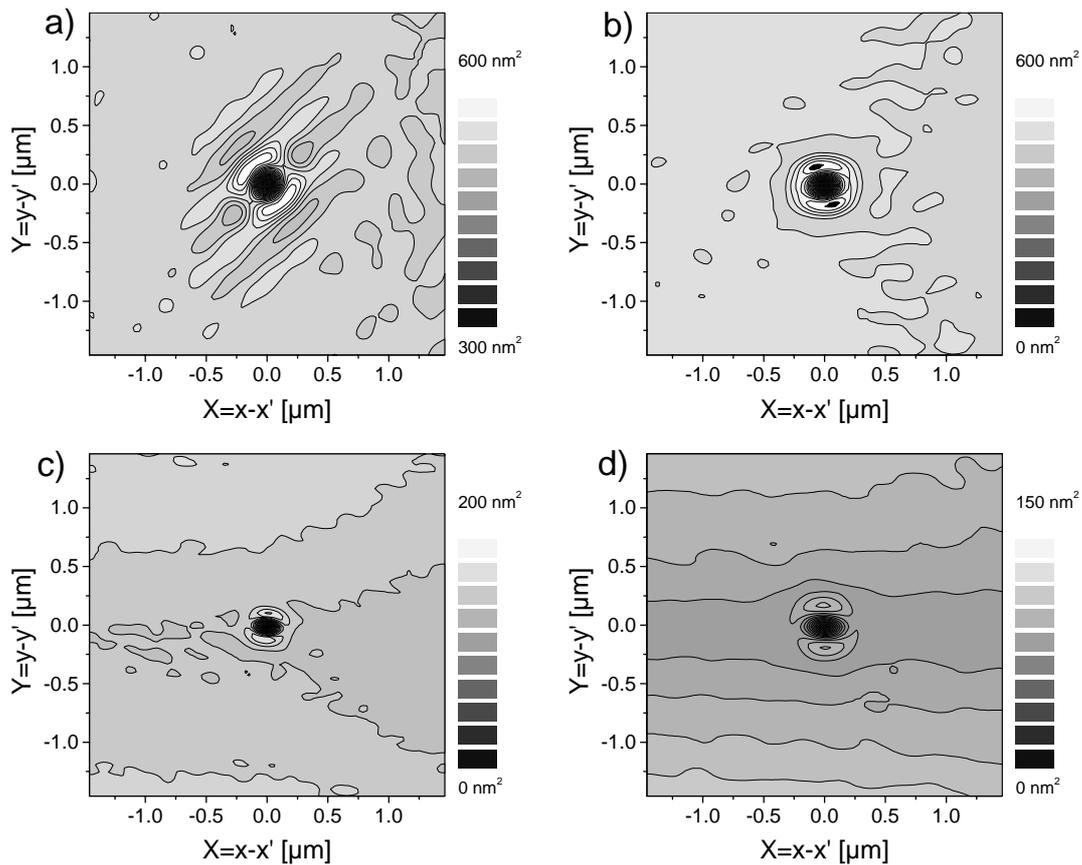


Abb.5.4. Berechnete Höhen-Differenzfunktion zu a) Abb.5.2 der 'alten' Probe (15 nm Ge / 0.33 ML B / Si(111)), b) neue Serie (15 nm Ge / 0.33 ML B / Si(111)), c) (4 nm Ge / 0.33 ML B / Si(111)) und d) (15 nm Ge / Si(111)).

tierten Pyramiden ein ungeordneter rauher Ge-Film (Abb. B.8 im Anhang). Die RMS-Rauhigkeit dieses Films beträgt mit 7 nm nur etwa die Hälfte der Rauhigkeit der Probe mit Bor, da auf dieser Probe kaum freistehende Inseln gefunden werden. Auf der AFM-Aufnahme können keine Facetten identifiziert werden. Beide Proben (15 nm Ge mit/ohne Bor) wurden auf demselben Substrat gewachsen, daher kann die unterschiedliche Oberflächenmorphologie eindeutig auf die Bor-Oberflächenphase zurückgeführt werden. Ein Überangebot an Bor über 1/3 ML hinaus bewirkt eine deutlich geringere Regelmäßigkeit und verschlechtert das Wachstum von Pyramiden (Abb. B.7).

Horizontale Schnitte durch die Datensätze aus Abb. B.1, B.5, B.6, B.8 und B.9 sind in Abbildung 5.5 gezeigt. In den Schnitten wie auch auf den Aufnahmen selbst ist zu erkennen, daß die nominell aufgebraachte Ge-Menge das Substrat zunächst nicht als Film benetzt, sondern höhere Inseln bildet, die erst bei einer Schichtdicke von nominell 60 nm zu einem homogenen Film zusammenwachsen. Die Abbildung erlaubt auch eine Abschätzung des Facettenwinkels der Seiten-

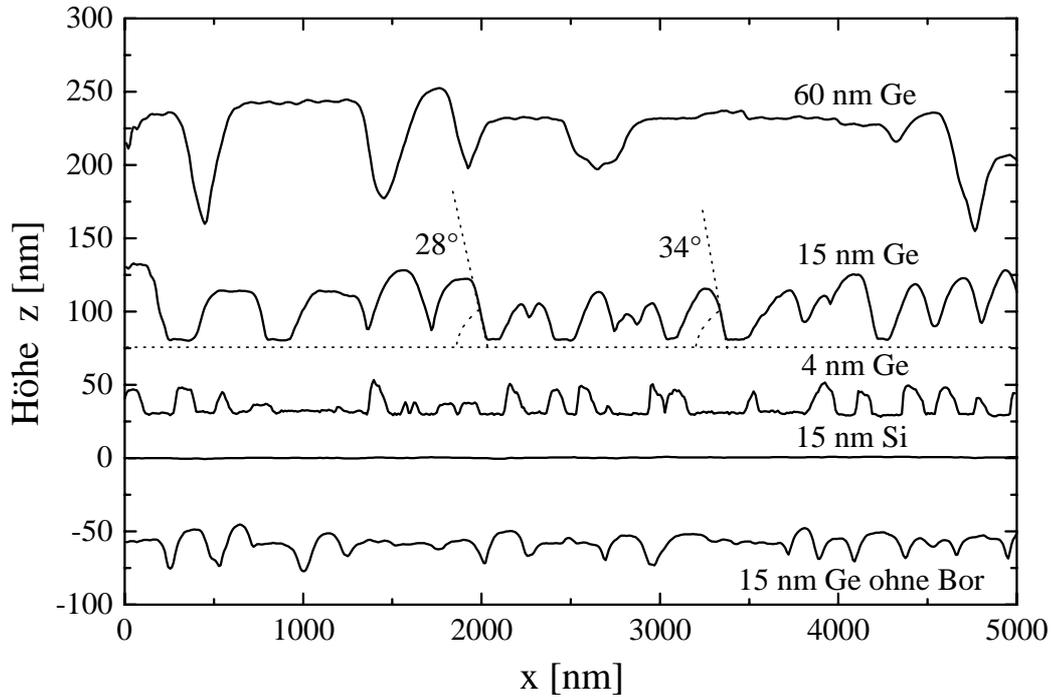


Abb.5.5. Horizontale Schnitte durch verschiedene AFM-Aufnahmen (4 - 60 nm Ge mit Bor und 15 nm Ge ohne Bor). Es ist deutlich erkennbar, daß die nominell aufgebraachte Ge-Schichtdicke das Substrat nicht benetzt, sondern Inseln bildet, deren Höhe die nominelle Schichtdicke überschreitet. Erst bei der 60 nm-Schicht wachsen die Inseln zu einem homogenen Film zusammen. Der Winkel zwischen den Seitenfacetten und dem Substrat beträgt etwa 30° .

flächen der Inseln, der etwa 30° beträgt. Wie später bei der Auswertung der Röntgenkleinwinkelstreuung gezeigt wird, ergibt sich exakt 29.5° , womit die Seitenflächen eindeutig als $\{113\}$ -Facetten identifiziert werden können.

5.4 Morphologie der Inseln: Röntgenkleinwinkelstreuung unter streifendem Einfall

Die Messungen der Röntgenkleinwinkelstreuung (GISAXS) wurden am vertikalen 6-Kreis-Diffraktometer am Instrument ID3 an der ESRF, Grenoble, durchgeführt. Die Streugeometrie ist in Abb. 5.6 dargestellt. Die mit α_i streifend einfallenden Photonen der Wellenlänge $\lambda = 1.217 \text{ \AA}$ werden an den Inseln gestreut und unter dem Ausfallswinkel α_f zur Oberfläche und 2θ zur Einfallsebene mit einem ortsaufösenden Detektor (PSD) registriert.

Der Eingangsstrahl wurde durch Blenden auf 0.2 mm horizontal und 0.1 bis 0.4 mm vertikal beschränkt. Die Divergenz des Primärstrahles ist vernachlässigbar.

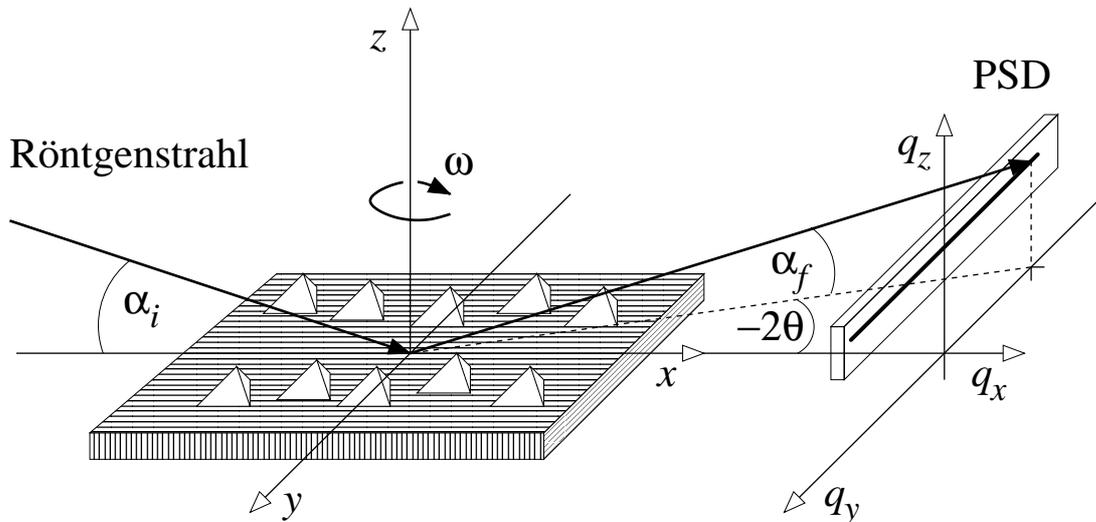


Abb.5.6. Experimenteller Aufbau zur Messung der Röntgenkleinwinkelstreuung unter streifendem Einfall. Um mit der Konvention am Instrument ID3 konsistent zu sein, wird ein linkshändiges Koordinatensystem verwendet. Nach [28].

Die Auflösung $\Delta\alpha_f = 0.08^\circ$ entsprechend $\Delta q_z = 0.007 \text{ \AA}^{-1}$ wurde durch eine 1 mm Schlitzblende vor dem Detektor im Abstand von 725 mm zur Probe definiert. Die Auflösung in 2θ ergibt sich aus der Strahlbreite und der linearen Auflösung des PSD von 0.1 mm/Pixel zu $\Delta 2\theta = 0.03^\circ$ bzw. $\Delta q_y = 0.003 \text{ \AA}^{-1}$.

Durch Drehung der Probe um die Oberflächennormale ω wird die Symmetrie der Kleinwinkelstreuung untersucht. Der Nullpunkt $\omega = 0$ wurde mittels Beugung am $(2\bar{2}0)$ -Reflex so festgelegt, daß eine der drei $(1\bar{1}0)$ -Ebenen parallel zur Einfallsebene liegt. Die kristallographische Referenz erlaubt dann eine eindeutige Identifizierung der Seitenfacetten der Inseln.

Beiträge zur Streuung in DWBA

Abbildung 5.7a) zeigt die Kleinwinkelstreuung von 15 nm Ge auf Bor (Probe #3/473/2) in Abhängigkeit vom Azimut ω . Die Spektren wurden bei konstant gehaltenen Ein- und Ausfallswinkeln ($\alpha_i \neq \alpha_f$) aufgenommen und sind zur besseren Übersicht skaliert. Die dreizählige Symmetrie des Formfaktors wird anhand des starken Nebenmaximums bei $\omega = 30^\circ$ und $\omega = 90^\circ$ deutlich: Bei einer Drehung um jeweils 120° wird das Streubild in sich selbst übergeführt (hier nicht gezeigt). Der Ursprung dieses Maximums liegt im 'Truncation-Rod' der Seitenfacette der Pyramide, wie die q_z -Abhängigkeit der Position des Nebenmaximums (Abb. 5.8) klar zeigt: Die Spektren wurden bei $\omega = 90^\circ$ und α_i von 0.10 bis 0.90° und $\alpha_f = \alpha_i + \Delta$ mit konstantem Offset $\Delta = 0.32^\circ$ aufgenommen. Sie zeigen drei charakteristische Phänomene:

- Ein zentrales Maximum bei $q_y = 0$ besteht aus dem Maximum des Form-

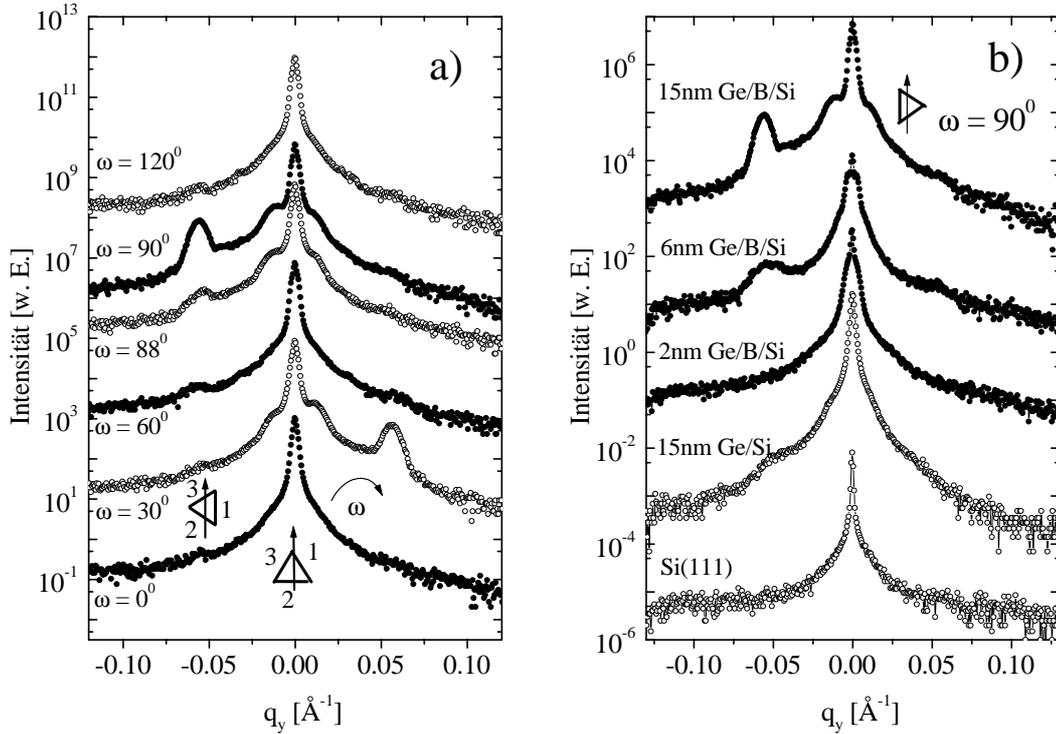


Abb.5.7. Röntgenkleinwinkelstreuung bei $\alpha_i=0.44^\circ$, $\alpha_f=0.70^\circ$ bzw. $q_z=0.103 \text{\AA}^{-1}$: **a)** Gestreute Intensität von 15 nm Ge/0.33 ML B/Si(111) in Abhängigkeit vom Azimut ω . Die Dreiecke zeigen die Orientierung der Inseln zum Strahl. Für $\omega = 30^\circ$ liegt die Seitenfacette Nr.1 rechts parallel zum einfallenden Strahl. Der Formfaktor zeigt neben dem zentralen Maximum bei $q_y = 0$ ein zweites Maximum rechts, das vom 'Truncation-Rod' dieser Facette stammt. In der Position $\omega = 90^\circ$ wird der CTR der Facette Nr.2 auf der linken Seite sichtbar. **b)** GISAXS-Spektren für $\omega = 90^\circ$ von verschiedenen Proben. 2 nm Ge auf Bor und 15 nm Ge ohne Bor zeigen keinen CTR.

faktors in der Nähe von $\mathbf{q} = 0$ und den Ausläufern des 'Truncation-Rod' der (111)-Dach- und Bodenfacette der Inseln. Es sei darauf hingewiesen, daß dieses Maximum bei $\alpha_i \neq \alpha_f$ beobachtet wird, und daher nichts mit dem spekulär reflektierten Anteil zu tun hat.

- Ein starkes Nebenmaximum, das mit ansteigendem q_z linear zu größeren $|q_y|$ schiebt. Dieses Maximum wird dem Formfaktor $s_\Delta(\mathbf{q}_\parallel, q_z)$ zugeordnet. Aus der linearen q_y - q_z -Beziehung kann der Winkel zwischen der (111)-Oberfläche und der Seitenfacette bestimmt werden. Die Simulationsrechnungen (durchgezogene Linien, s.u.) ergeben einen Winkel von 29.5° und identifizieren die Seitenflächen mit $\{113\}$ -Facetten.
- Eine Schulter bei $q_y = -0.016 \text{\AA}^{-1}$, deren Position nicht von q_z abhängt (markiert durch den Pfeil). Diese Schulter ist bei kleinen α_i besonders

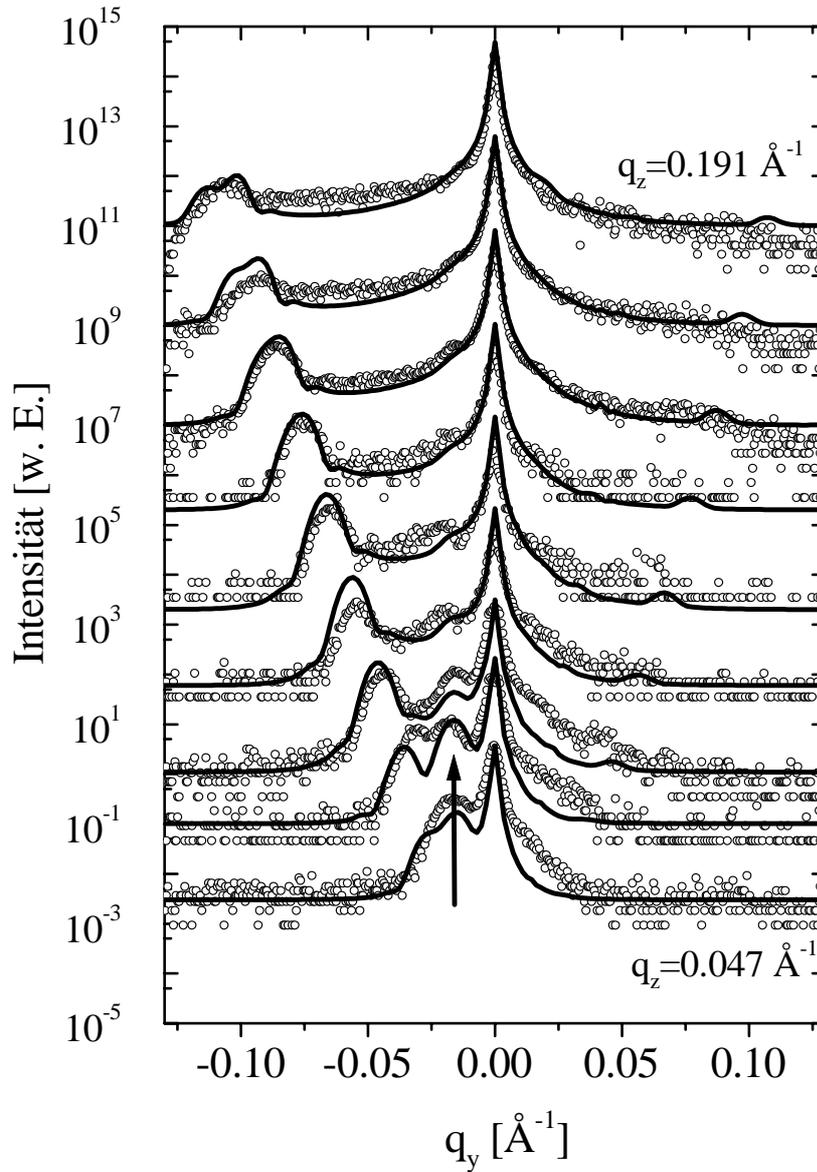


Abb.5.8. Röntgenkleinwinkelstreuung von 15 nm Ge/0.33 ML B/Si(111) für $\omega = 90^\circ$ und veränderten vertikalen Impulsübertrag q_z . Der Einfallswinkel α_i variiert von 0.10° bis 0.90° , der Ausfallswinkel α_f von 0.42° bis 1.22° bei einem konstanten Offset von 0.32° , der Abstand Δq_z zwischen den Spektren beträgt 0.018 \AA^{-1} . Zu den Simulationsrechnungen wurde jeweils ein konstanter Untergrund addiert.

ausgeprägt und verschwindet langsam mit ansteigendem q_z . Sie wird dem dritten Term in Gl.(2.35) zugeordnet. Da p_z nur vom Offset $\alpha_f - \alpha_i$ abhängt, wandert die Schulter nicht mit zunehmendem q_z .

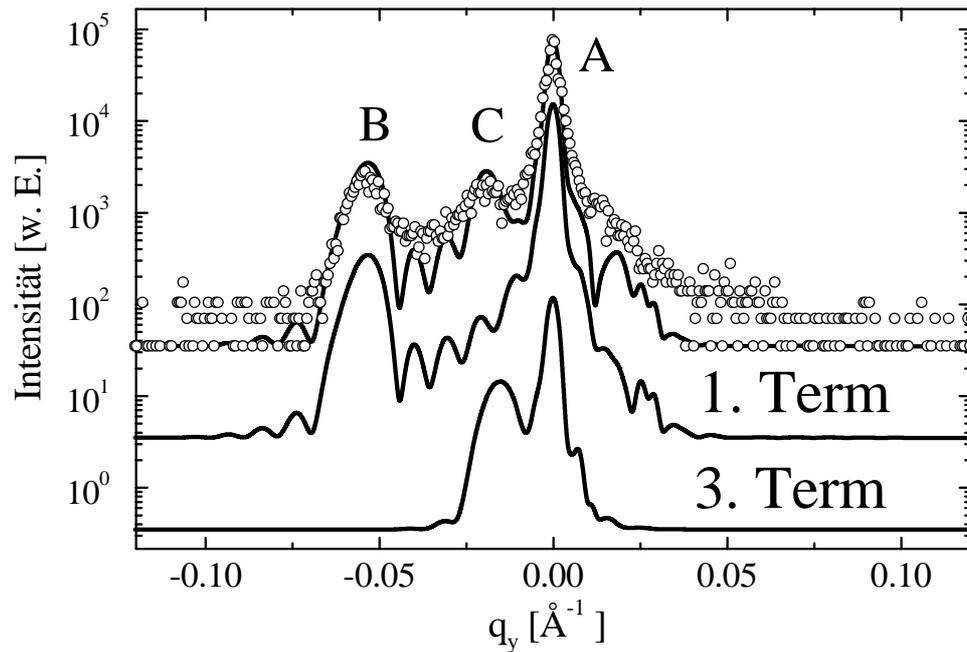


Abb.5.9. Beiträge vom ersten und dritten Term in Gl. (2.35) zur Streuung unter streifenden Winkeln. Die Schulter C zwischen Hauptmaximum A und Nebenmaximum B erfordert die Berücksichtigung der Vielfachreflexionen in DWBA (3. Term).

Abbildung 5.9 zeigt exemplarisch das vierte GISAXS-Spektrum aus Abb. 5.8 bei $\alpha_i=0.40^\circ$, $\alpha_f=0.72^\circ$ im Vergleich mit einer Simulation des ersten und dritten Terms $|s_\Delta(\mathbf{q}_\parallel, q_z)|^2$ und $|R_i s_\Delta(\mathbf{q}_\parallel, p_z)|^2$ aus Gl. (2.35) sowie dem Betragsquadrat ihrer Summe. Der zweite und vierte Term können wegen des sehr viel kleineren Reflektivitätskoeffizienten R_f vernachlässigt werden. Die Schulter zwischen Hauptmaximum und starkem Nebenmaximum kann durch die reine Born-Näherung (1. Term) nicht reproduziert werden. Sie erfordert vielmehr die Berücksichtigung der Vielfachreflexionen in DWBA (3. Term).

Wachstumsbedingungen und Inselmorphologie

Um den Einfluß der Wachstumsbedingungen auf die Inselmorphologie zu untersuchen, wurde die Kleinwinkelstreuung von verschiedenen Proben aus der Serie aufgenommen (Abb 5.8 und 5.10). Die 15 nm-Schicht ohne Borphase zeigt keinerlei Facettierungs-CTR. Das Streubild ist nahezu isotrop in \mathbf{q}_\parallel . Ebenso konnte an 2 nm Ge auf der Borphase (Probe #3/478/1) kein CTR beobachtet werden. Die Proben 4, 6, 15, 60 nm Ge auf 0.33 ML Bor zeigen einen deutlichen CTR. Dieser wurde bis zu vertikalen Impulsüberträgen $q_z = 0.25 \text{ \AA}^{-1}$ verfolgt. Hierbei

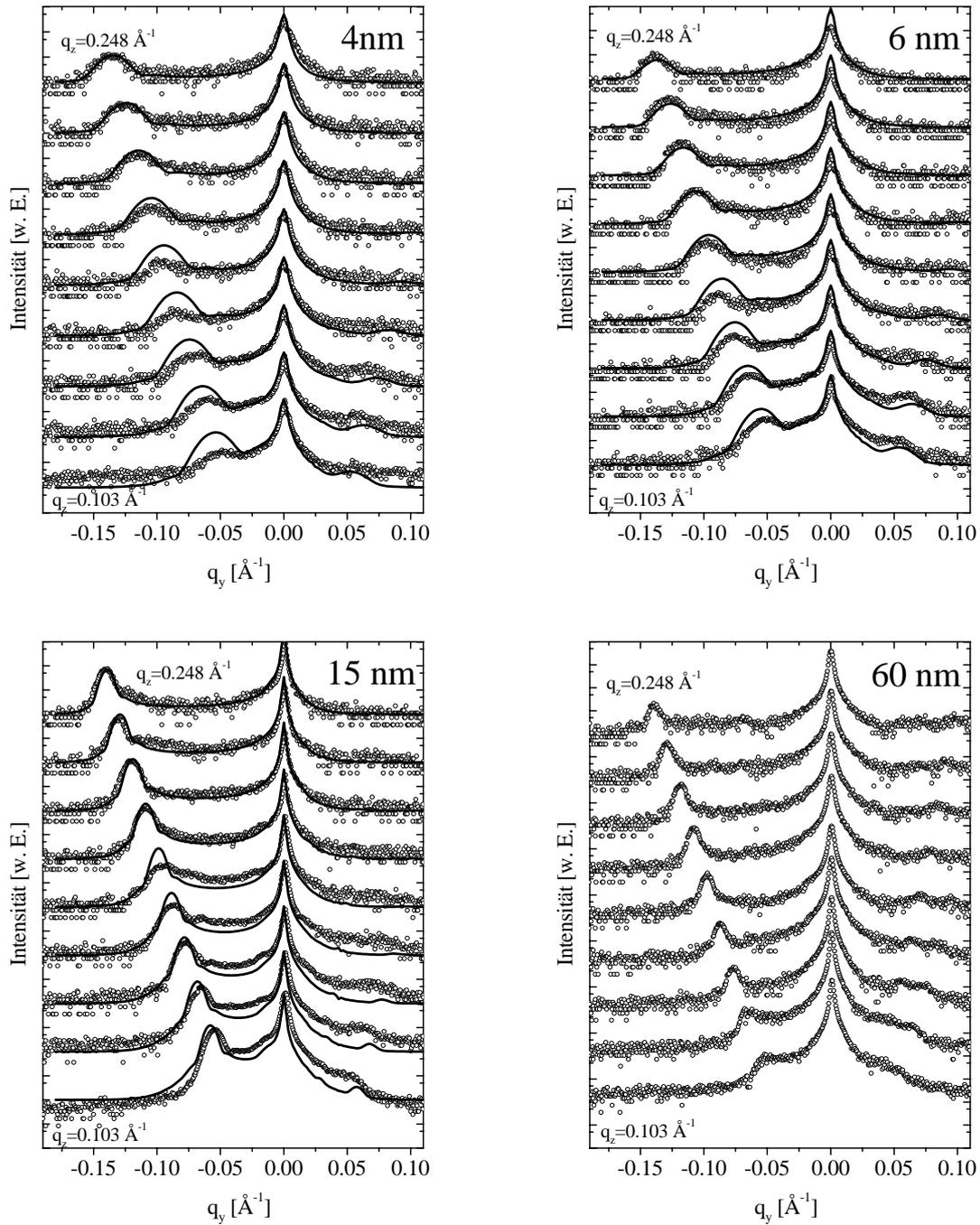


Abb.5.10. Röntgenkleinwinkelstreuung von 4 nm, 6 nm, 15 nm und 60 nm Ge-Schichten bei $\omega \approx 90^\circ$. Der ω -Winkel wurde mit q_z nachgefahren (siehe Text). Durchgezogene Linien zeigen Simulationsrechnungen. Bei 60 nm Ge kann nicht mehr von freistehenden Inseln ausgegangen werden (vgl. Abb. B.9), daher wurden für diese Probe keine Simulationen durchgeführt.

Tabelle 5.2. Ergebnisse aus den Simulationsrechnungen zur Röntgenkleinwinkelstreuung.

Probe	Schicht- dicke d	Basis- länge L_{bot}	fehlende Spitze β	Höhe H	Größen- dispersion σ_{size}	Fehlorien- tierung	Facetten- rauhigkeit σ_{facet}
478/2	4 nm	140 nm	0.50	11.2 nm	30%	2.0 %	1.0 nm
478/3	6 nm	150 nm	0.50	12.2 nm	30%	2.0 %	1.5 nm
473/3	15 nm	280 nm	0.40	27.4 nm	30%	0.25 %	1.0 nm

ist zu beachten, daß der PSD aufgrund der Beziehung $q_x = \cos 2\theta \cos \alpha_i - \cos \alpha_f$ im reziproken Raum nicht völlig gerade ist, sondern eine leichte Krümmung aufweist, die bei den q_y -Werten des CTR für große q_z bemerkbar wird: Während der CTR bei $\omega = 90^\circ$ sich vollständig in der q_y - q_z -Ebene bei $q_x = 0$ befindet, verringert sich die q_x -Projektion des PSD mit 2θ . Bei konstant gehaltenem ω schneidet der PSD nur noch die Flanke des CTR und verläßt ihn schließlich ganz. Daher wurde in den folgenden Messungen die ω -Position der Probe für jedes Paar α_i/α_f auf die maximale Intensität im CTR optimiert, d.h. der CTR in den Detektor gedreht. Abbildung 5.10 zeigt die GISAXS-Spektren für $\omega \approx 90^\circ$ zusammen mit Simulationsrechnungen. Bereits bei 4 nm Ge ist ein ausgeprägter CTR vorhanden. Während die Größe der Inseln mit zunehmender Ge-Dicke zunimmt, verringert sich die Breite des CTR-Maximums umgekehrt proportional zur Fläche der Seitenfacetten. Bei 60 nm Ge kann nicht mehr von freistehenden Inseln ausgegangen werden, vielmehr werden hier die facettierten Gräben zwischen den fast vollständig zusammengewachsenen Inseln beobachtet (vgl. Abschnitt 5.3 und Abb. B.9). Daher wurden für diese Probe keine Simulationen im Pyramidenmodell durchgeführt. Die $q_y(q_z)$ -Position des CTR entspricht jedoch auch bei dieser Probe einem Facettenwinkel von 29.5° .

Zur Berechnung der GISAXS-Spektren in DWBA wurde ein von M. Rauscher in der Sprache C implementiertes Programm verwendet. Die durchgezogenen Linien in den Abbildungen 5.7b) und 5.10 zeigen Simulationsrechnungen nach Gl. (2.35). Dabei wurde eine Größenverteilung und ein endlicher konstanter Untergrund eingeführt. Zudem wurde ein kleiner Anteil von entgegengesetzt fehlorientierten Pyramiden angenommen, um die schwache Schulter auf der rechten Seite des Zentrums wiederzugeben. Die Ergebnisse der Simulationsrechnungen sind in Tab. 5.2 zusammengefaßt. Aus allen Rechnungen ergab sich ein Facettenwinkel von 29.5° , der auf die Indizierung $\{113\}$ führt. Die Seitenlänge der Dachfläche L_{top} errechnet sich aus der Basislänge L_{bot} und dem Parameter β der abgeschnittenen Spitze (vgl. Abb. 2.9) nach $L_{top} = \beta L_{bot}$. Die Höhe H von abgeschnittenen Pyramiden mit gleichseitiger Basis und Facettenwinkel α ist durch $H = (1 - \beta) L \tan \alpha / (2\sqrt{3})$ gegeben.

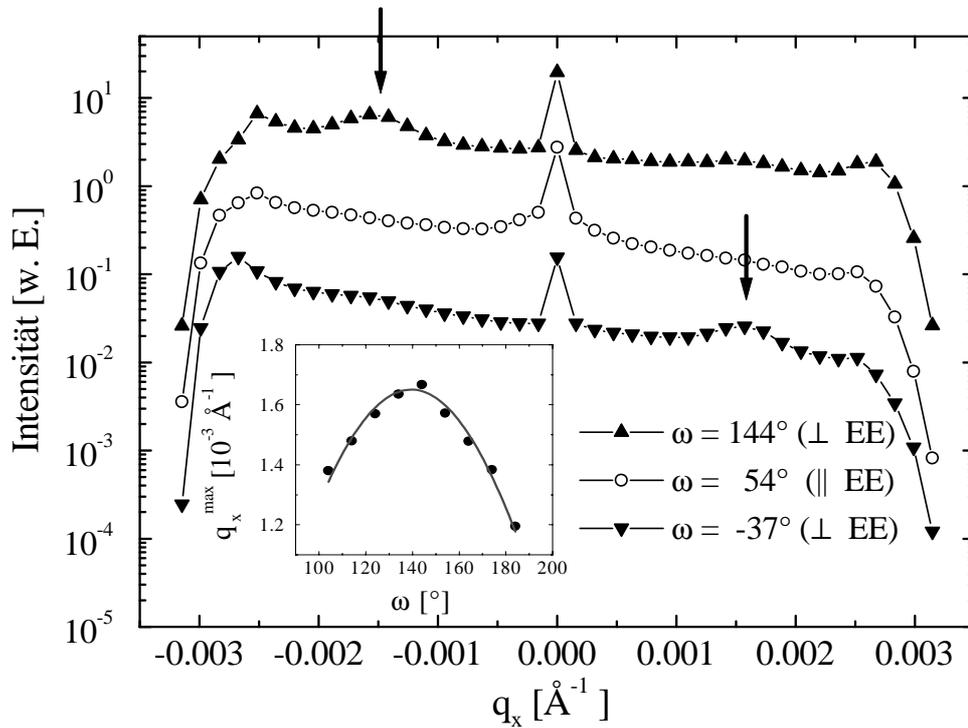


Abb.5.11. Laterale Ordnung der Inseln auf 15 nm Ge ('alte' Probe). Die diffuse Streuung in der Einfallsebene ('rocking-scans' bei $\alpha_i + \alpha_f = 2^\circ$) zeigt für $\omega = 144^\circ$ und $\omega = -37^\circ$ (Terrassen \perp Einfallsebene EE) ein Korrelationsmaximum bei $q_x = \mp 1.6 \times 10^{-3} \text{Å}^{-1}$, das für $\omega = 54^\circ$ nicht auftritt (Terrassen \parallel Einfallsebene EE). Im Einsatz ist die Position des Maximums für veränderten Azimut gezeigt.

Laterale Ordnung der Inseln

Wie auf Abb. 5.2 und 5.4a) zu erkennen ist, zeigt die 'alte' Probe 15 nm Ge auf Bor zusätzlich zur unidirektionalen Orientierung eine laterale Ordnung der Inseln untereinander: Die Bestimmung der Substratfehlorientierung von 0.5° mit einem Azimut von 54° zur $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ -Richtung ergibt, daß sich die Inseln entlang einer Richtung parallel zu den vizinalen Stufenkanten aufreihen. Der mittlere Abstand dieser Reihen beträgt etwa 4000Å .

Der Nachweis der lateralen Ordnung durch Röntgenstreuung ist methodisch besonders für die spätere Untersuchung vergrabener Strukturen bedeutsam: Bei vergrabenen Inseln ist bestenfalls die Form der Inseln durch direkte Methoden wie Transmissionselektronenmikroskopie zugänglich, die laterale Ordnung meist nicht mehr. Daher sollte an der 'alten' Probe der Nachweis der Ordnung durch Streumethoden demonstriert werden.

Der Abstand der Inselreihen von 4000Å entspricht einem Korrelationsmaximum bei $q_{\parallel} = 1.6 \times 10^{-3} \text{Å}^{-1}$. In der oben geschilderten Anordnung für GISAXS außerhalb der Einfallsebene mit einer Auflösung von $\Delta q_y = 3.0 \times 10^{-3} \text{Å}^{-1}$

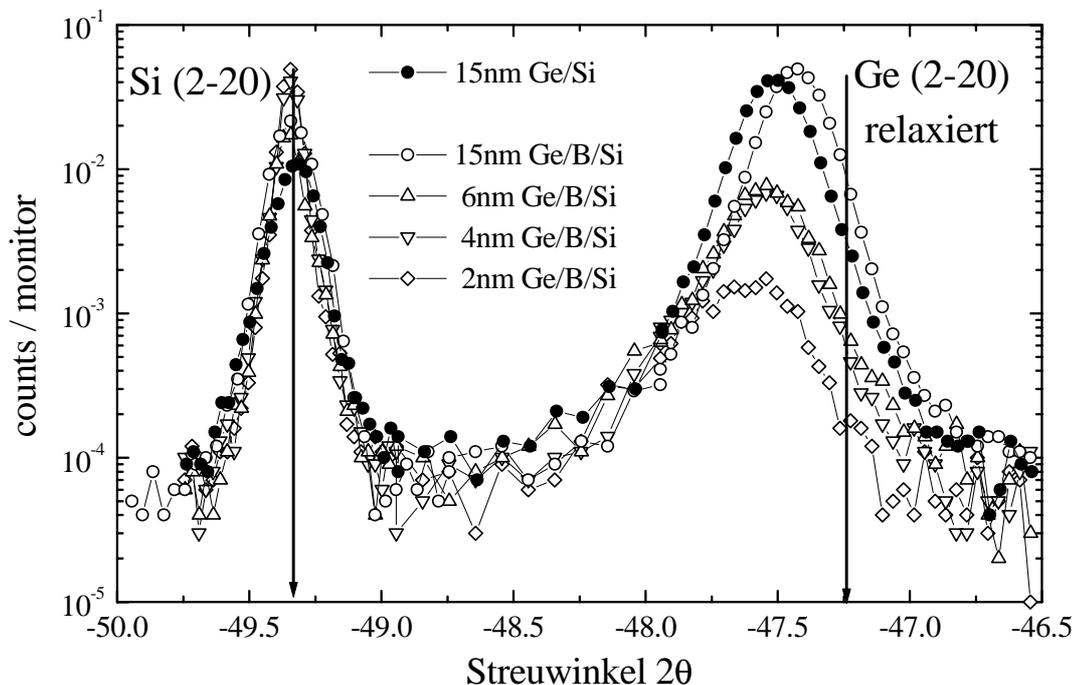


Abb.5.12. α_f -integrierte Intensität am Si- und Ge-(2 $\bar{2}0$)-Oberflächenreflex in radialer Richtung. Der Ge-Reflex der Inseln befindet sich nicht exakt an der Position für vollständig relaxiertes Ge, sondern ist abhängig von der nominellen Ge-Schichtdicke in Richtung Silizium verschoben.

ist daher die Korrelation nicht auflösbar. Mit der gleichen Anordnung läßt sich jedoch in der Einfallsebene eine bedeutend höhere Auflösung von $\Delta q_x \approx 2\pi/\lambda \sin \alpha_f \Delta \alpha_f = 0.13 \times 10^{-3} \text{Å}^{-1}$ erzielen.

Abbildung 5.11 zeigt die diffuse Streuung der 'alten' Probe in einem 'rocking-scan' bei $\alpha_i + \alpha_f = 2^\circ$. In der Stellung $\omega = 54^\circ$ stehen die Reihen parallel zum einfallenden Strahl. Bei $\omega = 144^\circ$ und $\omega = -37^\circ$ sind die Reihen senkrecht zur Einfallsebene, für $\omega = 144^\circ$ trifft der einfallende Strahl auf die Facette, für $\omega = -37^\circ$ auf die spitze Seite der Inseln. Die diffuse Streuung zeigt hier jeweils ein Korrelationsmaximum bei $q_x = -1.6 \times 10^{-3} \text{Å}^{-1}$ bzw. $q_x = +1.6 \times 10^{-3} \text{Å}^{-1}$. Das Auftreten der Maxima jeweils nur auf einer Seite reflektiert die Asymmetrie der Einfallsbedingung und zeigt, daß in erster Linie die Korrelation der Facetten zwischen den Reihen für das Ordnungsmaximum verantwortlich sind. Die Position des Ordnungsmaximums wurde für verschiedene ω bestimmt (Einsatz in Abb. 5.11). Eine Anpassung mit der Funktion $q_x = 2\pi/D \cos(\omega - \omega_{\max})$ ergibt einen Azimut $\omega_{\max} = 139.5^\circ$ und einen Reihenabstand $D = 3800 \text{Å}$.

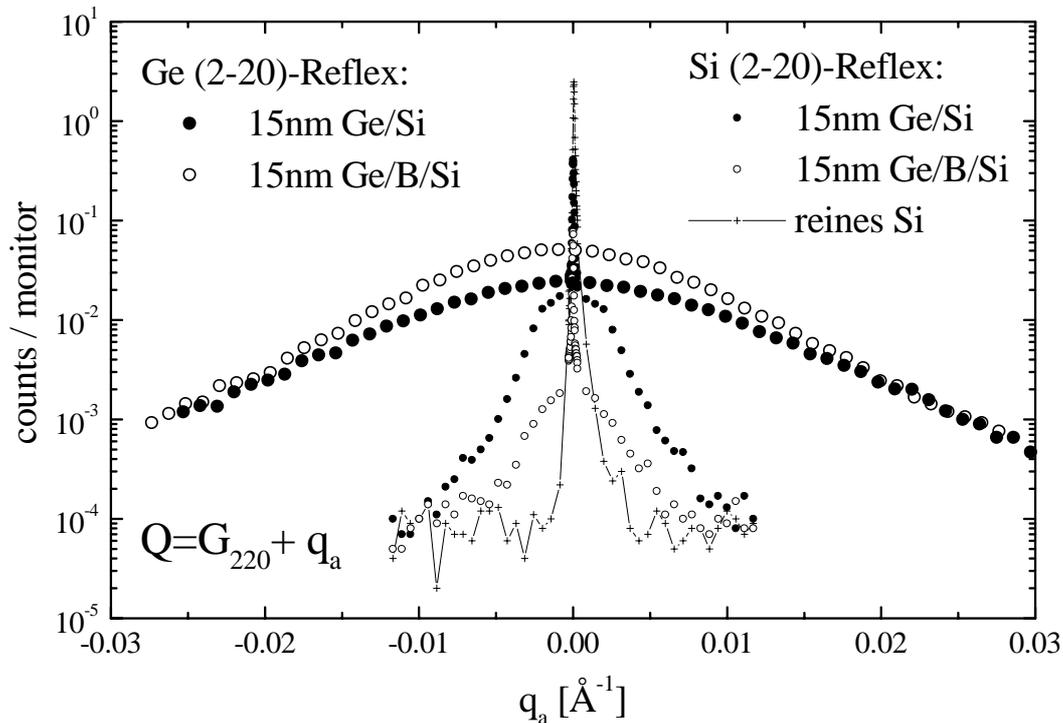


Abb.5.13. Angulare Breite des Si- und Ge-(2 $\bar{2}0$)-Oberflächenreflexes (α_f -integrierte Intensität, TCGID). Der Ge-Reflex ist etwa 0.015 \AA^{-1} breit (FWHM). Der Si-Reflex bei den Ge-Schichten zeigt unter dem scharfen Braggmaximum eine Verteilung diffuser Streuung mit Breite von 0.004 \AA^{-1} (FWHM).

5.5 Relaxation der Inseln: Röntgenbeugung unter streifendem Einfall

Um die Verspannung und Relaxation der Germaniuminseln zu untersuchen, wurden Beugungsmessungen unter streifenden Winkeln (GID) durchgeführt (Instrument D4, HASYLAB, $\lambda = 1.603 \text{ \AA}$). Abb. 5.12 zeigt die Intensität am (2 $\bar{2}0$)-Oberflächenreflex von Si und Ge, integriert über den Ausfallswinkel aufgenommen bei $\alpha_i = 0.35^\circ$. Wie man deutlich sieht, sind die Inseln nicht vollständig relaxiert (Braggwinkel von Ge: $\theta = 23.62^\circ / 2\theta = 47.24^\circ$), sondern zeigen nur eine partielle Relaxation zum intrinsischen Gitterparameter von Ge, die mit der nominellen Schichtdicke von 80% bei 2 nm Ge bis 90% bei 15 nm Ge zunimmt, jeweils auf der Bor-Oberflächenphase. Auffallend ist die deutlich schwächere Relaxation der 15 nm Germaniumschicht auf reinem Si (86%). Offenbar erleichtert die Bor-Oberflächenphase den Abbau von Verspannungen an der Grenzfläche.

Die Breite der Reflexe wurde mit hoher Auflösung (TCGID, vgl. Abschnitt 4.4.1) vermessen (Abb. 5.13). Die angulare Halbwertsbreite des Ge-(2 $\bar{2}0$)-Reflexes beträgt etwa 0.015 \AA^{-1} und liegt in der gleichen Größenordnung wie die radiale

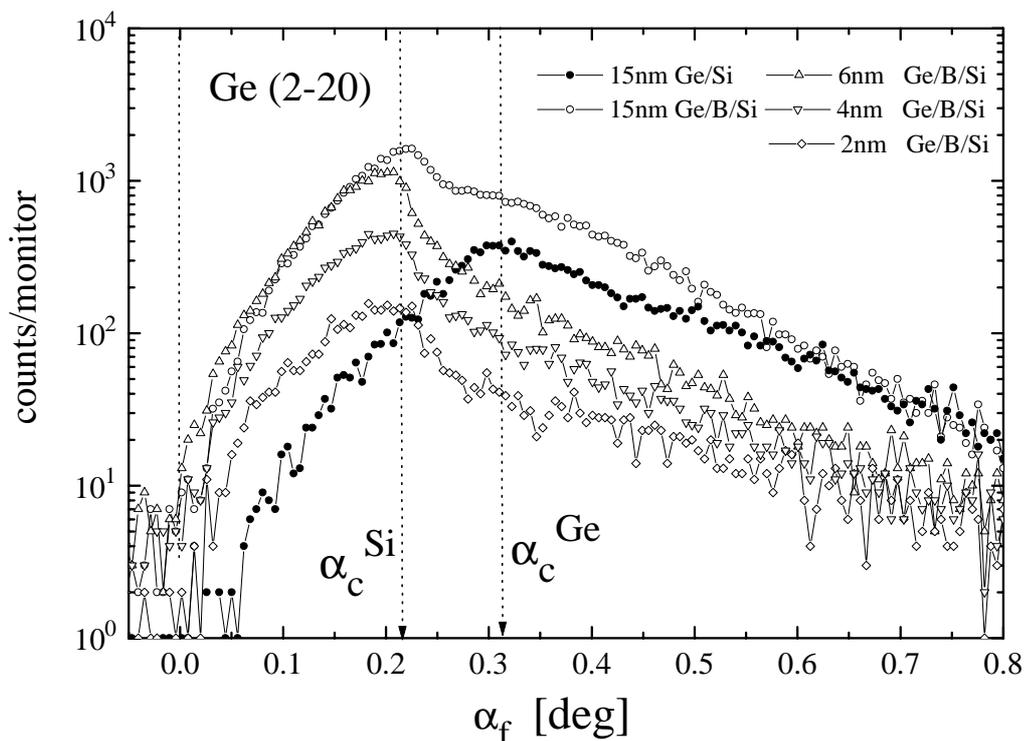


Abb.5.14. α_f -Spektren am Ge-(2 $\bar{2}0$)-Oberflächenreflex für $\alpha_i = 0.10^\circ$. Am Ge-Reflex zeigen alle Proben mit Bor-Zwischenschicht einen verminderten kritischen Winkel.

Breite aus Abb.5.12 (0.014 \AA^{-1}). Die Halbwertsbreite des Ge-Reflexes entspricht einer Länge von $2\pi/\text{FWHM} = 420 \text{ \AA}$ und kann nicht durch den schärferen Formfaktor der viel größeren Inseln erklärt werden. Als Ursache für die Verbreiterung des Reflexes kommt die interne Versetzungsstruktur der Inseln oder ein kleinerer kristalliner Inselkern durch eine mögliche Oxidation an der Oberfläche in Frage. Unter dem Si-Reflex liegt eine Verteilung diffuser Streuung, deren Breite ($\text{FWHM}=0.004 \text{ \AA}^{-1}$ bzw. $2\pi/\text{FWHM} \approx 1600 \text{ \AA}$) eher der lateralen Ausdehnung am Fuße der Inseln entspricht. Für die diffuse Streuung am Si-Reflex können die lokalen Verzerrungen des Si-Gitters unmittelbar unterhalb der Inseln verantwortlich gemacht werden.

Die α_f -Profile am Ge(2 $\bar{2}0$)-Reflex sind in Abb. 5.14 gezeigt. Nur die Schicht ohne Bor zeigt ein Maximum am kritischen Winkel von Ge-Volumenmaterial. Bei allen Ge-Schichten auf der Bor-Oberflächenphase wird ein Maximum beim kritischen Winkel des Siliziumsubstrates $\alpha_c = 0.23^\circ$ beobachtet, wie es für freistehende Inseln erwartet wird [28].

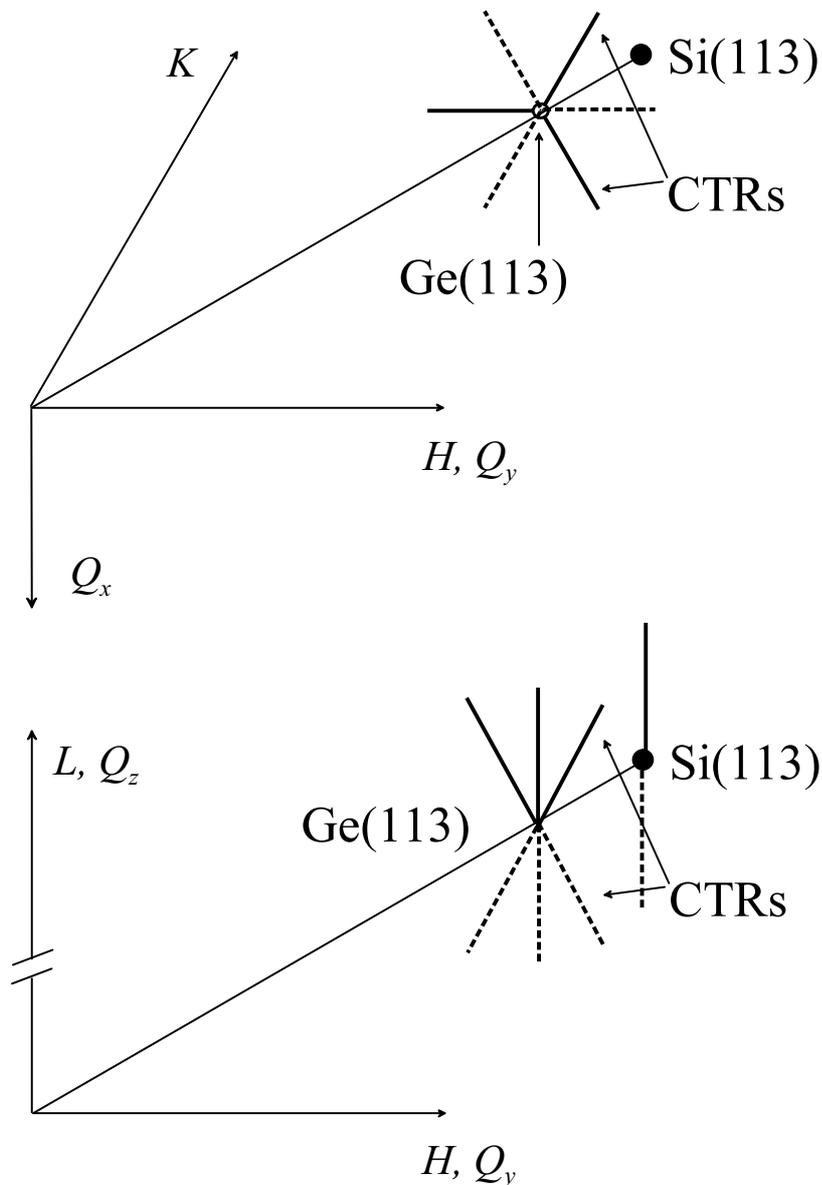


Abb.5.15. Schema zur CTR-Streuung im hexagonalen Koordinatensystem (HKL) der $Si(111)$ -Oberflächenbasis, bzw. im rechtwinkligen System (Q_x, Q_y, Q_z).

5.6 Restverspannung und kristalliner Formfaktor: 'CTR'-Streuung

Wie die GID-Untersuchungen zeigten, sind die Inseln nur partiell relaxiert. Um den Einfluß der Restverspannung auf die innere kristalline Struktur zu untersuchen, wurde die 'Crystal-Truncation-Rod'-Streuung an der 'alten' Probe mit einer Substratfehlorientierung von 0.5° in der Umgebung asymmetrischer Braggreflexe

gemessen.

Die Untersuchung der strukturellen Eigenschaften facettierter Oberflächen durch CTR-Streuung ist mittlerweile eine etablierte Methode der oberflächen-sensitiven Röntgenstreuung. *Gråbæk et al.* [143] studierten den Rauigkeitsübergang an $\{111\}$ - und $\{100\}$ -Facetten von Bleiausscheidungen in implantierten Al-Kristallen. Die Temperaturabhängigkeit der Facettierung von vizinalen Si(113)-Oberflächen wurde von *Song und Mochrie* [144] untersucht. Besonders sensitiv ist die CTR-Streuung auf die internen Verzerrungen in 'hut clustern' auf Ge und Si [122, 145]. Die Verspannung und Relaxation an der Grenzfläche von Cu-Keilen in Cu-Filmen auf Nickel(001) konnte von *Rasmussen et al.* [146] geklärt werden. Facettierte Co-Inseln auf Pt(110) wurden kürzlich von *Lundgreen et al.* mit CTR-Streuung beobachtet [147].

Hexagonale Oberflächenbasis

Für die Messungen wurde die Umgebung der asymmetrischen Reflexe $(\bar{1}13)_{\text{cub}} = (113)_{\text{hex}}$ und $(13\bar{1})_{\text{cub}} = (1\bar{2}3)_{\text{hex}}$ gewählt. Aufgrund der Orientierung des Substrates wird im folgenden die hexagonale Oberflächenbasis $(HKL)_{\text{hex}}$ der (111)-Oberfläche anstelle der kubischen Koordinaten $(hkl)_{\text{cub}}$ verwendet (Abb. 5.15). Die Basisvektoren $\mathbf{A} = (100)_{\text{hex}} = \frac{1}{3}(422)_{\text{cub}}$, $\mathbf{B} = (010)_{\text{hex}} = \frac{1}{3}(\bar{2}\bar{2}4)_{\text{cub}}$ und $\mathbf{C} = (001)_{\text{hex}} = \frac{1}{3}(111)_{\text{cub}}$ der hexagonalen Basis werden in einfacher Weise aus den kubischen Koordinaten (hkl) durch die Transformationen

$$\begin{pmatrix} H \\ K \\ L \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} -1/2 & -1/2 & 0 \\ 0 & -1/2 & 1/2 \\ 1 & 1 & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} h \\ k \\ l \end{pmatrix} \quad (5.1)$$

bzw. in umgekehrter Richtung

$$\begin{pmatrix} h \\ k \\ l \end{pmatrix} = \frac{1}{3} \begin{pmatrix} -4 & -2 & 1 \\ 2 & -2 & 1 \\ 2 & 4 & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} H \\ K \\ L \end{pmatrix} \quad (5.2)$$

erhalten. Die hexagonalen Basisvektoren \mathbf{A} und \mathbf{B} liegen vollständig in der Oberfläche, \mathbf{C} steht senkrecht auf der (111)-Oberfläche. Wenn nicht ausdrücklich anders bezeichnet, bezieht sich im folgenden die Indizierung auf hexagonale Koordinaten.

Den drei Facetten $(113)_{\text{cub}}$, $(131)_{\text{cub}}$ und $(311)_{\text{cub}}$ entsprechen in der hexagonalen Basis die 'Truncation-Rods' entlang (015) , $(1\bar{1}5)$ und $(\bar{1}05)$. Die laterale Komponente (110) des (113) -Reflexes entspricht einem kubischen $(\bar{2}02)_{\text{cub}}$ -Oberflächenreflex, der vertikale Impulsübertrag (001) lautet in kubischen Koordinaten $(111)_{\text{cub}}$. Wie man in Abb. 5.15 sofort erkennt, können die CTRs der Seitenfacetten durch Linien-Scans bei festgehaltenem L durch den Ge(113)-Reflex entlang der Richtungen $(H00)$ und $(0K0)$ sowie in der transversalen Richtung $(H\bar{K}0)$ beobachtet werden. Die $(111)_{\text{cub}}$ -Dach- und Bodenfacette erzeugen

einen CTR entlang $(00L)$ ausgehend vom Ge-Reflex, die Substratoberfläche einen $(00L)$ -Rod ausgehend vom Substratreflex.

Da die Ge-Inseln partiell relaxiert sind, ist der Ge-Reflex vom Substratreflex getrennt. Daher kann der kristalline Formfaktor der Inseln unabhängig vom Substrat beobachtet werden. Bei einer vollständig relaxierten Insel ist die Intensität entlang der CTRs nur durch den Formfaktor der Insel sowie durch die Abhängigkeit des Atomformfaktors und der Polarisation vom Streuwinkel bestimmt. Im Falle teilrelaxierter Inseln erwartet man eine zusätzliche Asymmetrie der Intensitätsverteilung aufgrund der Restverspannung. Ein rein vertikaler Gradient des lateralen Gitterparameters innerhalb der Inseln verursacht eine Asymmetrie der gestreuten Intensität mit dem lateralen Impulsübertrag [122]. Eine reine Relaxation senkrecht zur Facettenoberfläche bewirkt eine Asymmetrie parallel zur Facettennormale (vgl. Abschnitt 2.6 und Gl. (2.71)).

Rechtwinklige Oberflächenbasis

Bei der Berechnung des Formfaktors ist die Umrechnung aus der hexagonalen Basis in ein rechtwinkliges Koordinatensystem (Q_x, Q_y, Q_z) mit $Q_z \parallel L$ und Q_x und Q_y in der Oberfläche vorteilhaft. Um mit der Orientierung des Koordinatensystems in Gl. (2.42) konsistent zu bleiben, wählen wir dazu $Q_y \parallel H$. Zwischen dem rechtwinkligen Koordinatensystem und der hexagonalen Oberflächenbasis wird durch die folgenden Transformationen⁴ vermittelt:

$$\begin{pmatrix} Q_x \\ Q_y \\ Q_z \end{pmatrix} [\text{\AA}^{-1}] = \frac{2\pi}{a_0} \begin{pmatrix} -\frac{2\sqrt{6}}{3} \begin{bmatrix} 0 & \frac{\sqrt{3}}{2} \\ 1 & \frac{1}{2} \end{bmatrix} & 0 \\ 0 & \frac{1}{\sqrt{3}} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} H \\ K \\ L \end{pmatrix} [\text{r.l.u.}] \quad (5.3)$$

$$\begin{pmatrix} H \\ K \\ L \end{pmatrix} [\text{r.l.u.}] = \frac{2\pi}{a_0} \begin{pmatrix} \frac{3}{2\sqrt{6}} \begin{bmatrix} \frac{1}{\sqrt{3}} & 1 \\ -\frac{2}{\sqrt{3}} & 0 \end{bmatrix} & 0 \\ 0 & \sqrt{3} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} Q_x \\ Q_y \\ Q_z \end{pmatrix} [\text{\AA}^{-1}]. \quad (5.4)$$

Experimentelle Daten

Für die Messungen der CTR-Streuung wurde der gleiche Aufbau verwendet wie in Abb. 5.6 dargestellt. Der PSD diente jedoch als Punktdetektor, indem parallel und senkrecht zum Zählrohr eine Blende angebracht und die Intensität

⁴Den Ursprung des Faktors $2\sqrt{6}/3$ macht man sich leicht klar, indem man die Länge des hexagonalen Vektors (100) im kubischen reziproken Gitter berechnet.

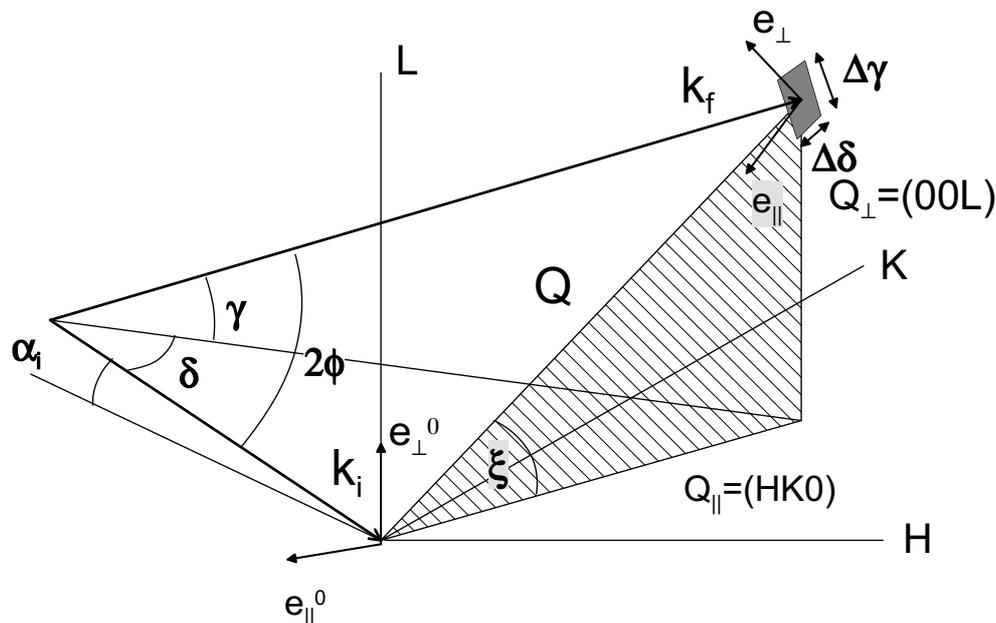


Abb.5.16. Streuwinkel und Komponenten des Impulsübertrags. Der Einfallswinkel $\alpha_i = 0.2^\circ$ wurde konstant gehalten, δ und γ lagen bei etwa 40° bzw. 20° . Die einfallende Welle ist in der Ringebene polarisiert, d.h. sie besitzt nur eine Komponente parallel zu e_{\parallel}^0 . ξ bezeichnet den Winkel zwischen dem Impulsübertrag und der Probenoberfläche bzw. Ringebene.

über diesen Bereich integriert wurde. Das Sechs-Kreis-Diffraktometer ermöglichte Messungen entlang von HKL -Richtungen ('line-scans') bei festgehaltenem Einfallswinkel $\alpha_i = 0.2^\circ$. Der Braggreflex wurde durch entsprechende Drehungen der Probe um den Winkel ω und des Detektorarms um die Winkel $\delta = 2\theta$ parallel zur ω -Achse und $\gamma = \alpha_f$ senkrecht dazu angefahren.

Die Auflösung in der horizontalen Richtung (entlang δ) wurde durch eine 3 mm Detektorblende im Abstand von 810 mm von der Probe und eine 3 mm Gesichtsfeldblende 85 mm von der Probe entfernt definiert. Vertikal (entlang γ) wurde eine 2 mm Detektorblende gesetzt. Das Auflösungselement ist wegen der vernachlässigbaren Winkeldivergenz und der hohen Energieschärfe des einfallenden Röntgenstrahls durch eine Fläche gegeben, die in sehr guter Näherung durch ein Rechteck im reziproken Raum mit Oberflächennormale \hat{p} parallel zu \mathbf{k}_f beschrieben wird. Die laterale Ausdehnung des Auflösungselements beträgt $\Delta Q_{\parallel} = 0.023 \text{ \AA}^{-1}$, die vertikale Auflösung $\Delta Q_{\perp} = 0.007 \text{ \AA}^{-1}$.

Die experimentell ermittelte Position des Ge-Reflexes $(HKL)_{\text{Ge}} = (0.967, 0.962, 2.884)$ ist in Abb. 5.17 gezeigt. H und K -Wert sind leicht verschieden und tendieren zu kleineren Gitterparametern (Fehlerbalken zeigen die volle Halbwerts-

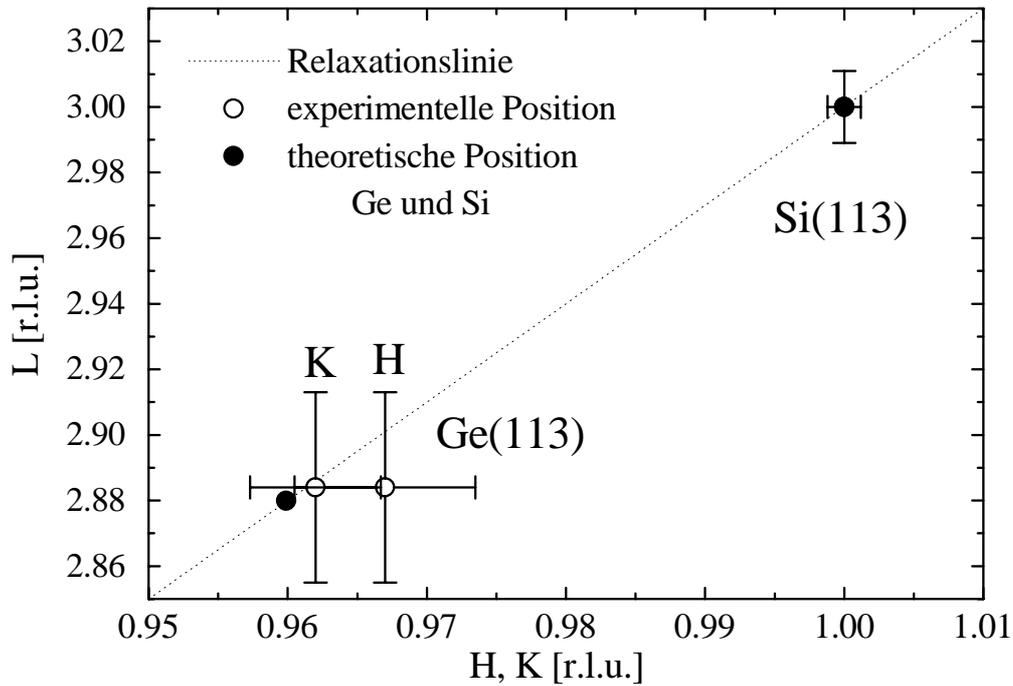
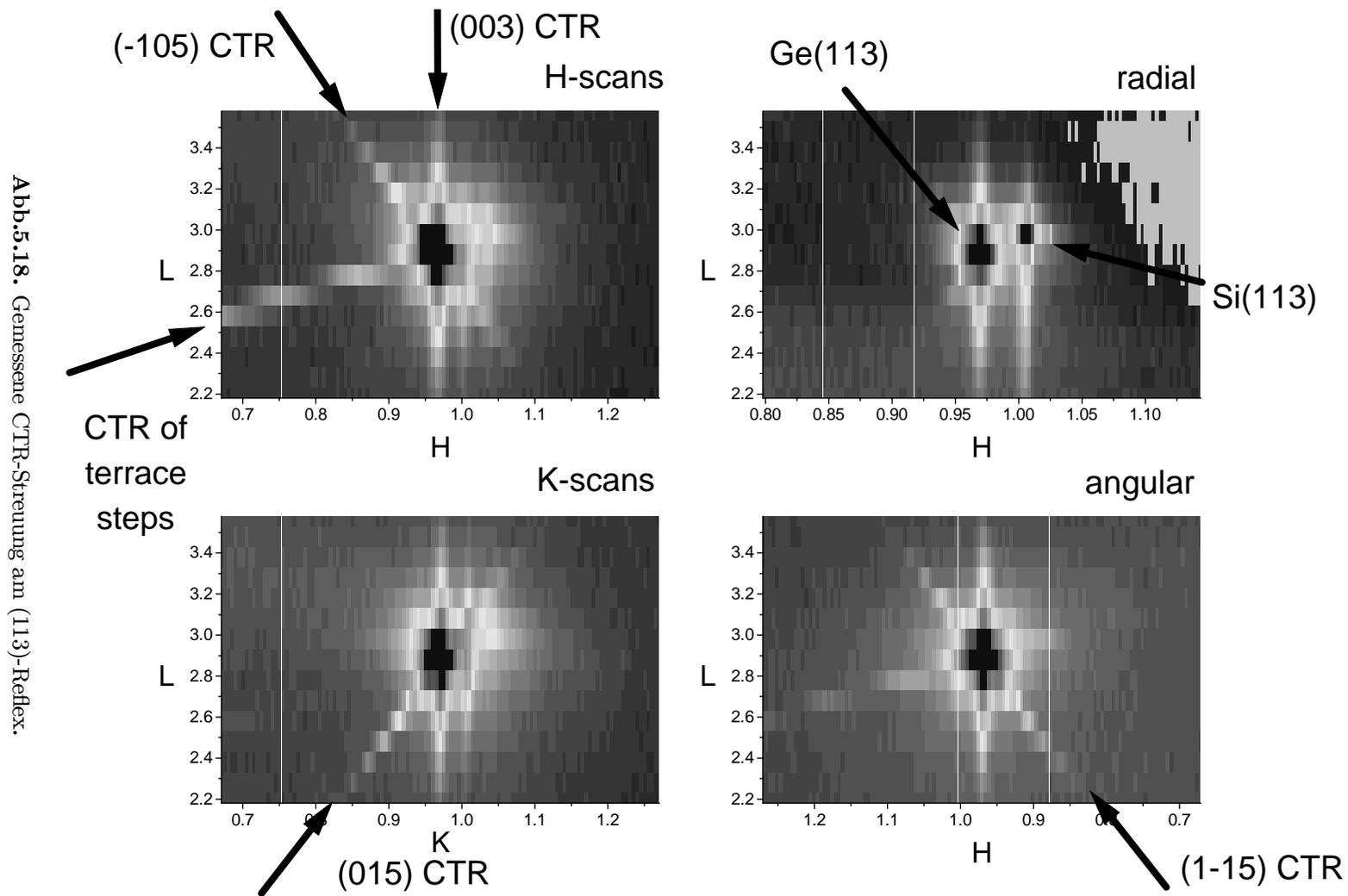


Abb.5.17. Position des Ge-Reflexes. Die Balken bezeichnen die gemessene Halbwertsbreite der Maxima (FWHM). Die Breite des Si-Reflexes entspricht der experimentellen Auflösung. Auf der Relaxationslinie liegen Strukturen, deren lateraler und vertikaler Gitterparameter identisch sind (d.h. ein unverzerrtes kubisches Gitter).

breite der Reflexe). Beide Richtungen schließen einen unterschiedlichen Winkel zur Orientierung des Substrat-'miscut' ein, wobei die K -Richtung nahezu senkrecht zur 'miscut'-Orientierung verläuft. Der Einfluß der Substratstufen könnte die unterschiedliche Relaxation erklären. Im Mittel liegt der Ge-Reflex nicht auf der Relaxationslinie, daher ist eine Restverspannung innerhalb der Insel vorhanden.

Um den Reflex der teilrelaxierten Inseln wurde die Intensität durch 'line-scans' bei konstantem L entlang $(H00)$, $(0K0)$, in der transversalen Richtung $(H\bar{K}0)$ und in der radialen Richtung $(HK0)$ aufgenommen. In der lateralen Richtung wurde ein Bereich von $H = H_{Ge} \pm 0.3$ bzw. $K = K_{Ge} \pm 0.3$ abgedeckt, L wurde in 15 Schritten um $L_{Ge} \pm 0.7$ variiert. Abbildung 5.18 zeigt die gestreute Intensität zusammengesetzt zu einem RSM für jede Richtung. (Die einzelnen Messungen zusammen mit Simulationsrechnungen sind im Anhang C gezeigt.) In der radialen Richtung werden Substrat- und Inselreflex jeweils mit dem dazugehörigen $(00L)$ -CTR beobachtet. In den anderen drei Richtungen erkennt man den Ge-Reflex mit dem $(00L)$ -'Rod' und einem Facetten-'Rod'. Die angulare Richtung ist unempfindlich für eine Variation des lateralen Gitterparameters, hier würde



nur eine Asymmetrie infolge einer Relaxation senkrecht zur Facette erwartet. Die Intensität des $(1\bar{1}5)$ -CTR ist symmetrisch um den Ge-Reflex verteilt, daher kann eine solche vertikale Relaxation im Rahmen der experimentellen Genauigkeit ausgeschlossen werden. Die Messungen entlang $(H00)$ und $(0K0)$ zeigen eine Asymmetrie des $(\bar{1}05)$ - bzw. (015) -CTR: Auf der Seite der größeren radialen Impulsübertragskomponente (d.h. kleinerer lateraler Gitterparameter) ist die Intensität vermindert. Durch einen Vergleich der Daten mit Simulationsrechnungen im nächsten Abschnitt wird geklärt, ob diese Asymmetrie allein durch experimentelle Faktoren wie Polarisierung und Atomformfaktorabhängigkeit hervorgerufen wird.

Neben den CTRs der Facetten wird in den RSM entlang $(H00)$ ein weiterer geneigter CTR beobachtet. Die Neigung dieses CTR entspricht im Realraum einem Facettenwinkel von 70° zur Substratoberfläche. Dieser CTR liegt auch am $(1\bar{2}3)$ -Reflex in der $(H00)$ -Richtung. Diese Richtung fällt mit dem Azimut des 'miscut' zusammen. Daher wird dieser CTR den Seitenflächen der 'miscut'-induzierten Substratstufen zugeordnet [144].

Zusätzlich wird in den RSM entlang $(H00)$ und $(0K0)$ ein senkrechter CTR exakt an der Position $H = 1$ bzw. $K = 1$ beobachtet (vgl. auch Abb. C.1 und C.2 im Anhang C). Die Herkunft dieses CTR ist ungeklärt. Da die beiden Richtungen einen Winkel von 60° einschließen, kann dieser CTR nicht als Ausläufer des Substratreflexes interpretiert werden. Ein solcher würde im hexagonalen Koordinatensystem jeweils bei $H, K > 1$ auftreten. Mögliche Ursachen für diesen CTR werden am Ende dieses Kapitels diskutiert.

Simulation ohne Verspannung: Analytische Rechnung

Zunächst wurde eine Simulation der gemessenen CTR-Streuung in einem einfachen analytischen Modell durchgeführt. Dazu wird die Streufunktion aus Gl. (2.35) nach Gl. (2.61) mit dem reziproken Gitter der Inseln 'gefaltet'. Da der Formfaktor rasch abfällt, genügt es in der Praxis, $S(\mathbf{q})$ in Gl. (2.35) nur mit dem (113) -Reflex zu falten. Wegen $\alpha_i \approx \alpha_c$ muß hier wiederum die Streuung der am Substrat spekulär reflektierten Welle berücksichtigt werden. Die simulierte Intensitätsverteilung wurde entsprechend der Polarisierung⁵ und der Atomformfaktorabhängigkeit⁶ korrigiert und mit der experimentellen Auflösung gefaltet. Um den hohen Untergrund der Messung anzupassen, wurde ein Lorentz-verteilter Untergrund addiert.

⁵Die experimentelle Intensität ist aufgrund der linearen Polarisierung der einfallenden Welle proportional zu $(\sin^2 \xi + \cos^2 \xi \cos^2 2\phi)$. ξ bezeichnet darin den Winkel zwischen Impulsübertragsvektor und der Probenoberfläche bzw. der Ringebeine, 2ϕ ist der Streuwinkel. Zur Definition der Winkel vgl. Abb. 5.16.

⁶Zur Korrektur des Atomformfaktors wurden die tabellierten Werte aus [38] durch die Funktion $f_{\text{Ge}}^2 = a + b \exp(-c \sin \theta / \lambda)$ mit den Parametern $a = -150$, $b = 1188$ und $c = 2.3555$ interpoliert.

Wie sich zeigte, konnte die Asymmetrie der Streuerverteilung der CTRs durch das Modell einer Insel mit homogenem Gitterparameter nicht nachvollzogen werden, während jedoch die Asymmetrie des Untergrundes gut durch die Korrekturen reproduziert wurde.

Vertikaler Verspannungsgradient: 'brute force'-Rechnungen

Um den Einfluß einer internen Restspannung der Inseln auf die CTR-Streuung zu untersuchen, wurde die Streuung von verzerrten Ge-Inseln zunächst mittels 'brute force'-Rechnungen simuliert. Das verwendete Programm *DISCUS* [148] liest dazu die Koordinaten aller Atome einer virtuellen Ge-Insel ein und berechnet durch phasenrichtige Summation aller Streuamplituden die (kinematische) Streuung. Das Verfahren ist sehr einfach, erfordert aber viel Rechenzeit und ausreichend Realspeicher im Rechner. Es kommt daher für die Anpassung von Simulationsparametern nicht in Frage. Der entscheidende Vorteil liegt darin, daß die Streuung von beliebigen Verzerrungskonfigurationen berechnet werden kann, die nicht analytisch beschrieben werden können.

In einem ersten Schritt wurde eine facettierte Ge-Pyramide mit einem zu 90% relaxierten Gitterparameter erzeugt und der laterale Gitterparameter a_{HK} linear mit der Höhe z innerhalb der Pyramide variiert (vgl. Gl. (5.7)). Die relative Änderung $\Delta a_{HK}/a_{HK}$ wurde zwischen 0.3% und 0.5% gewählt.

Anschließend wurde mit dem Programm *DISCUS* die gestreute Intensität berechnet, wobei eine Asymmetrie der Intensitätsverteilung in den CTRs gefunden wurde. Für die Rechnungen wurde eine Insel der Basislänge $L = 1912 \text{ \AA}$ und Höhe $H = 195 \text{ \AA}$ ($\beta = 0.38$) mit ca. 7×10^6 Atomen verwendet. Die Dimensionen der Insel sind damit deutlich kleiner als die aus GISAXS und AFM-Daten erhaltenen Größen. Der erforderliche Realspeicherbedarf zur Berechnung der Streuung liegt damit jedoch bereits an der Grenze der am Lehrstuhl vorhandenen Rechner⁷. Gleichzeitig erlaubt die erforderliche hohe Rechenzeit von einigen Stunden für einen Parametersatz einschließlich der Generierung der Atompositionen keine iterative Anpassung der Simulationsrechnungen an die Meßdaten.

Vertikaler Verspannungsgradient: Semi-analytische Rechnung

Um den erfolgversprechenden Ansatz eines Gitterparametergradienten innerhalb der Insel weiterzuverfolgen, wurde ein halb-analytischer Ausdruck zur Beschreibung der CTR-Streuung entwickelt. Unter der Annahme, daß die einzelnen (111)-Netzebenen innerhalb der Inseln vernachlässigbar gekrümmt sind, kann die Streuung analog zu Abschnitt 2.4 durch eine phasenrichtige Summation über die

⁷Für eine Insel mit bis 1×10^7 Atomen belegt *DISCUS* 377 MB Hauptspeicher. Eine realistischere Insel mit Basislänge $L = 2509 \text{ \AA}$ und Höhe $H = 390 \text{ \AA}$ ($\beta = 0.05$) enthält 16634726 Atome und benötigt 630 MB Hauptspeicher.

Formfaktoren einzelner Dreiecke berechnet werden⁸. Der Formfaktor ergibt sich dann aus

$$s_{\Delta}(\mathbf{Q}) = \sum_{n=0}^N e^{i\mathbf{Q}_z z(n)} s_{tri}[\mathbf{Q}_{\parallel} - \mathbf{G}_{\parallel}(n), L(n)] \quad (5.5)$$

mit dem Formfaktor eines gleichseitigen Dreiecks s_{tri} aus Gl.(2.42). Die vertikale Variation des lateralen Gitterparameters $a_{HK}(z)$ wird durch die entsprechende Variation der lateralen Komponente des reziproken Gittervektors $\mathbf{G}_{\parallel}(n)$ der n -ten Netzebene in der Höhe

$$z(n) = \sum_{j=0}^n d_{\perp}(j) \quad (5.6)$$

beschrieben. Die tetragonale Verzerrung des Gitters wird in einfacher Weise durch den jeweiligen vertikalen Abstand $d_{\perp}(j)$ der einzelnen Unternetzebenen berücksichtigt. Ein entsprechendes Programm wurde gemeinsam mit M. Rauscher implementiert.

Gegenüber der 'brute force'-Rechnung bringt der halb-analytische Ansatz wegen der nurmehr einfachen Summation einen großen Gewinn an Rechenzeit, der auch eine detaillierte Berücksichtigung der experimentellen Auflösung ermöglicht, über die bei der Berechnung der gestreuten Intensität integriert wurde.

Für die Simulationsrechnungen wurden verschiedene Modelle für die Variation des lateralen Gitterparameters mit der Höhe untersucht. Dabei wurde der Gradient jeweils so gewählt, daß der mittlere Gitterparameter gewichtet nach dem Streuvermögen der jeweiligen Gitterebenen der experimentellen Position des Ge-Reflexes entspricht.

- **Linearer Gradient:** In diesem Modell wurde der laterale Gitterparameter a_{HK} linear mit der Höhe z innerhalb der Pyramide variiert:

$$a_{HK}(z) = a_{HK} \left[1 + \frac{\Delta a_{HK}}{a_{HK}} \left(\frac{z}{z_{max}} \right) \right]. \quad (5.7)$$

- **Quadratischer Gradient:** Der laterale Gitterparameter a_{HK} variiert quadratisch mit der Höhe z ausgehend vom Boden der Pyramide:

$$a_{HK}(z) = a_{HK} \left[1 + \frac{\Delta a_{HK}}{a_{HK}} \left(\frac{z}{z_{max}} \right)^2 \right]. \quad (5.8)$$

⁸Atomistische Relaxationsrechnungen nach einem klassischen molekulardynamischen Verfahren [149,150] in Zusammenarbeit mit K. Nordlund, University of Helsinki, Finnland, ergaben für die Netzebenen innerhalb der Pyramide eine vernachlässigbare Krümmung. Zur Berechnung der elastischen Relaxation der Restverspannung wurden die Atompositionen an der Grenzfläche zum Si-Substrat festgehalten und für die restlichen Positionen molekulardynamisch die Gleichgewichtsposition in einem klassischen semi-empirischen Potential [151] ermittelt.

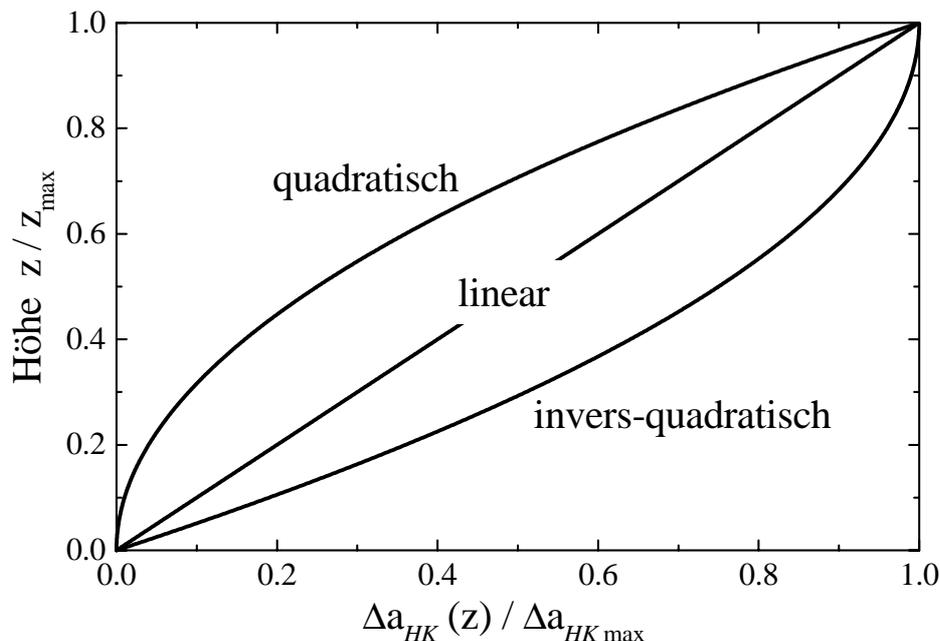


Abb.5.19. Modelle zum vertikalen Gradienten des lateralen Gitterparameters.

- **Invers-quadratischer Gradient:** In diesem Modell wurde der laterale Gitterparameter a_{HK} quadratisch mit der Höhe z ausgehend vom Dach der Pyramide variiert:

$$a_{HK}(z) = (a_{HK} + \Delta a_{HK}) \left[1 - \frac{\Delta a_{HK}}{a_{HK} + \Delta a_{HK}} \left(\frac{z_{max} - z}{z_{max}} \right)^2 \right] \quad (5.9)$$

Der quadratische Gradient betont den Gitterparameter in der Nähe der Grundfläche, während das invers-quadratische Modell den Gitterparameter in der Nähe der Pyramidenspitze stärker hervorhebt. Die verschiedenen Profile sind in Abb. 5.19 schematisch dargestellt.

Wegen der tetragonalen Verzerrung der Einheitszellen ist auch eine Variation des vertikalen Gitterparameters zu erwarten. Bei den Simulationen konnte im Rahmen der experimentellen Auflösung jedoch kein signifikanter Unterschied zu einer Rechnung mit einem konstant gehaltenen mittleren Netzebenenabstand $d_{\perp}(j) = 5.65 \text{ \AA}$ gefunden werden.

Ergebnisse der semi-analytischen Simulationsrechnung

Abbildung 5.20 zeigt exemplarisch den Effekt der verschiedenen Gitterparametergradienten auf die CTR-Streuung im Vergleich zu einer Simulation mit konstant

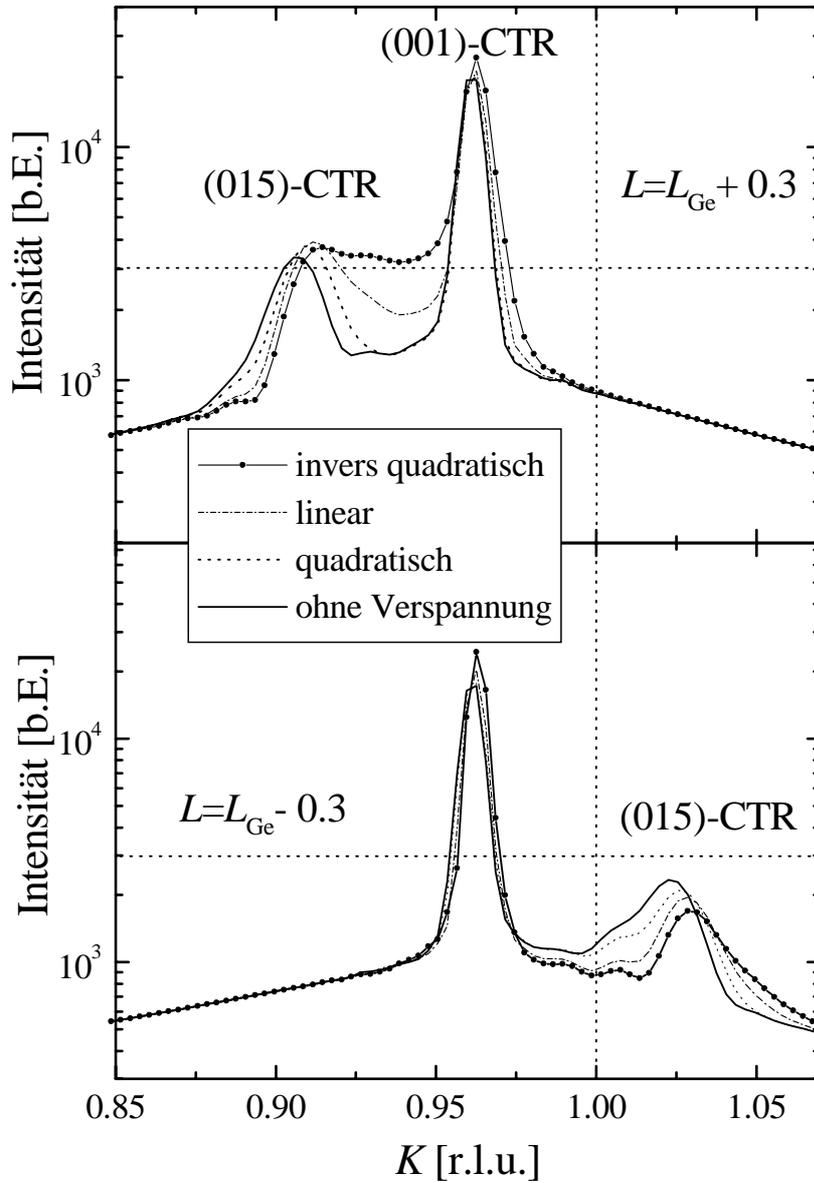


Abb.5.20. Simulation der CTR-Streuung nach Gl.(5.5) am (113)-Reflex entlang der Richtung $(0K0)$ für $L = L_{Ge} \pm 0.3$ und eine Insel mit Basislänge $L_{bot} = 800 \text{ \AA}$. Gezeigt ist jeweils eine Rechnung ohne Verspannung und mit den verschiedenen Gradientenmodellen. Auch die Rechnung ohne Verspannung zeigt eine Asymmetrie der CTR-Intensität aufgrund der Atomformfaktor- und Polarisationskorrektur. Die Asymmetrie wird durch die Verspannung innerhalb der Inseln verstärkt.

gehaltenem lateralen Gitterparameter für eine Insel mit Basislänge $L_{bot} = 800 \text{ \AA}$. Die simulierten Intensitäten wurden auf einen Lorentz-verteilten Untergrund addiert und entsprechend der Polarisation und Atomformfaktorabhängigkeit kor-

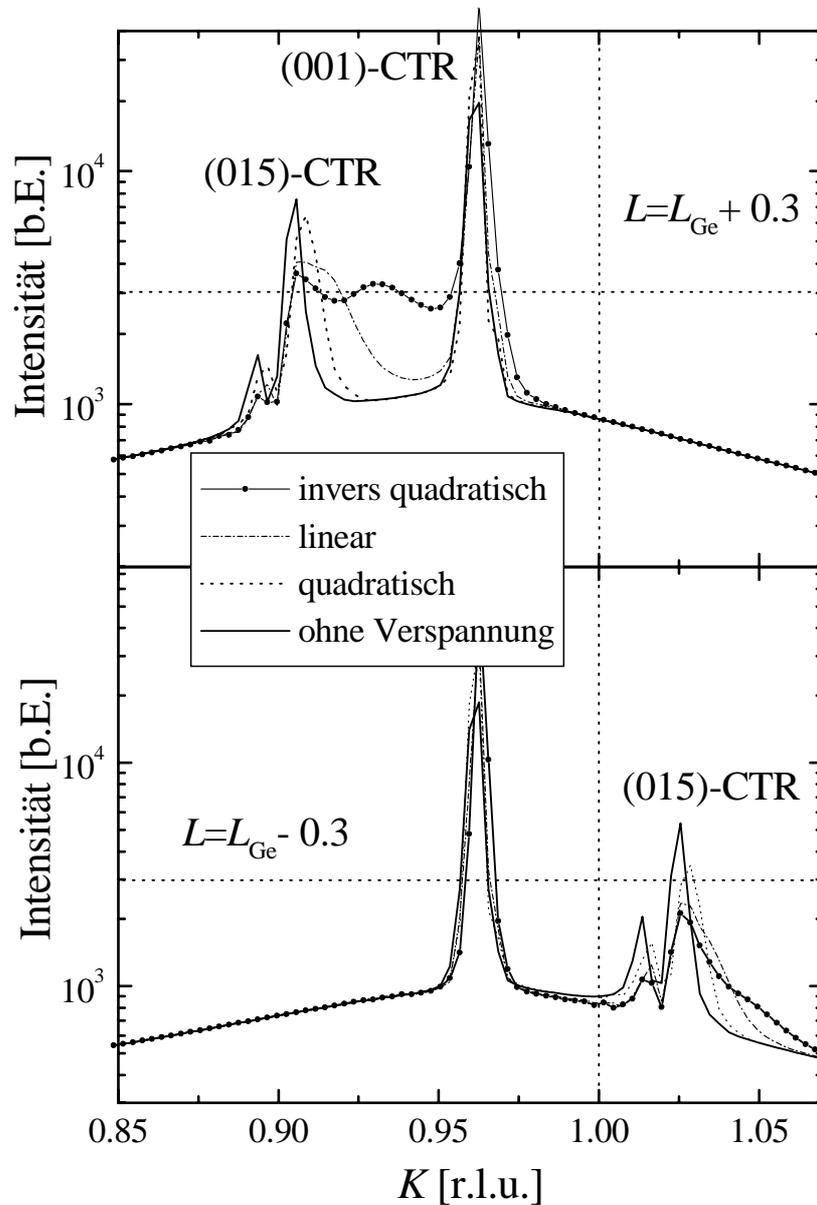


Abb.5.21. Simulation der CTR-Streuung nach Gl.(5.5) am (113)-Reflex entlang der Richtung (0K0) für $L = L_{Ge} \pm 0.3$ und eine Insel mit Basislänge $L_{bot} = 2600 \text{ \AA}$. Gezeigt ist jeweils eine Rechnung ohne Verspannung und mit den verschiedenen Gradientenmodellen. Bei dieser Inselgröße zeigen alle Gradientenmodelle bis auf das invers-quadratische aufgrund der Mehrfachstreuung in DWBA ein deutliches Doppelmaximum am Facetten-CTR.

rigiert. Diese Korrektur ruft bereits bei der Rechnung ohne Verspannung eine unterschiedliche Intensität des (105)-CTR bei $L = L_{Ge} \pm 0.3$ hervor. Durch den Gitterparametergradienten wird diese Asymmetrie verstärkt.

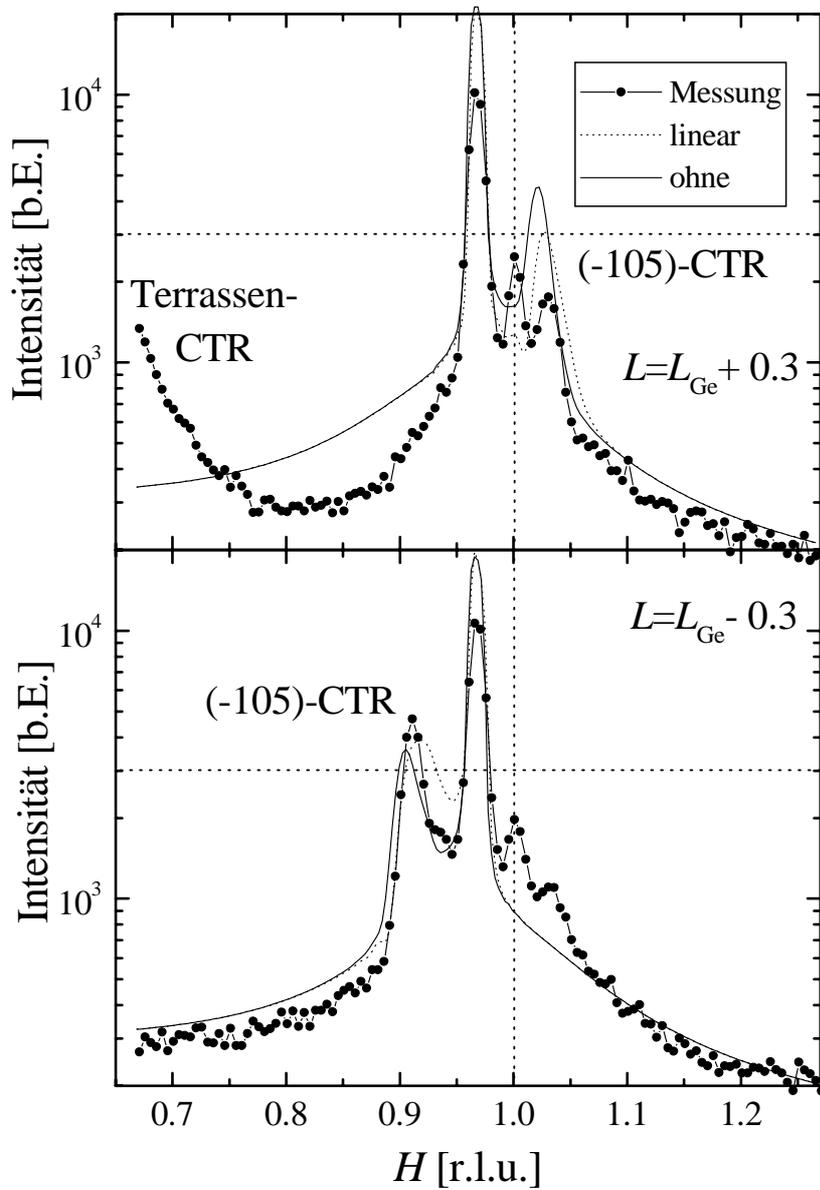


Abb.5.22. Gemessene Daten und Simulation der CTR-Streuung nach Gl.(5.5) am (113)-Reflex entlang der Richtung ($H00$) für $L = L_{Ge} + 0.3$ (**oben**) und $L = L_{Ge} - 0.3$ (**unten**). Gezeigt ist jeweils eine Rechnung mit und ohne Verspannung. Die Simulation mit einem linearen Gradienten reproduziert die Asymmetrie des ($\bar{1}05$)-CTR besser.

Da die gestreute Intensität zum Streuvolumen (und in diesem Fall der Fläche einer Netzebene) zum Quadrat proportional ist, werden Gitterparameter nahe der Grundfläche der Inseln stärker betont. Der quadratische Gradient nach Gl. (5.8) hat daher den kleinsten Effekt auf die CTR-Streuung, insbesondere kann die

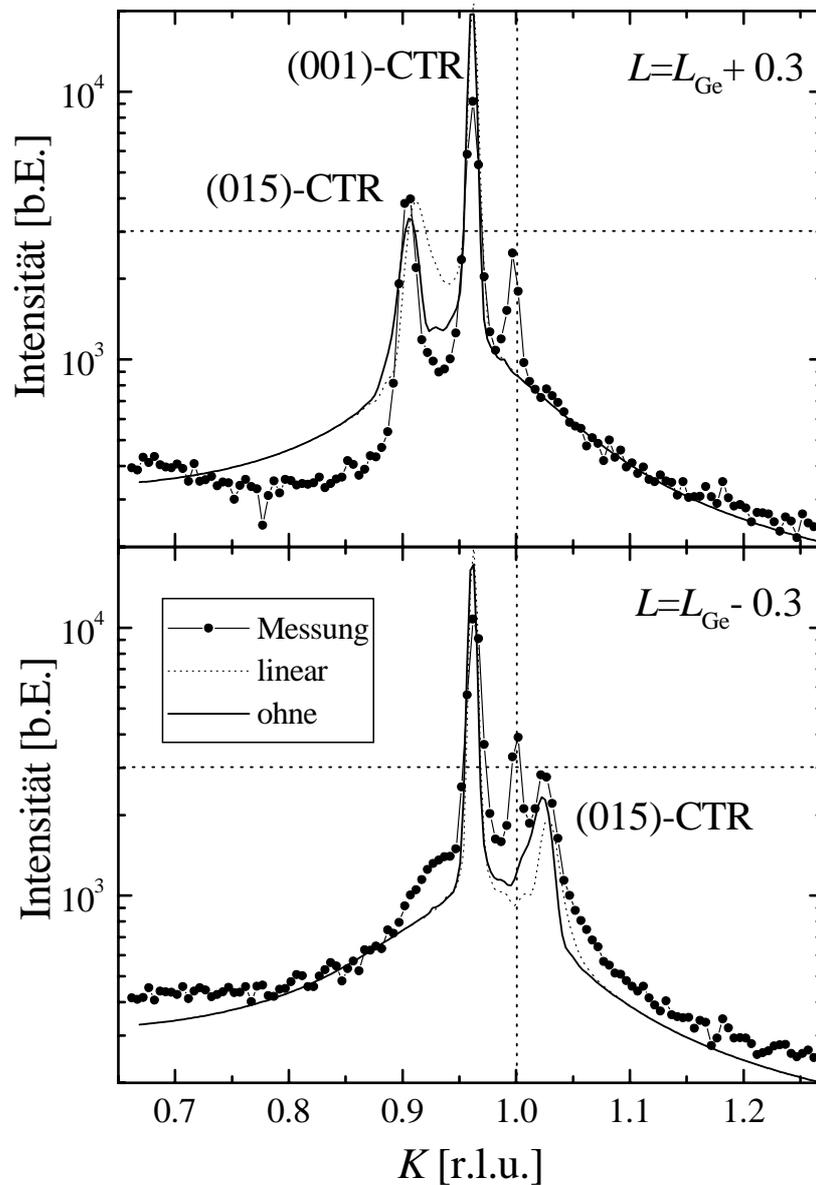


Abb.5.23. Gemessene Daten und Simulation der CTR-Streuung nach Gl.(5.5) am (113)-Reflex entlang der Richtung $(0K0)$ für $L = L_{\text{Ge}} + 0.3$ (**oben**) und $L = L_{\text{Ge}} - 0.3$ (**unten**). Gezeigt ist jeweils eine Rechnung mit und ohne Verspannung. Die Meßdaten werden durch eine Simulation *ohne* Gradienten besser wiedergegeben.

Asymmetrie am wenigsten reproduziert werden. Der lineare Gradient betont die Asymmetrie bereits stärker, es kommt auf der Seite kleiner K -Werte bereits zu einer leichten Verbreiterung des Facetten-CTR. Den stärksten Effekt auf die Asymmetrie hat der invers-quadratische Gradient Gl. (5.9), jedoch bewirkt dieser

auch ein Auseinanderlaufen und eine Verschiebung der CTRs, die im Experiment nicht beobachtet wurden.

Abbildung 5.21 zeigt analoge Simulationsrechnungen für Inseln mit einer Basislänge $L_{\text{bot}} = 2600 \text{ \AA}$. Für diese Inselgröße findet man am Facetten-CTR ein deutliches Doppelmaximum, das durch die Interferenz von erstem und drittem Term in Gl.(2.35) hervorgerufen wird. Die Simulationsrechnungen integrieren über das experimentelle Auflösungselement und sind daher direkt mit den Daten vergleichbar. Wie die folgenden Abbildungen Abb. 5.22 und 5.23 belegen, zeigen die experimentellen Daten jedoch kein Doppelmaximum am CTR der Seitenfacetten.

Ein Vergleich der Meßdaten für $L = L_{Ge} \pm 0.3$ und jeweils einer Simulation ohne und mit linearem Gradienten ($L_{\text{bot}} = 800 \text{ \AA}$) ist in Abb. 5.22 und 5.23 gezeigt. In der H -Richtung ergibt die Annahme eines linearen Gradienten die beste Übereinstimmung mit den Daten, die Asymmetrie im Experiment ist sogar noch stärker, als durch die Simulation wiedergegeben wird (Simulationen mit noch größeren Gitterparametergradienten führten zu einer deutlichen Verbreiterung des CTR und erforderten die Annahme unplausibler Werte für den Gitterparameter). Im Gegensatz dazu wird die Messung in K -Richtung besser durch ein Modell *ohne* Verspannung wiedergegeben, dies ist in guter Übereinstimmung mit der Tatsache, daß die gemessene Position des Ge-Reflexes in dieser Richtung annähernd einem vollständig relaxierten und somit unverspannten Kristall entspricht. Die Abbildungen C.1 bis C.3 im Anhang zeigen einen Überblick der Meßdaten und Simulationsrechnungen entlang der H -, K - und entlang der angularen Richtung, die RSMs mit dem jeweiligen Konturplot der Simulation sind in Abb. 5.26 gezeigt. Im einzelnen ergeben sich folgende Ergebnisse:

- **Gitterparameter:** Die beste Übereinstimmung mit den Meßdaten erhält man in der Richtung ($H00$) mit einem linearen Gradienten nach Gl. (5.7). Der laterale Gitterparameter⁹ variiert dabei von 5.609 \AA am Boden bis zu 5.654 \AA an der Spitze der Inseln, der gewichtete Mittelwert von 5.616 \AA entspricht dabei der experimentellen Position der Ge-Reflexe, die relative Änderung innerhalb der Insel beträgt 0.8% . In der Richtung ($0K0$) wurde eine vollständig relaxierte Insel angenommen.
- **Inselgröße:** Aus den Simulationsrechnungen ergibt sich eine Basislänge $L_{\text{bot}} = 800 \text{ \AA}$. (Hier geht im wesentlichen die Breite der CTR-Streuung ein.) Der Anteil der abgeschnittenen Spitze wurde auf $\beta = 0$ gesetzt. Die Größe ist deutlich kleiner als aus den GISAXS-Messungen und AFM-Untersuchungen erhalten. Die experimentelle Breite der CTRs sowie des Ge-Reflexes selbst kann mit den Parametern aus GISAXS/AFM auch unter Berücksichtigung des experimentellen Auflösungselements nicht repro-

⁹Hier wird der äquivalente kubische Gitterparameter a_{cub} angegeben, den ein kubisches Gitter mit gleichem lateralem Gitterabstand auf der (111)-Oberfläche aufweisen würde.

duziert werden. Die Gitterparametervariation trägt zwar zu einer teilweisen Verbreiterung der CTR-Streuprofile bei, kann aber unter Annahme plausibler Gradienten die Reflexbreite nicht vollständig erklären.

Eine mögliche Erklärung für die geringere Größe ist die Annahme einer oxidierten Oberfläche der Inseln. Der Verringerung von 2600 Å auf 800 Å Basislänge des kristallinen Kerns entspräche bei einem Facettenwinkel von 29.5° eine Oxidschicht von 260 Å Dicke! *Tabet et al.* berichten auf reinen Ge(001)- und Ge(011)-Oberflächen nach thermischer Oxidation von Oxidschichtdicken im Bereich einiger zehn Monolagen [152], in der Regel wird davon ausgegangen, daß Germanium weniger stark oxidiert als Silizium [153]. *Archer* fand für die Oxidation von Germanium an Luft ein logarithmisches Wachstumsgesetz, das nach einem Jahr eine Oxiddicke von etwa 50 Å erwarten läßt [154]. Obwohl nicht ausgeschlossen werden kann, daß die Exposition als freistehende Insel, oder auch Verspannung und Defekte innerhalb der Insel die Oxidation begünstigen, so erscheint eine Oxidschicht von mehr als 200 Å Dicke wenig plausibel.

Eine mögliche weitere Ursache für eine Verbreiterung des Ge-Reflexes ist die Defektstruktur innerhalb der Inseln. Da die Inseln nahezu vollständig plastisch relaxiert sind, muß von einem Versetzungsnetzwerk an der Ge-Si-Grenzfläche ausgegangen werden. Die stochastischen Verzerrungen infolge der Versetzungen führen zu einer zusätzlichen Verbreiterung der Braggreflexe [37, 91, 155].

- **Größenverteilung:** Wegen der vergleichsweise schlechteren Auflösung und der starken Verbreiterung der Reflexe ist das CTR-Experiment im Gegensatz zu den GISAXS-Messungen nicht auf die Größenverteilung der Inseln empfindlich.
- **Facettenrauhigkeit:** Um den Abfall der CTR-Intensität mit dem Abstand vom Reflex wiederzugeben, wurde eine Facettenrauhigkeit von 6 Å für die (111)-Facette und 4 Å für die {113}-Facetten, sowie eine DWF-artige Dämpfung der gestreuten Intensität im CTR angenommen. Die Rauigkeit der kristallinen Facette ist somit deutlich höher als die morphologische Rauigkeit von etwa 1 Å, auf die das GISAXS-Experiment empfindlich ist (vgl. Tab. 5.2).

Durch die Simulationsrechnungen konnten folgende Merkmale der Meßdaten nicht wiedergegeben werden: Zum einen ist der Terrassen-CTR nicht in dem Modell enthalten. Wie auf Abb. 5.22 zu erkennen ist, führen die Terrassen auch zu einem veränderten Verlauf des Untergrundes, der sonst gut durch die angenommene Lorentz-Verteilung wiedergegeben wird.

Zum anderen ist auch das Maximum bei H bzw. $K = 1$ nicht in der Simulation enthalten. Wie bereits auf Seite 113 diskutiert wurde, kann dieses Maximum nicht

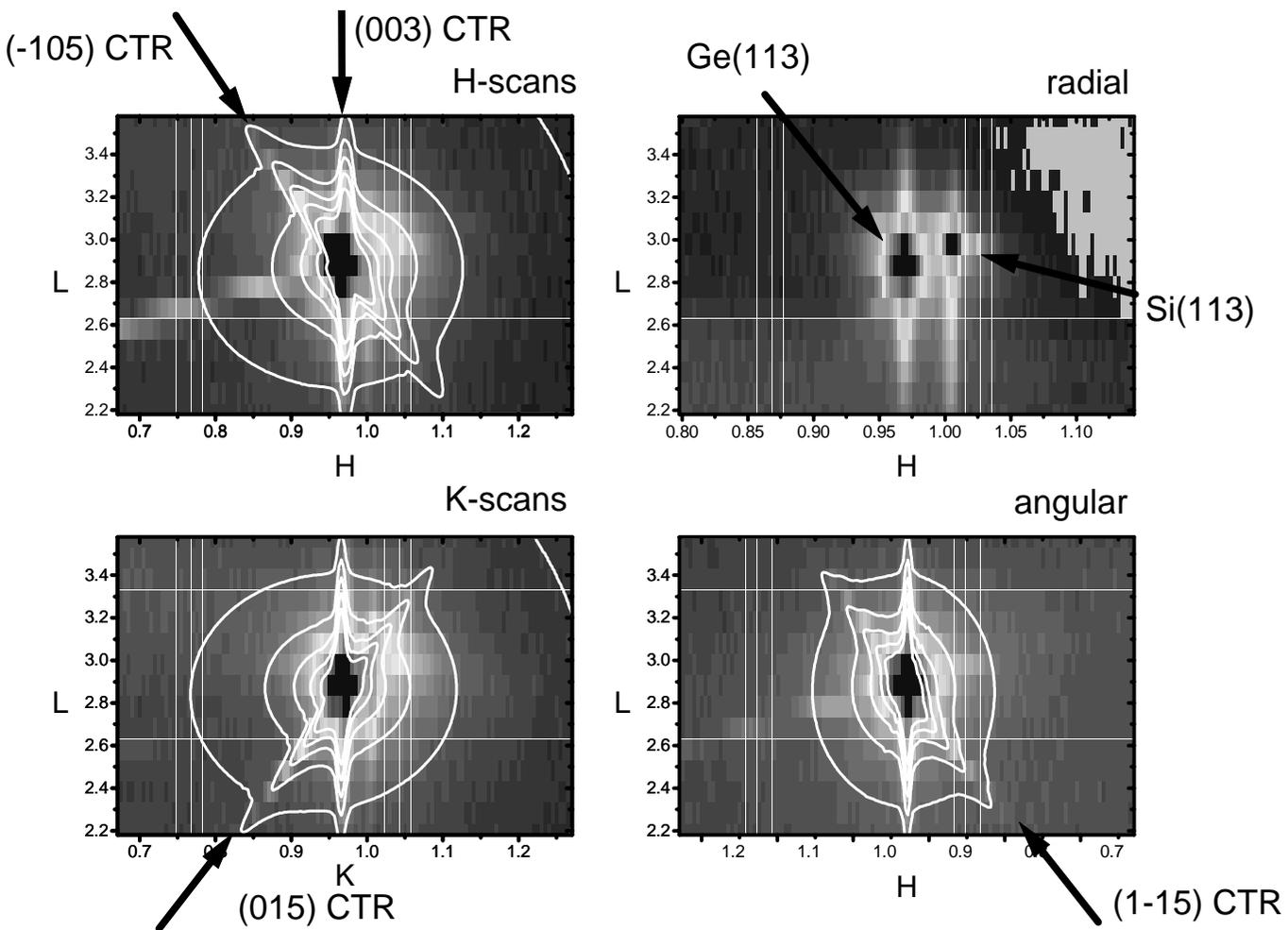


Abb.5.26. Semi-analytische Simulation der CTR-Streuung am (113)-Reflex. Weiße Konturlinien geben die Simulation wieder, die Graustufen die gemessenen Daten.

Versetzungen $\mathbf{b} = \frac{1}{6}(\bar{1}\bar{1}2)$ und $\mathbf{b} = \frac{1}{6}(\bar{2}11)$, zu der die verspannungsabbauende

vollständige Versetzung $\mathbf{b} = \frac{1}{2}(\bar{1}01)$ dissoziiert [130, 156]. Es kann daher ein Zusammenhang zur Versetzungsstruktur innerhalb der Inseln bestehen. Andererseits gibt es auch Hinweise, daß die zusätzlichen Maxima nicht von den Ge-Inseln herrühren, sondern vom Si-Substrat selbst. Abbildung 5.25 zeigt 'L-scans' (senkrecht zur Oberfläche) an den in Abb. 5.24 mit \square , \blacksquare , \triangle und \blacktriangle bezeichneten lateralen Positionen. Diese zeigen an den lateralen Positionen $(HK) = (1.00\ 0.97)$ und $(HK) = (1.00\ 0.94)$ neben einem Maximum bei $L_{\text{Ge}} = 2.88$, das den Ausläufern des Ge-Reflexes zuzuordnen ist, ein weiteres bei $L_{\text{Si}} = 3.00$. Bei $(HK) = (1.10\ 0.97)$ ist nur ein breiter diffuser Untergrund zu erkennen. Daher ist angeregt worden [157], die zusätzlichen Maxima auf sog. 'streaks' thermisch diffuser Streuung (TDS) zurückzuführen, wie sie bei der Beugung von Elektronen an Si-Oberflächen beobachtet wurden [158]. *Wu et al.* fanden in einem Röntgenstreuexperiment an Si(111) ausgehend vom $(11L)$ -Rod schwache TDS-'streaks' mit einer lateralen Komponente in der $\langle\bar{1}0\rangle$ - und $\langle 0\bar{1}\rangle$ -Richtung [159].

Experimentelle Evidenz über den Ursprung der zusätzlichen Maxima könnte eine Messung der Streuung von einem reinem Si-Substrat schaffen. Im Falle thermisch diffuser Streuung sollten dieselben Maxima (temperaturabhängig) zu beobachten sein, bestünde ein Zusammenhang zur Relaxation, würden auf reinem Silizium die Streumaxima nicht auftreten.

5.7 Zusammenfassung und Ausblick

Zusammenfassend kann festgestellt werden, daß das Wachstum von dreiseitigen orientierten Ge-Pyramiden auf verschiedenen stark fehlorientierten Bor-terminierten Si(111)-Substraten reproduziert werden konnte. Die Untersuchungen zeigen, daß die Anwesenheit einer Bor-Oberflächenphase notwendig für die Entstehung dreiseitiger Pyramiden ist. Ohne Bor bildet sich ein ungeordneter Film ohne ausgezeichnete Facettierung. Diese Beobachtung ist in guter Übereinstimmung mit der Modellvorstellung, daß die Boratome auf den T_4 -Plätzen die freien Bindungen der Siliziumatome absättigen und die Oberfläche passivieren. Dadurch wird die Mobilität von Germanium auf der rekonstruierten Oberfläche stark erhöht, wodurch die Adatome auf der Oberfläche wandern können, bis sie an Oberflächendefekten wie z.B. Stufenkanten zu Inseln nukleieren [139]. Ein Überangebot von Bor über $1/3$ ML hinaus, wie es für die Bor- $\sqrt{3} \times \sqrt{3}R30^\circ$ -Oberflächenphase erforderlich ist, führt zu Pyramiden, deren Morphologie weniger perfekt ist. Die laterale Ordnung entlang von Substratstufenkanten zeigt eine starke Abhängigkeit von der Substratfehlorientierung, bei kleinem 'miscut' stellt sich keine Ordnung ein.

Die Untersuchung der Röntgenkleinwinkelstreuung (GISAXS) ergibt eine gute Übereinstimmung mit der Morphologie, die aus AFM-Messungen gewonnen wurde. GISAXS ermöglicht darüber hinaus eine sehr genaue Bestimmung des Facettenwinkels und der Orientierung der Inseln mit Bezug auf das Substratgitter. Die intrinsisch mittelnde Streumethode erlaubt zudem eine Quantifizierung

der Größendispersion und der Orientierungsunordnung. Wie sich zeigte, ist für die Beschreibung der Kleinwinkelstreuung von freistehenden Objekten auf einem Substrat bei Winkeln nahe am kritischen Winkel α_c für externe Totalreflexion eine Streutheorie im Rahmen der DWBA notwendig, die Mehrfachreflexionen an der Substratoberfläche berücksichtigt.

Die Auswertung der CTR-Streuung ergibt eine anisotrope partielle Relaxation des Gitters der Inseln, wobei der Gitterparameter in einer Richtung senkrecht zur Orientierung des Substrat-*'miscut'* nahezu vollständig zum Volumenwert von Germanium relaxiert. Der kristalline Formfaktor wird durch die Defekt- und Versetzungsstruktur innerhalb der Inseln stark verbreitert und erlaubt daher keinen direkten Vergleich mit dem Formfaktor in der Kleinwinkelstreuung. Die Restverspannung innerhalb der Inseln zeigt sich in der Asymmetrie der CTR-Streuung mit Bezug auf den lateralen Impulsübertrag. Diese wurde durch die Annahme eines linearen Gradienten des lateralen Gitterparameters modelliert.

Um den nachgewiesenen Zusammenhang zwischen Substratfehlorientierung und der lateralen Ordnung der Inseln tiefer zu ergründen, sind Untersuchungen an Proben mit systematisch variierte Größe und Richtung des *'miscut'* notwendig. Da in der industriellen Wafer-Fertigung in der Regel nicht auf den Azimut der Substratfehlorientierung geachtet wird, sondern nur deren Größe innerhalb garantierter Toleranzen angegeben wird, müßten geeignete Substrate zunächst beschafft werden.

Eine weitere Richtung für zukünftige Studien an dem System Ge/Si(111) ist das Wachstum von $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$ -Inseln auf Bor-terminierten Si(111)-Substraten. Dieses System ist bislang noch nicht untersucht worden. Interessante Fragestellungen sind dabei, ob dabei auch kohärente Inseln entstehen, sowie ob mit $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$ die gleiche Morphologie $\{113\}$ -facettierter Inseln vorhanden ist. Zudem können verspannte kohärente $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$ -Inseln eine andere Größenverteilung und laterale Ordnung zeigen.

Anhang A

Röntgenoptische Daten für Si und Ge

Tabelle A.1. Röntgenoptische Daten für Si (2.33 g cm^{-3}) nach [160].

Strahlung	Cu $_{K\alpha 1}$	Mo $_{K\alpha 1}$	BW2	D4	ID3	ID10/B
λ [Å]	1.54056	0.7093	1.331	1.603	1.218	1.560
E [eV]	8047.78	17479.3	9135	7735	10180	7948
f'	0.253	0.081	0.210	0.265	0.185	0.257
f''	0.325	0.071	0.245	0.351	0.208	0.333
δ [$\times 10^{-6}$]	7.58	1.59	5.64	8.21	4.71	7.77
β [$\times 10^{-7}$]	1.73	0.0801	0.973	2.02	0.691	1.81
δ/β	43.8	199	55.5	40.6	68.2	42.9
μ^{-1} [μm]	70.9	705	101	63.2	140	68.4
α_c	0.223°	0.102°	0.193°	0.232°	0.176°	0.228°

Tabelle A.2. Röntgenoptische Daten für Ge (5.32 g cm^{-3}) nach [160].

Strahlung	Cu $_{K\alpha 1}$	Mo $_{K\alpha 1}$	BW2	D4	ID3	ID10/B
λ [Å]	1.54056	0.7093	1.331	1.603	1.218	1.560
E [eV]	8047.78	17479.3	9135	7735	10180	7948
f'	-1.017	0.176	-1.471	-0.924	-2.023	-0.985
f''	0.919	1.819	0.707	0.987	0.591	0.940
δ [$\times 10^{-6}$]	14.6	3.20	10.7	15.8	8.80	14.9
β [$\times 10^{-7}$]	4.32	1.81	2.48	5.02	1.74	4.53
δ/β	33.8	17.7	43.1	31.5	50.6	32.9
μ^{-1} [μm]	28.4	31.2	42.7	25.4	55.8	27.4
α_c	0.309°	0.145°	0.265°	0.322°	0.241°	0.313°

Anhang B

AFM-Aufnahmen der Ge/Si(111)-Schichten

Im folgenden ist eine Auswahl der AFM-Aufnahmen von Ge-Schichten auf Si(111) gezeigt. Die Messungen wurden von J. Domke (Lehrstuhl Prof. H. Gaub, LMU München) durchgeführt. Es wurde ein kommerzielles *BioScope*TM-AFM der Firma *Digital Instruments* im 'contact-mode' verwendet. Die Abbildungen zeigen jeweils eine Graustufendarstellung der Höhendaten des *z*-Piezo (links) und die vertikale Ablenkung des 'Cantilevers' (rechts).

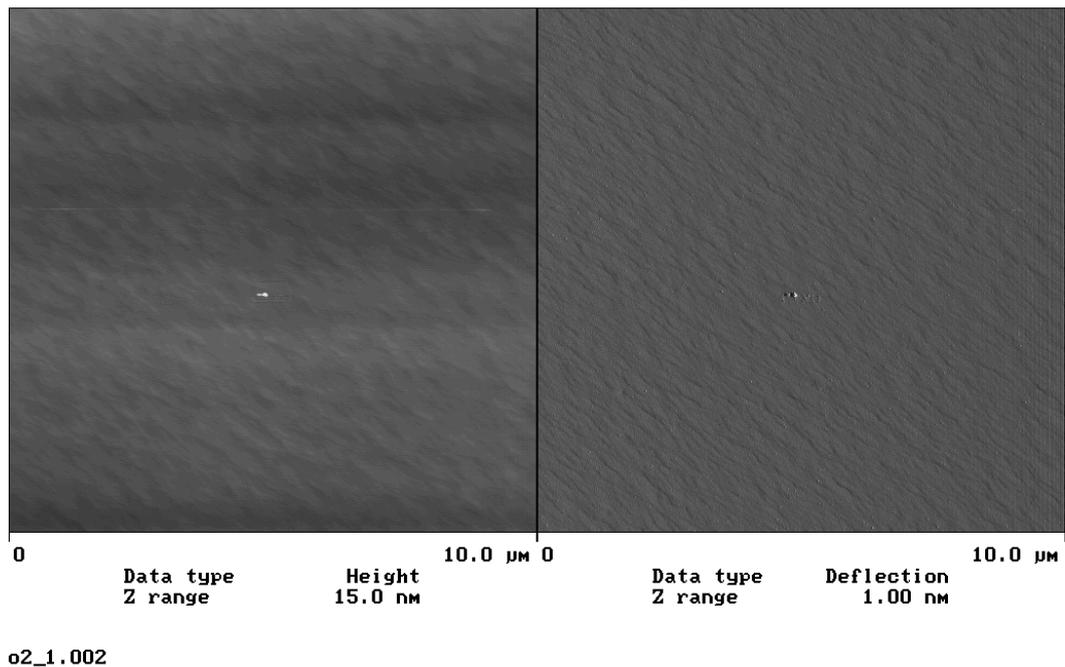


Abb.B.1. 15 nm Si / Si(111) (Probe #3/472/1). Die Oberfläche ist relativ glatt und zeigt eine schwache Welligkeit infolge von fehlorientierungsinduzierten Stufen. $\sigma=1.0$ nm.

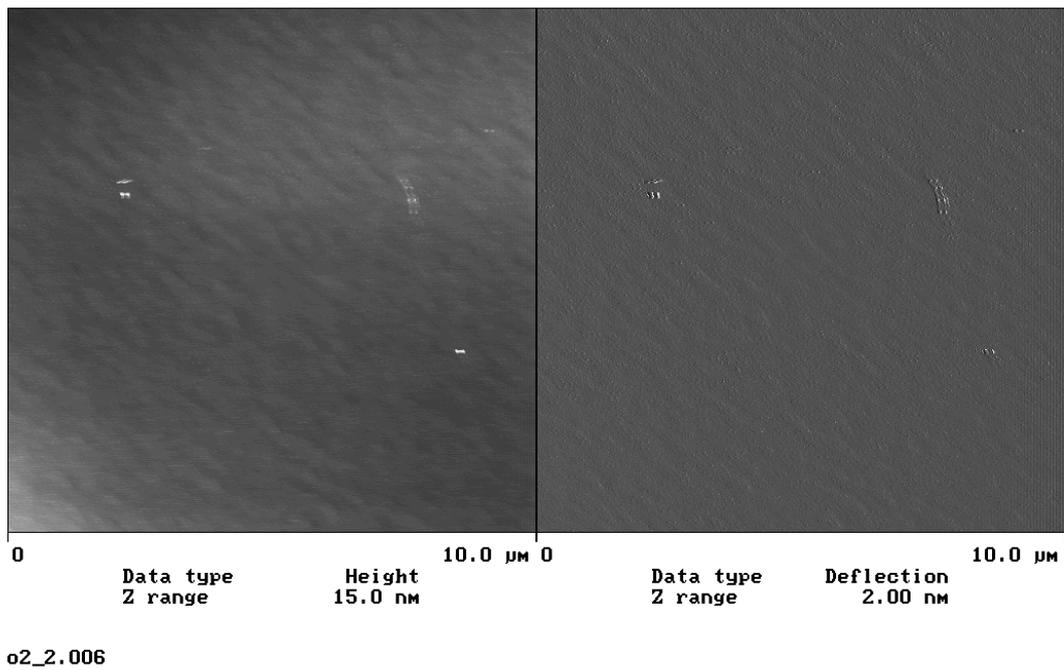


Abb.B.2. 15 nm Si / 0.33 ML B / Si(111) (Probe #3/472/2). $\sigma=1.1$ nm.

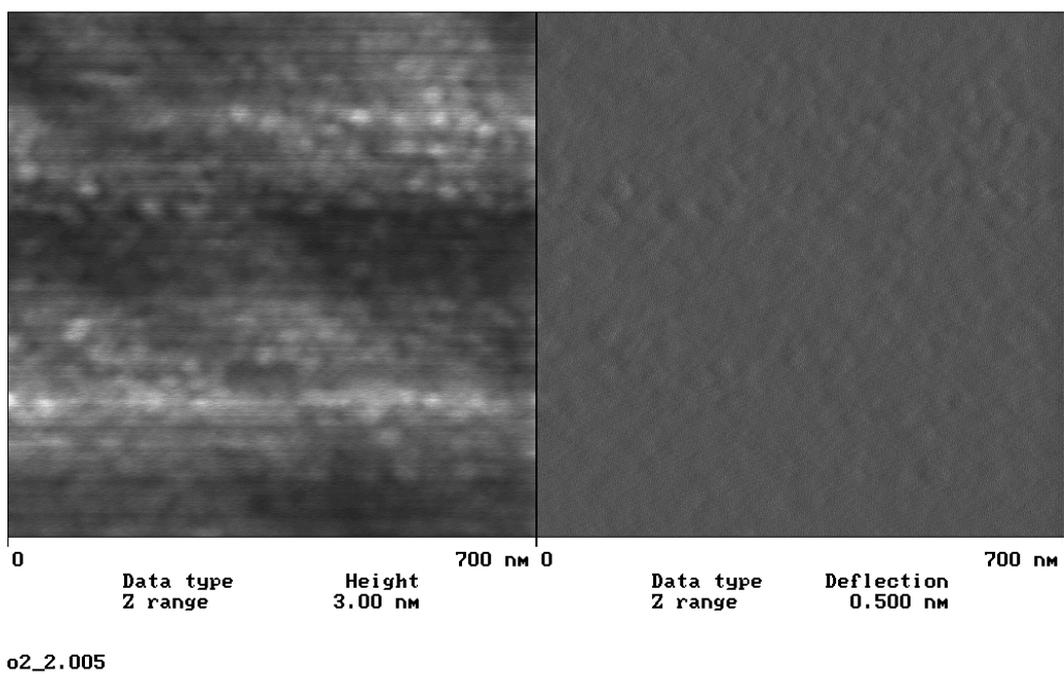


Abb.B.3. 15 nm Si / 0.33 ML B / Si(111) (Probe #3/472/2). Die Detailaufnahme zeigt auf der Welligkeit kleine Inseln.

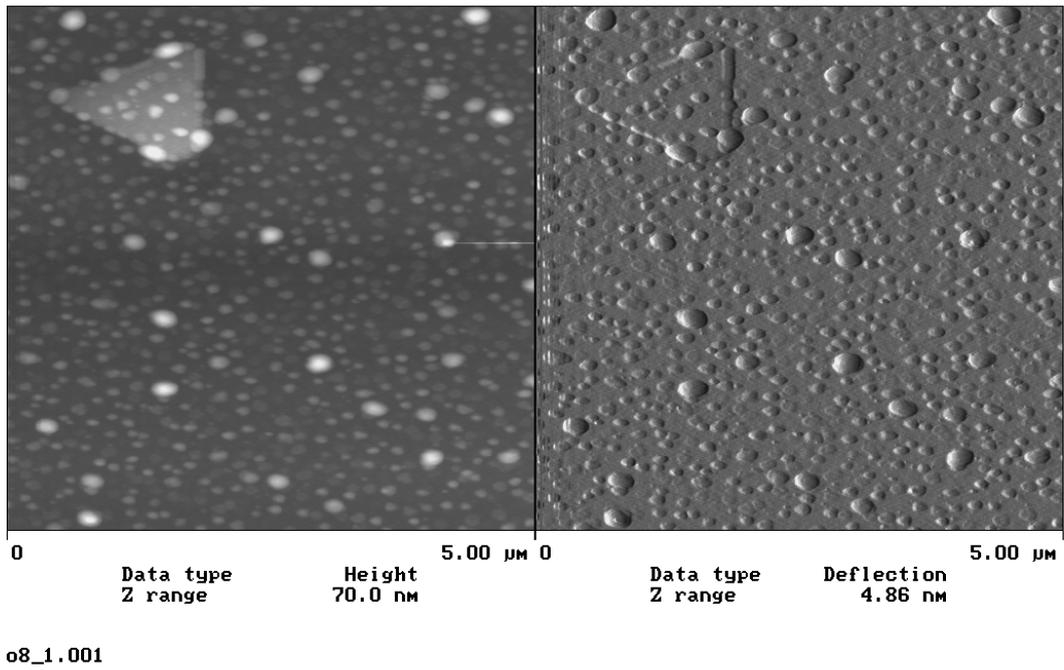


Abb.B.4. 2 nm Ge / 0.33 ML B / Si(111) (Probe #3/478/1). Auf der Oberfläche finden sich Inseln auf drei Größenskalen. $\sigma=6.1$ nm.

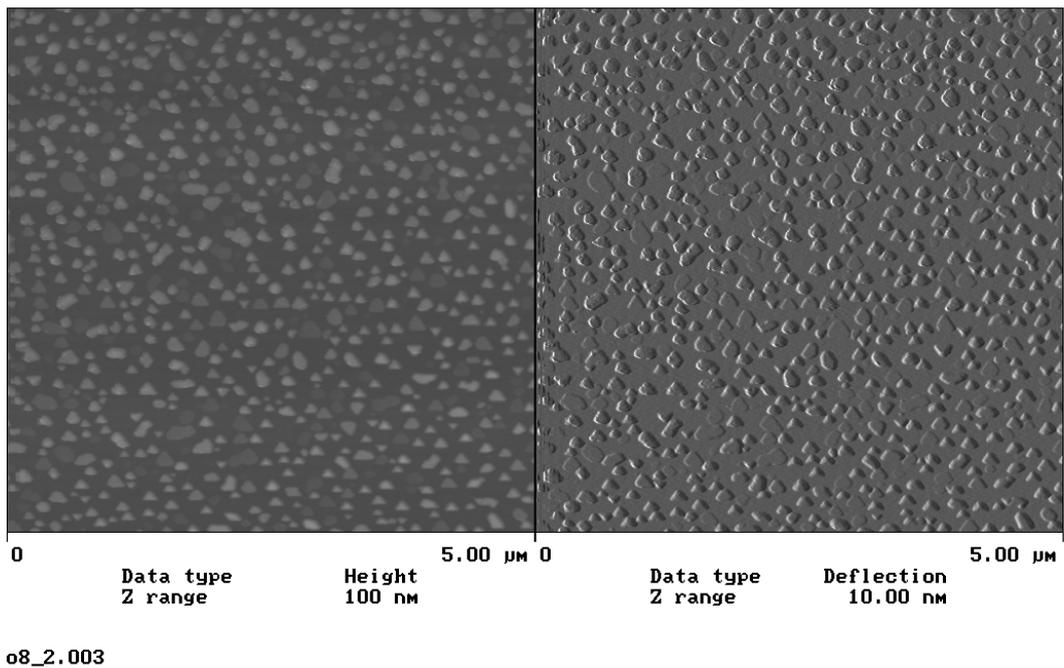
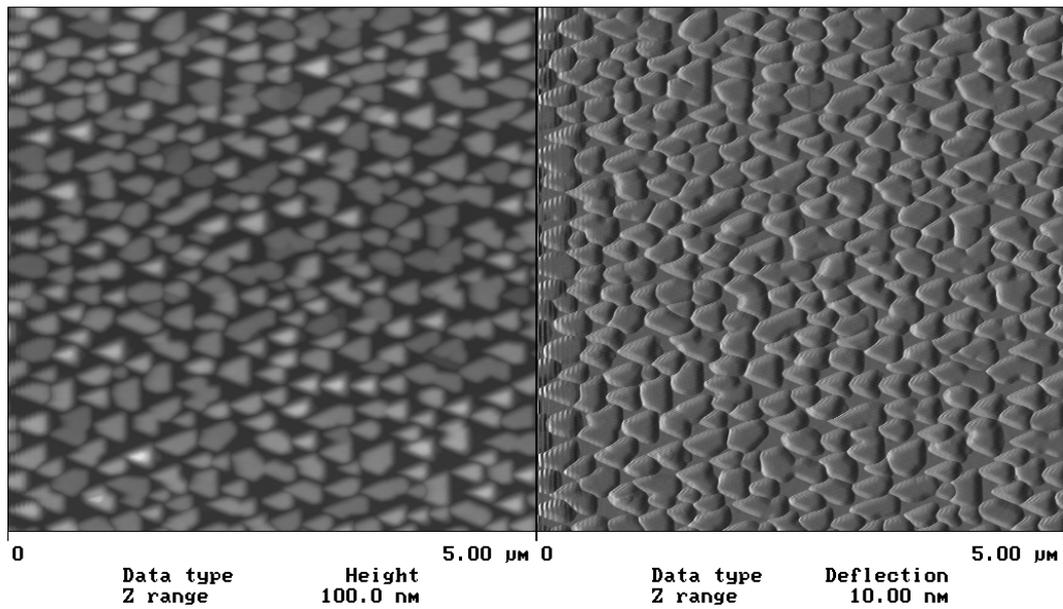
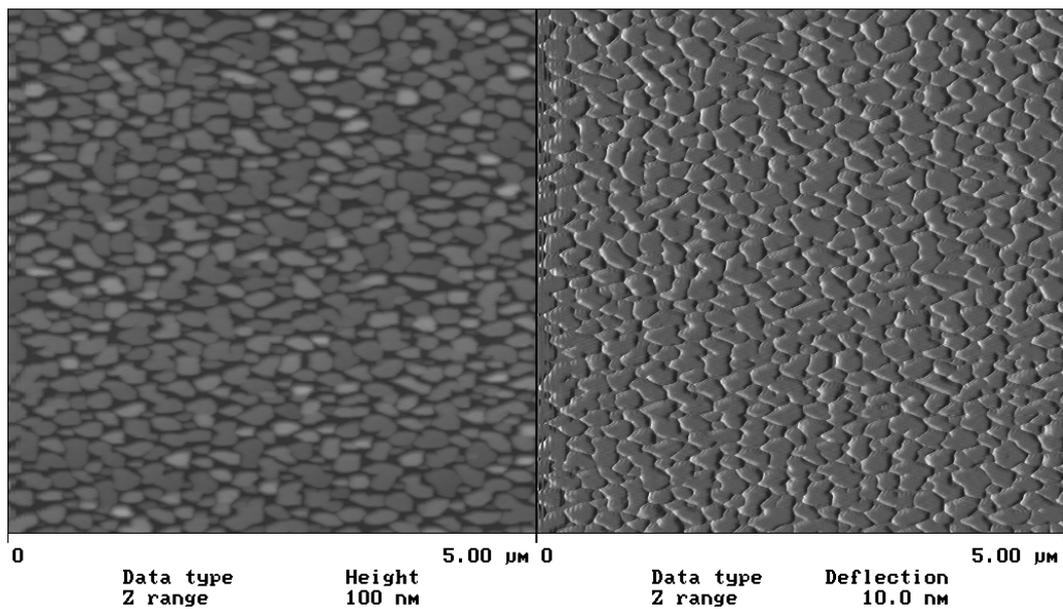


Abb.B.5. 4 nm Ge / 0.33 ML B / Si(111) (Probe #3/478/2). Es bleiben nur noch Inseln einer typischen Größenskala bestehen. $\sigma=6.5$ nm.



o3_2.009

Abb.B.6. 15 nm Ge / 0.33 ML B / Si(111) (Probe #3/473/2). Die Oberfläche ist von dreiseitigen orientierten Pyramiden ohne laterale Ordnung bedeckt. $\sigma=15.0$ nm.



o6_2.001

Abb.B.7. 15 nm Ge / 0.66 ML B / Si(111) (Probe #3/476/2). Die Orientierung und morphologische Perfektion der Inseln ist schlechter als in Abb. B.6. $\sigma=10.7$ nm.

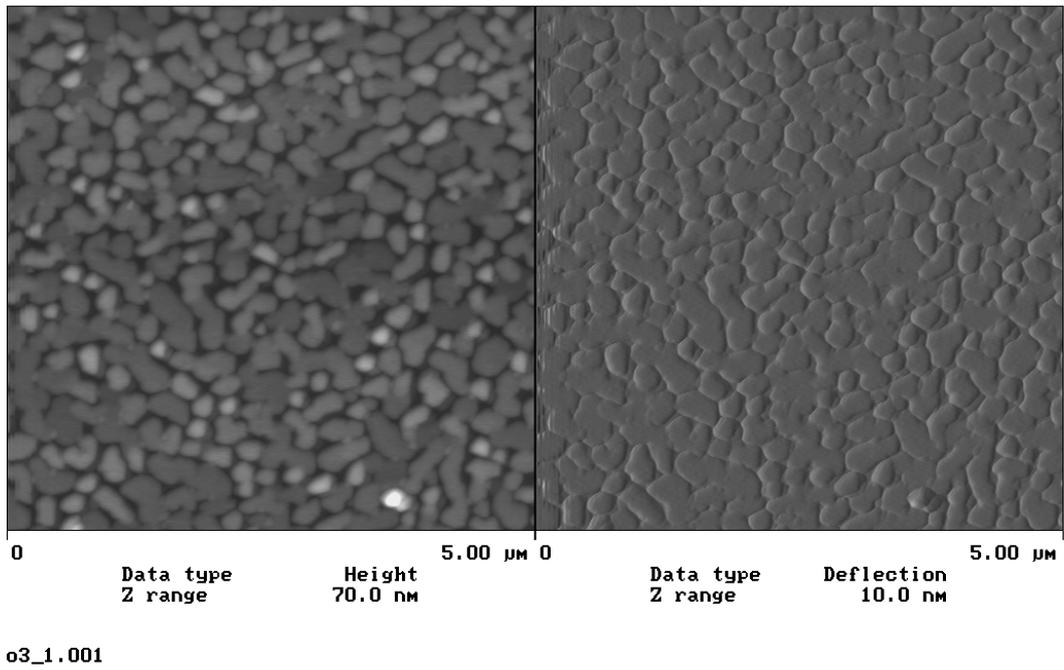


Abb.B.8. 15 nm Ge / Si(111) (Probe #3/473/1). Die Oberfläche zeigt eine ungeordnete Struktur. $\sigma=7.0$ nm.

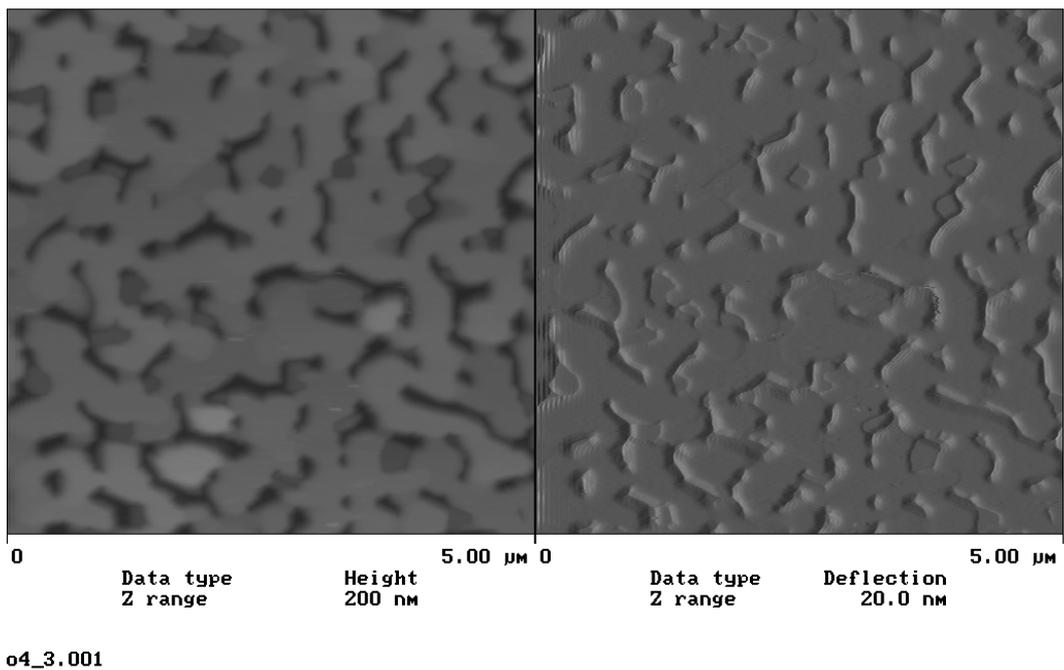


Abb.B.9. 60 nm Ge / 0.33 ML B / Si(111) (Probe #3/474/3). Die Inseln sind zusammengewachsen, die dreizählige Symmetrie ist jedoch noch erkennbar. $\sigma=18.4$ nm.

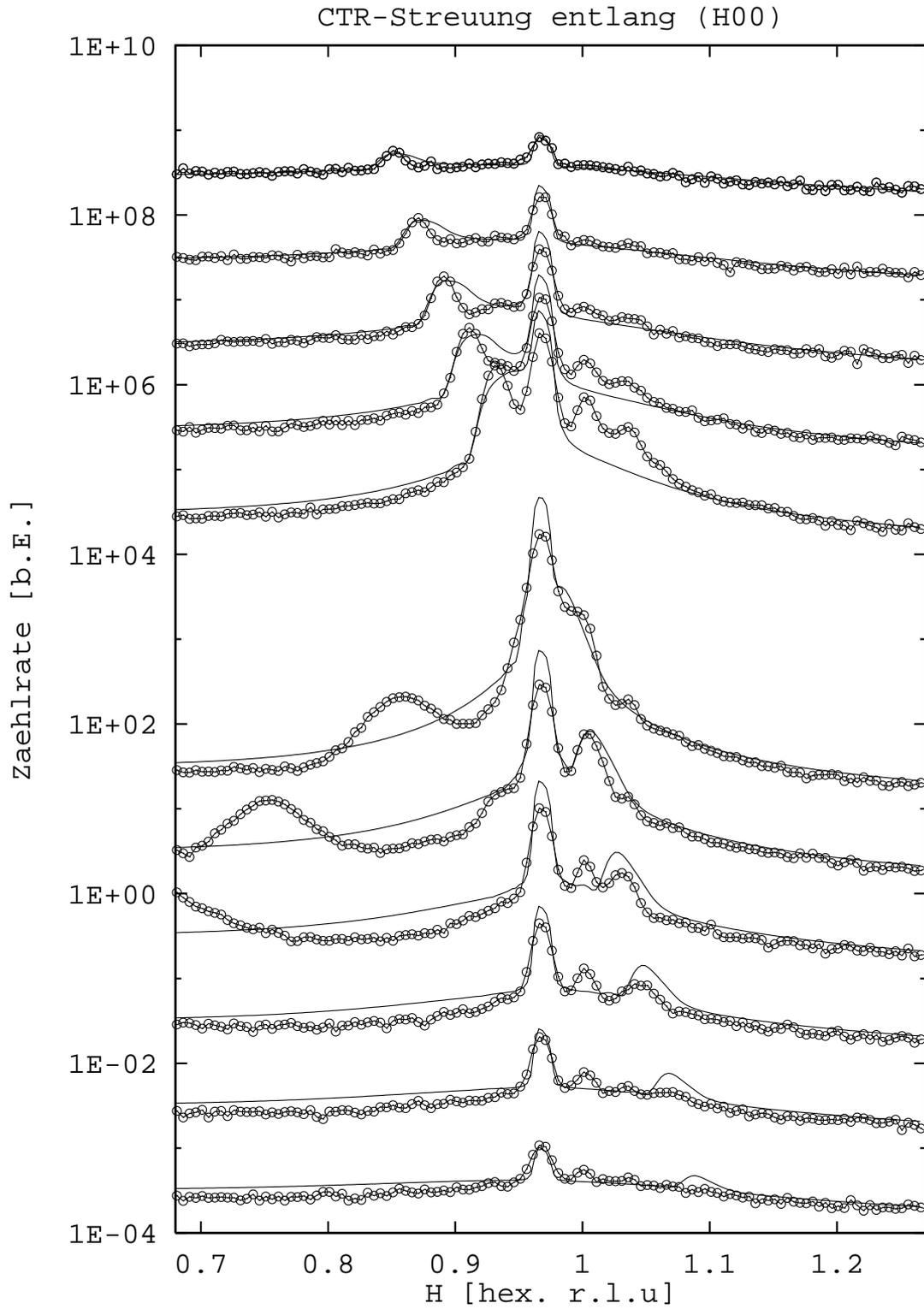
Anhang C

Simulationen der CTR-Streuung

Die folgenden Abbildungen zeigen die Simulationen der CTR-Streuung nach dem Modell in Gl. (5.5) auf S. 115. Die gezeigten Rechnungen wurden mit den unten aufgeführten Parametern durchgeführt. Für die ($H00$)-Richtung wurde ein Gitterparametergradient angenommen, in ($0K0$)- und transversaler Richtung wurde mit einem konstante lateralen Gitterparameter gerechnet.

Tabelle C.1. Parameter der CTR-Simulation

Parameter		Wert
<i>Größe:</i>		
Basislänge	L_{bot}	800 Å
Spitze	β	0.00
Höhe	H	131 Å
<i>Facette:</i>		
Winkel		29.5°
Rauhigkeit {113}		4 Å
Rauhigkeit (111)		6 Å
<i>Gitter:</i>		
Modell		linear
Mittelwert	$a_{\parallel \text{av}}$	5.616 Å
unten	$a_{\parallel \text{bot}}$	5.609 Å
oben	$a_{\parallel \text{top}}$	5.654 Å
Gradient	$\Delta a_{\parallel} / a_{\parallel}$	0.008
vertikal	$a_{\perp \text{av}}$	5.650 Å

Abb.C.1. CTR-Streuung in der Richtung ($H00$).

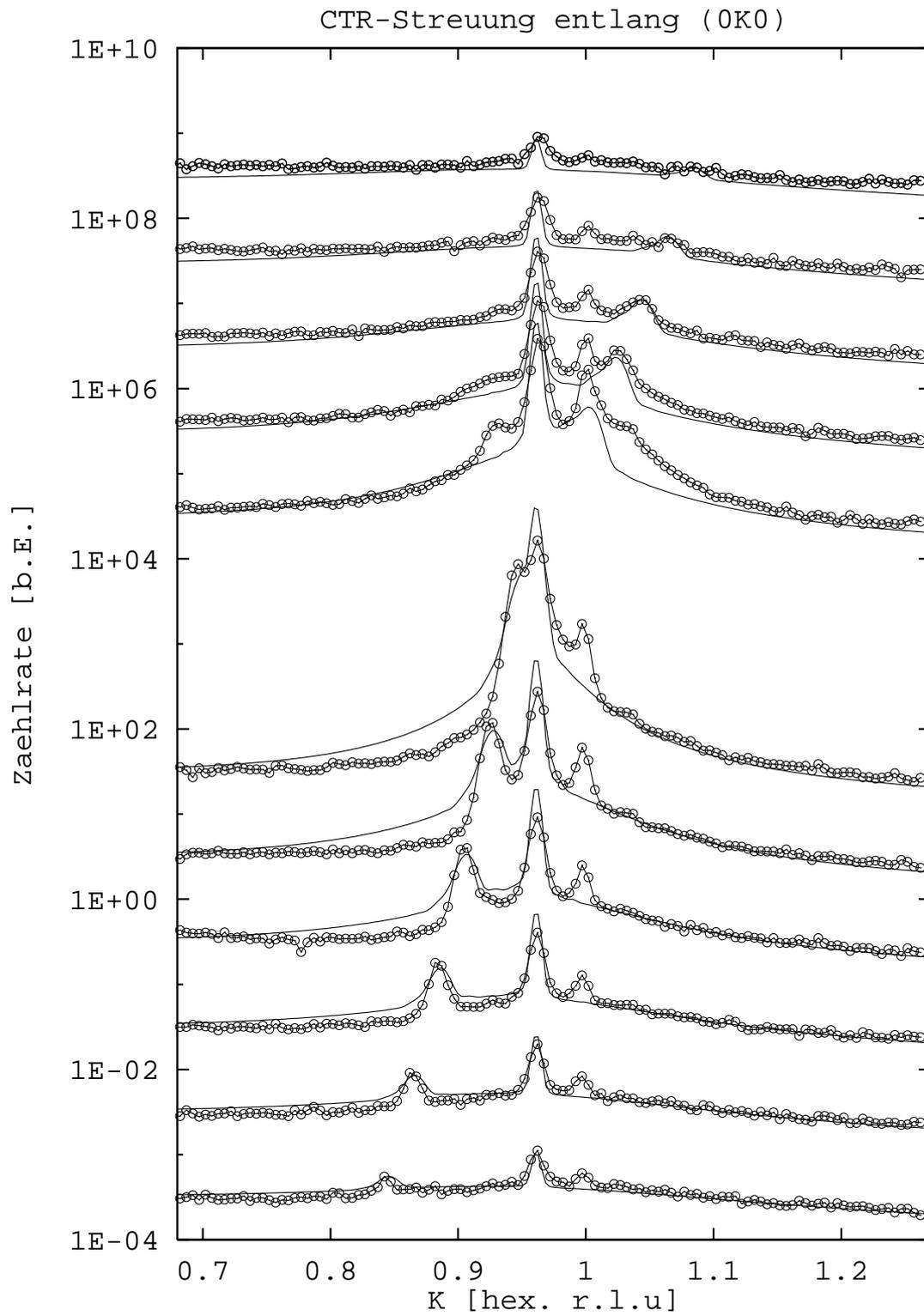


Abb.C.2. CTR-Streuung in der Richtung (0K0).

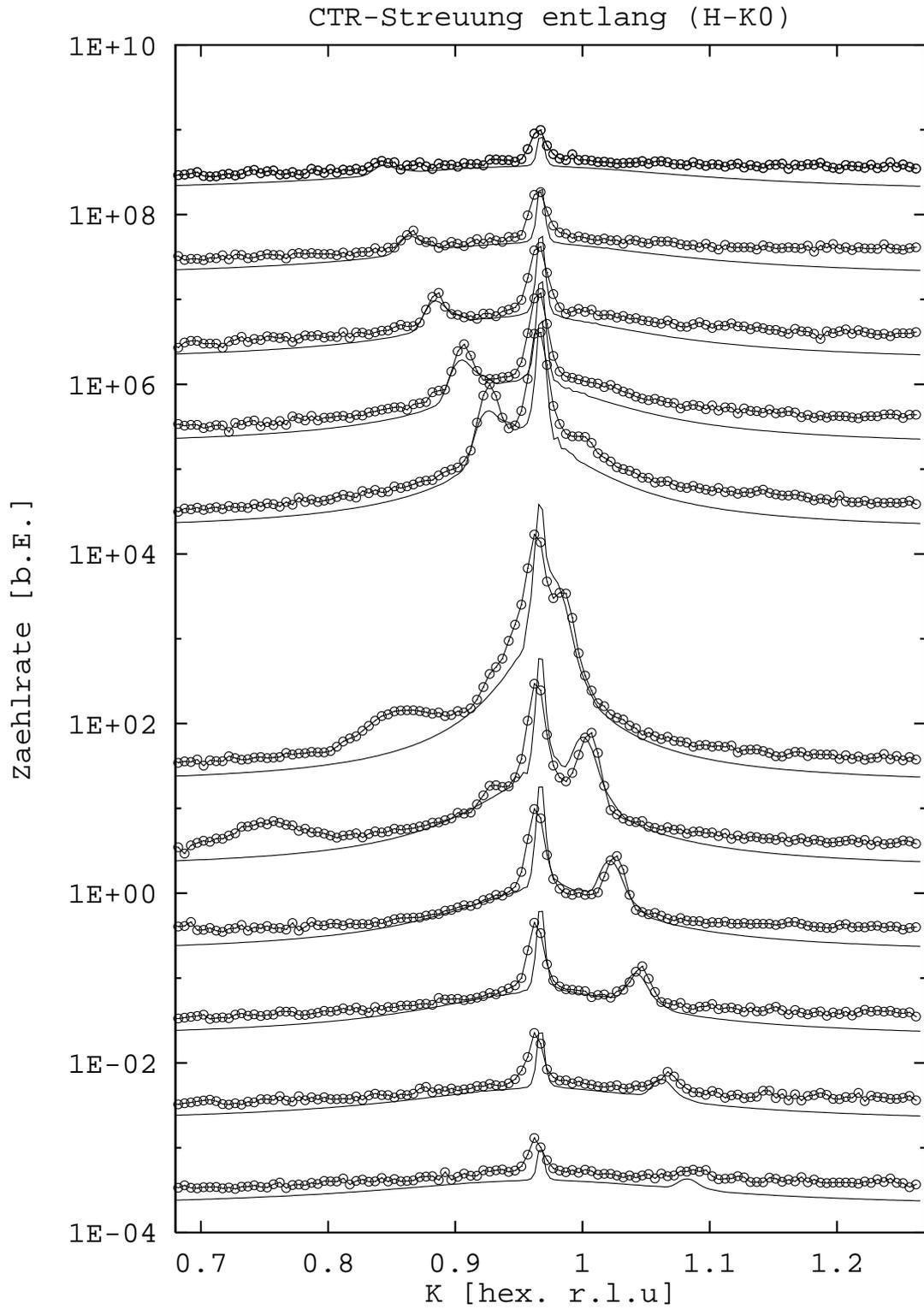


Abb.C.3. CTR-Streuung in der Richtung $(H\bar{K}0)$ (angulare Richtung).

Literaturverzeichnis

- [1] U. König. Silizium/Germanium-Heterostrukturen. In *21. IFF-Ferienkurs im Forschungszentrum Jülich*, Seiten 29.1–38. 1990.
- [2] K. Ismail. *J. Vac. Sci. Technol. B*, **14**, 2776, 1996.
- [3] S. C. Jain, H. J. Osten, B. Dietrich, und H. Rücker. *Semicond. Sci. Technol.*, **10**, 1289, 1995.
- [4] D. Bimberg, M. Grundmann, und N. N. Ledentsov. *Quantum Dot Heterostructures*. Wiley, Chichester, 1999.
- [5] G. Binnig, H. Rohrer, Ch. Gerber, und E. Weibel. *Phys. Rev. Lett.*, **49**, 57, 1982.
- [6] G. Binnig, C.F. Quate, und Ch. Gerber. *Phys. Rev. Lett.*, **56**, 930, 1986.
- [7] H. Dosch. *Critical Phenomena at Surfaces and Interfaces*. Springer, Berlin, 1992.
- [8] T.P. Russel. *Materials Science Reports*, **5**, 171–271, 1990.
- [9] T. Salditt, T.H. Metzger, Ch. Brandt, U. Klemradt, und J. Peisl. *Phys. Rev. B*, **51**, 5617, 1995.
- [10] L. Nevot und P. Croce. *Revue Phys. Appl.*, **15**, 761, 1980.
- [11] J. Krim und J.O. Indeku. *Phys. Rev. E*, **48**, 1576, 1993.
- [12] S.K. Sinha, E.B. Sirota, S. Garoff, und H.B. Stanley. *Phys. Rev. B*, **38**, 2297, 1988.
- [13] G. Palasantzas und J. Krim. *Phys. Rev. B*, **48**, 2873, 1993.
- [14] T. Salditt. *Diffuse Röntgenstreuung an rauhen Grenzflächen*. Dissertation, LMU München, 1995.
- [15] V. Holý, J. Kuběna, I. Ohlídal, K. Liscka, und W. Plotz. *Phys. Rev. B*, **47**, 15896, 1993.

- [16] V. Holý und T. Baumbach. *Phys. Rev. B*, **49**, 10668, 1994.
- [17] W. Weber und B. Lengeler. *Phys. Rev. B*, **46**, 7953, 1992.
- [18] R. Pynn. *Phys. Rev. B*, **45**, 602, 1992.
- [19] D.K. deBoer. *Phys. Rev. B*, **49**, 5817, 1994.
- [20] D.K. deBoer. *Phys. Rev. B*, **51**, 5297, 1994.
- [21] D.K. deBoer. *Phys. Rev. B*, **53**, 6048, 1996.
- [22] A. Gibaud, N. Cowlam, G Vignaud, und T. Richardson. *Phys. Rev. Lett.*, **74**, 3205, 1995.
- [23] S. Vitta, T.H. Metzger, A. Dhanabalan, und S.S. Major. *Langmuir*, **14**, 1799, 1998.
- [24] In O. Glatter und O. Kratky, Hrsg., *Small Angle X-ray Scattering*. Academic Press, London, 1982.
- [25] M. Rauscher, T. Salditt, und H. Spohn. *Phys. Rev. B*, **52**, 16855, 1995.
- [26] J.R. Levine, J.B. Cohen, und Y.W. Chung. *Surf. Sci.*, **248**, 215, 1991.
- [27] J. R. Levine, J. B. Cohen, Y. W. Chung, und P. Georgopoulos. *J. Appl. Cryst.*, **22**, 528, 1989.
- [28] M. Rauscher, R. Paniago, H. Metzger, Z. Kovats, J. Domke, J Peisl, H.-D. Pfannes, J. Schulze, und I. Eisele. *J. Appl. Phys.*, **86**, 6763, 1999.
- [29] M. Rauscher. Persönliche Mitteilung.
- [30] J.M. Cowley. *Diffraction Physics*. North Holland, Amsterdam, 1975.
- [31] C.G. Darwin. *Phil. Mag.*, **27**, 315, 1914.
- [32] C.G. Darwin. *Phil. Mag.*, **27**, 675, 1914.
- [33] P.P. Ewald. *Ann. Physik*, **49**, 1, 117, 1916.
- [34] M. von Laue. *Ergeb. Exakt. Naturw.*, **10**, 133, 1933.
- [35] D. Richter. Dynamische Theorie der Beugung. In *23. IFF-Ferienkurs im Forschungszentrum Jülich*, Seiten 33.1–20. 1992.
- [36] A. Authier, S. Lagomarsino, und B.K. Tanner, Hrsg. *X-ray and Neutron Dynamical Diffraction: Theory and Applications*. Plenum Press, 1996.

- [37] M. A. Krivoglaz. *X-ray and Neutron Diffraction in Imperfect Crystals*. Springer, New York, 1996.
- [38] C.H. Macgillavry und G.D. Rieck, Hrsg. *International Tables for X-ray Crystallography*, Bd. III. Kynoch-Press, 1968.
- [39] Lord Rayleigh. *Proc. Roy. Soc. (London)*, **A84**, 25, 1911.
- [40] G. Porod. General Theory. In O. Glatter und O. Kratky, Hrsg., *Small Angle X-ray Scattering*. Academic Press, London, 1982.
- [41] M. von Laue. *Ann. Physik*, **26**, 62, 1936.
- [42] I. K. Robinson. *Phys. Rev. B*, **33**, 3830, 1986.
- [43] I. K. Robinson und D. J. Tweet. *Rep. Prog. Phys.*, **55**, 599, 1992.
- [44] W.C. Marra, P. Eisenberger, und A.Y. Cho. *J. Appl. Phys.*, **50**, 6927, 1979.
- [45] P. Eisenberger und W. C. Marra. *Phys. Rev. Lett.*, **46**, 1081, 1981.
- [46] G.H. Vineyard. *Phys. Rev. B*, **26**, 4146, 1982.
- [47] S. Dietrich und H. Wagner. *Z. Phys. B*, **56**, 207, 1984.
- [48] H. Dosch. *Phys. Rev. B*, **35**, 2137, 1987.
- [49] G. Wallner et al. *phys. stat. sol. (a)*, **135**, 73, 1993.
- [50] H. Kanzaki. *J. Phys. Chem. Sol.*, **2**, 107, 1957.
- [51] A. Schmalzbauer. *Einzeldefekte und Defektkorrelationen in Fe und FeSi nach Tieftemperatur-Bestrahlung mit Elektronen und Neutronen*. Dissertation, LMU München, 1991.
- [52] P.H. Dederichs. *J. Phys. F: Metal Phys.*, **3**, 471, 1973.
- [53] T.H. Metzger, H. Behr, G. Steyrer, und J. Peisl. *Phys. Rev. Lett.*, **50**, 843, 1983.
- [54] R. I. Barabash und M. A. Krivoglaz. *Sov. Phys. Solid State*, **29**, 1768, 1987.
- [55] D. Bahr, W. Press, R. Jebasinski, und S. Mantl. *Phys. Rev. B*, **51**, 12223, 1995.
- [56] S. Grotehans, G. Wallner, E. Burkel, H. Metzger, J. Peisl, und H. Wagner. *Phys. Rev. B*, **39**, 8450, 1989.
- [57] A.R. Stokes und A.J.C. Wilson. *Proc. Phys. Soc.*, **56**, 174, 1944.

- [58] H. Trinkaus. *phys. stat. sol. (b)*, **54**, 209, 1972.
- [59] B.C. Larson und W. Schmatz. *Phys. Rev. B*, **10**, 2307, 1974.
- [60] F. Schäffler. Electron and hole mobilities in the SiGe/Si system. In E. Kasper, Hrsg., *Properties of Strained and Relaxed Silicon Germanium*, Seiten 135–143. INSPEC, 1995.
- [61] Y.J. Mii, Y.H. Xie, E.A. Fitzgerald, Don Monroe, F.A. Thiel, B.E. Weir, und L.C. Feldman. *Appl. Phys. Lett.*, **59**, 1611, 1991.
- [62] K. Ismail, S.F. Nelson, J.O. Chu, und B.S. Meyerson. *Appl. Phys. Lett.*, **63**, 660, 1993.
- [63] K. Ismail, M. Arafa, K.L. Saenger, J.O. Chu, und B.S. Meyerson. *Appl. Phys. Lett.*, **66**, 1077, 1995.
- [64] Y.H. Xie, Don Monroe, E.A. Fitzgerald, P.J. Silverman, F.A. Thiel, und G.P. Watson. *Appl. Phys. Lett.*, **63**, 2263, 1993.
- [65] F.K. LeGoues, B.S. Meyerson, J.F. Morar, und P.D. Kirchner. *J. Appl. Phys.*, **71**, 4230, 1992.
- [66] F.K. LeGoues. *Phys. Rev. Lett.*, **72**, 876, 1994.
- [67] B.S. Meyerson. *Appl. Phys. Lett.*, **48**, 797, 1986.
- [68] B.S. Meyerson. *Proceedings of the IEEE*, **80**, 1592, 1992.
- [69] Don Monroe, Y.H. Xie, E.A. Fitzgerald, P.J. Silverman, und G.P. Watson. *J. Vac. Sci. Technol. B*, **11**, 1731, 1993.
- [70] S.Y. Shiryayev, F. Jensen, und J.W. Petersen. *Appl. Phys. Lett.*, **64**, 3305, 1994.
- [71] M.A. Lutz, R.M. Feenstra, F.K. LeGoues, P.M. Money, und J.O. Chu and. *Appl. Phys. Lett.*, **66**, 724, 1995.
- [72] J.W.P. Hsu, E.A. Fitzgerald, Y.H. Xie, P.J. Silverman, und M.J. Cardillo. *Appl. Phys. Lett.*, **61**, 1293, 1992.
- [73] W.T. Pike, R.W. Falhauer, und M.S. Anderson. *J. Vac. Sci. Technol. B*, **10**, 1990, 1992.
- [74] M. Albrecht, S. Christiansen, J. Michler, W. Dorsch, H.P. Strunk, P.O. Hansson, und E. Bauser. *Appl. Phys. Lett.*, **67**, 1232, 1995.
- [75] Y.H. Phang, D.E. Savage, T.F. Kuech, M.G. Lagally, J.S. Park, und K.L. Wang. *Appl. Phys. Lett.*, **60**, 2986, 1992.

- [76] R.L. Headrick und J.-M. Baribeau. *Phys. Rev. B*, **48**, 9147, 1993.
- [77] J.-M. Baribeau. *J. Appl. Phys.*, **74**, 3805, 1993.
- [78] Y.H. Phang, C. Teichert, M.G. Lagally, L.J. Peticolos, J.C. Bea, und E. Kasper. *Phys. Rev. B*, **50**, 14435, 1994.
- [79] Ming Li, Q. Cui, S.F. Cui, L. Zhang, J.M. Zhou, Z.H. Mai, C. Dong, H. Chen, und F. Wu. *J. Appl. Phys.*, **78**, 1681, 1995.
- [80] R.L. Headrick, J.-M. Baribeau, und Y.E. Strausser. *Appl. Phys. Lett.*, **66**, 96, 1995.
- [81] R.L. Headrick und J.-M. Baribeau. *J. Vac. Sci. Technol. A*, **13**, 782, 1995.
- [82] V. Holý, A.A. Darhuber, J. Stangl, G. Bauer, J.F. Nützel, und G. Abstreiter. *Il Nuovo Cimento*, **19D**, 419, 1997.
- [83] S. Banerjee, M.K. Sanyal, A. Datta, S. Kanakaraju, und S. Mohan. *Phys. Rev. B*, **54**, 16377, 1996.
- [84] J.-P. Schlomka, M. Tolan, L. Schwalowsky, O.H. Seeck, und W. Press. *Phys. Rev. B*, **51**, 2311, 1993.
- [85] J.-P. Schlomka, M.R. Fitzsimmons, R. Pynn, J. Stettner, O.H. Seeck, M. Tolan, und W. Press. *Physica B*, **221**, 44, 1996.
- [86] M. Tolan, G. Vacca, S.K. Sinha, Z. Li, M.H. Rafailovich, J. Sokolov, H. Lorenz, und J.P. Kotthaus. *Appl. Phys. Lett.*, **68**, 191, 1996.
- [87] H.Rhan, U. Pietsch, S. Rugel, H. Metzger, und J. Peisl. *J. Appl. Phys.*, **74**, 146, 1993.
- [88] P.M. Mooney, J.L. Jordan-Sweet, J.O. Chu, und F.K. LeGoues. *Appl. Phys. Lett.*, **66**, 3642, 1995.
- [89] J.H. Li, V. Holý, G. Bauer, J.F. Nützel, und G. Abstreiter. *Appl. Phys. Lett.*, **67**, 789, 1995.
- [90] J.H. Li, V. Holý, G. Bauer, J.F. Nützel, und G. Abstreiter. *Semicond. Sci. Technol.*, **10**, 1621, 1995.
- [91] V. Holý, J.H. Li, G. Bauer, J. Schäffler, und H.-J. Herzog. *J. Appl. Phys.*, **78**, 5013, 1995.
- [92] Chung-Yu Mou und J.W.P. Hsu. *Phys. Rev. B*, **53**, R7610 and, 1996.

- [93] T. Edelmann. *Löslichkeitsisothermen und Strukturänderungen von wasserstoffbeladenen epitaktischen Niobschichten*. Dissertation, LMU München, 1999.
- [94] C. Thompson, G. Palasantzas, Y.P. Feng, S.K. Sinha, und J. Krim. *Phys. Rev. B*, **49**, 4902, 1994.
- [95] B. Dietrich, H. J. Osten, H. Rücker, M. Methfessel, und P. Zaumseil. *Phys. Rev. B*, **49**, 17185, 1994.
- [96] H. J. Osten, E. Bugiel, und P. Zaumseil. *Appl. Phys. Lett.*, **64**, 3440, 1994.
- [97] K. Eberl, S.S. Iyer, und F.K. LeGoues. *Appl. Phys. Lett.*, **64**, 739, 1994.
- [98] P. Zaumseil, G.G. Fischer, K. Brunner, und K. Eberl. *J. Appl. Phys.*, **81**, 6134, 1997.
- [99] H. J. Osten und E. Bugiel. *Appl. Phys. Lett.*, **70**, 2813, 1997.
- [100] J. Tersoff. *Phys. Rev. Lett.*, **74**, 5080, 1995.
- [101] J.B. Posthill, R.A. Rudder, S.V. Hattangady, G.G. Fountain, und R. J. Markunas. *Appl. Phys. Lett.*, **56**, 734, 1990.
- [102] S.S. Iyer, K. Eberl, M.S. Goorsky, F.K. LeGoues, und J.C. Tsang. *Appl. Phys. Lett.*, **60**, 356, 1992.
- [103] K. Eberl, S.S. Iyer, S.C. Tsang, M.S. Goorsky, und F.K. LeGoues. *J. Vac. Sci. Technol. B*, **10**, 934, 1992.
- [104] J.W. Strane, H.J. Stein, S.R. Lee, B.L. Doyle, S.T. Picraux, und J.W. Mayer. *Appl. Phys. Lett.*, **63**, 2786, 1993.
- [105] H. J. Osten, Myeongcheol Kim, K. Pressel, und P. Zaumseil. *J. Appl. Phys.*, **80**, 6711, 1996.
- [106] H. J. Osten, D. Endisch, E. Bugiel, und B. Dietrich. *Semicond. Sci. Technol.*, **11**, 1678, 1996.
- [107] G. G. Fischer, P. Zaumseil, E. Bugiel, und H. J. Osten. *J. Appl. Phys.*, **77**, 1934, 1995.
- [108] M. S. Goorsky, S. S. Iyer, K. Eberl, F. LeGoues, J. Angilello, und F. Cardone. *Appl. Phys. Lett.*, **60**, 2758, 1992.
- [109] A. R. Powell, F. K. LeGoues, und S. S. Iyer. *Appl. Phys. Lett.*, **64**, 324, 1994.

- [110] J. W. Strane, H. J. Stein, S. R. Lee, S. T. Picraux, J. K. Watanabe, und J. W. Mayer. *J. Appl. Phys.*, **76**, 3656, 1994.
- [111] G.G. Fischer und P. Zaumseil. *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **28**, A109, 109.
- [112] P.C. Kelires. *Phys. Rev. B*, **55**, 8785, 1997.
- [113] M. Berti, D. De Salvador, A. V. Drigo, F. Romanato, J. Stangl, S. Zerlauth, F. Schäffler, und G. Bauer. *Appl. Phys. Lett.*, **72**, 1602, 1998.
- [114] W. Sauer, T.H. Metzger, J. Peisl, Y. Avrahami, und E. Zolotoyabko. *Il Nuovo Cimento*, **19**, 455, 1997.
- [115] U. Beck. Persönliche Mitteilung.
- [116] C. Penn, S. Zerlauth, J. Stangl, G. Bauer, G. Brunthaler, und F. Schäffler. *Appl. Phys. Lett.*, **71**, 2172, 1997.
- [117] O. Glatter. In O. Glatter und O. Kratky, Hrsg., *Small Angle X-ray Scattering*. Academic Press, London, 1982.
- [118] M. Meléndez-Lira, J. Menéndez, K.M. Kramer, M.O. Thompson, N. Cave, R. Liu, J.W. Christiansen, N.D. Theodore, und J.J. Candalaria. *J. Appl. Phys.*, **82**, 4246, 1997.
- [119] Y.-W. Mo, D. E. Savage, B. S. Schwartzentruber, und M. G. Lagally. *Phys. Rev. Lett.*, **65**, 1020, 1990.
- [120] D.E. Jesson, G. Chen, K.M. Chen, und S.J. Pennycook. *Phys. Rev. Lett.*, **80**, 5156, 1998.
- [121] G. Medeiros-Ribeiro, T. I. Kamins, D. A. A. Ohlberg, und R. Stanley Williams. *Phys. Rev. B*, **58**, 3533, 1998.
- [122] A. J. Steinfert, P. M. L. O Scholten, A. Ettema, F. Tuinstra, M. Nielsen, E. Landemark, D.-M. Smilgies, R. Feidenhans 'l, G. Falkenberg, L. Seehofer, und R. L. Johnson. *Phys. Rev. Lett.*, **77**, 2009, 1996.
- [123] J.-H. Zhu, K. Brunner, und G. Abstreiter. *Appl. Phys. Lett.*, **72**, 424, 1998.
- [124] M. Horn-von Hoegen, B. H. Müller, A. Al-Falou, und M. Henzler. *Phys. Rev. Lett.*, **71**, 3170, 1993.
- [125] D. J. Eaglesham, F. C. Unterwald, und D. C. Jacobson. *Phys. Rev. Lett.*, **70**, 966, 1993.
- [126] T. I. Kamins, E. C. Carr, R. S. Williams, und S. J. Rosner. *J. Appl. Phys.*, **81**, 211, 1997.

- [127] M. Goryll, L. Vescan, K. Schmidt, S. Mesters, und H. Lüth. *Appl. Phys. Lett.*, **71**, 410, 1997.
- [128] W. Dorsch, H.P. Strunk, H. Wawra, G. Wagner, J. Groenen, und R. Carles. *Appl. Phys. Lett.*, **72**, 179, 1998.
- [129] M. Schmidbauer, Th. Wiebach, H. Raidt, M. Hanke, R. Köhler, und H. Wawra. *Phys. Rev. B*, **58**, 10523, 1998.
- [130] F. K. LeGoues, M. Horn-von Hoegen, M. Copel, und R. M. Tromp. *Phys. Rev. B*, **44**, 12894, 1991.
- [131] M. Horn-von Hoegen, M. Pook, A. Al-Falou, B. H. Müller, und M. Henzler. *Surf. Sci.*, **284**, 53, 1993.
- [132] I.N. Stranski und L. Krastanov. *Akad. Wiss. Lit. Mainz Abh. Math Naturwiss. Kl.*, **146**, 797, 1939.
- [133] B. Voigtländer und A. Zinner. *Appl. Phys. Lett.*, **63**, 3055, 1993.
- [134] U. Köhler, O. Jusko, G. Pietsch, B. Müller, und M. Henzler. *Surf. Sci.*, **248**, 321, 1991.
- [135] R. L. Headrick, I. K. Robinson, E. Vlieg, und L. C. Feldman. *Phys. Rev. Lett.*, **63**, 1253, 1989.
- [136] U. Beck, P. Yang, T.H. Metzger, J. Peisl, J. Falta, G. Materlik, T. Rupp, H. Baumgärtner, I. Eisele, und J.R. Patel. *Il Nuovo Cimento*, **19**, 403, 1997.
- [137] R. Beikler. Grenzflächenmorphologie beim Wachstum von vergrabenen Ge- δ -Schichten auf Si(100). Diplomarbeit, LMU-München, Januar 1998.
- [138] U. Beck. *Untersuchung von oberflächennahen Nanostrukturen in Silizium-Systemen nach Ionenimplantation und bei epitaktischem Wachstum mit Methoden der Röntgenstreuung*. Dissertation, LMU-München, 1999.
- [139] J. Schulze, H. Baumgärtner, C. Fink, G. Dollinger, I. Genchev, L. Görgens, W. Hansch, H. E. Hoster, T. H. Metzger, R. Paniago, T. Stimpel, T. Sulima, und I. Eisele. The formation of silicon(111) boron surface phases and their influence on the epitaxial growth of silicon and germanium. Angenommen bei *Thin Solid Films*.
- [140] A.V. Zotov, M., A. Kulakov, B. Bullemer, und I. Eisele. *Phys. Rev. B*, **53**, 12902, 1996.
- [141] A.V. Zotov, M., A. Kulakov, S.V. Ryzhkov, V.G. Lifshits, B. Bullemer, und I. Eisele. *Surf. Sci.*, **352**, 358, 358.

- [142] T. Stimpel, J. Schulze, H.E. Hoster, I. Eisele, und H. Baumgärtner. In-situ STM studies of the self-assembling formation of boron surface phases on Si(111). Angenommen bei *Applied Surface Science*.
- [143] L. Gråbæk, J. Bohr, H. H. Andersen, A. Johansen, E. Johnson, L. Sarholt-Kristensen, und I. K. Robinson. *Phys. Rev. B*, **45**, 2628, 1992.
- [144] S. Song und S. G. J. Mochrie. *Phys. Rev. B*, **51**, 10068, 1994.
- [145] M. Nielsen, D.-M. Smilgies, R. Feidenhans'l, E. Landemark, G. Falkenberg, L. Lottermoser, L. Seehofer, und R.L. Johnson. *Surf. Sci.*, **352**, 530, 358.
- [146] F. B. Rasmussen, J. Baker, M. Nielsen, R. Feidenhans'l, und R. L. Johnson. *Phys. Rev. Lett.*, **79**, 4413, 1997.
- [147] E. Lundgreen, J. Alvarez, X. Torreles, K. F. Peters, H. Isern, und S. Ferrer. *Phys. Rev. B*, **59**, 2421, 1999.
- [148] Th. Proffen und R.B. Neder. DISCUS, a Program for Diffuse Scattering and Defect Structure Calculations. *J. Appl. Cryst.*, **30**, 171, 1997.
- [149] K. Nordlund, P. Partyka, und R. S. Averback. Fully atomistic analysis of diffuse X-ray scattering spectra of silicon defects. In T. Diaz de la Rubia und S. Coffa, Hrsg., *MRS Symposium Proceedings*, Bd. 469, Seite 113, 1997.
- [150] K. Nordlund, P. Partyka, Y. Zhong, I. K. Robinson, R. S. Averback, und P. Ehrhart. *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B*, **147**, 399, 1999.
- [151] J. Tersoff. *Phys. Rev. B*, **39**, 5566, 1989.
- [152] N.A. Tabet, M.A. Salim, und A.L. Al-Oteibi. *Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena*, **101-103**, 233, 1999.
- [153] D. Schmeisser, R.D. Schnell, A. Bogen, F.J. Himpsel, D. Rieger, G. Landgrien, und J.F. Morar. *Surf. Sci.*, **172**, 455, 1986.
- [154] R.J. Archer. *J. Electrochem. Soc.*, **104**, 619, 1957.
- [155] V.M. Kaganer, R. Köhler, M. Schmidbauer, R. Opitz, und B. Jenichen. *Phys. Rev. B*, **55**, 1793, 1997.
- [156] J.P. Hirthe und J. Lothe. *Theory of Dislocations*. McGraw-Hill, New York, 1968.
- [157] S.C. Moss. Persönliche Mitteilung.
- [158] Z.L. Wang. *Phil. Mag. B*, **65**, 559, 1992.

- [159] Z. Wu, Hawoong Hong, R. Aburano, P. Zschack, P. Jemian, J. Tischler, Haydn Chen, D.-A. Luh, und T.-C. Chiang. *Phys. Rev. B*, **59**, 3283, 1999.
- [160] B. L. Henke, E. M. Gullikson, und J. C. Davis. *Atomic Data and Nuclear Data Table*, **54**, 181, 1993.

Danksagung

Meinem Doktorvater Prof. Dr. J. Peisl danke ich für die Möglichkeit, diese Arbeit in der kollegialen, freundlichen und kreativen Atmosphäre seines Lehrstuhls durchführen zu können.

Herrn Dr. Hartmut Metzger danke ich für seine Betreuung und den Ideenreichtum, mit dem er die experimentelle Seite der Arbeit begleitete sowie dafür, daß er die vielfältigen Kontakte zu den anderen an dieser Arbeit beteiligten Gruppen knüpfte.

Herrn Dr. K. Ismail, IBM T. J. Watson Research Center, danke ich für die Überlassung der $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$ -Proben und sein Interesse am Fortgang der Untersuchungen.

Julian Stangl und Herrn Prof. G. Bauer, Johannes Kepler Universität Linz, danke ich für die erfreuliche Zusammenarbeit auf dem $\text{Si}_{1-x}\text{C}_x$ -System. Die gemeinsam verbrachten Meßtage und -nächte in Hamburg und Grenoble und die Abende im HASYLAB Gästehaus werden mir immer in positiver Erinnerung bleiben ebenso wie das fruchtbare Ringen um eine gemeinsame Interpretation der Ergebnisse.

Herrn Dipl. Phys. Jörg Schulze, Institut für Physik an der Universität der Bundeswehr München, danke ich für die Herstellung der Ge-Inseln auf Si(111) sowie seine didaktisch hervorragende Einführung in die Struktur der rekonstruierten Bor-Oberflächenphasen.

Den Mitarbeitern am CeNS möchte ich für ihre kollegiale Hilfsbereitschaft danken: Frau Tanja Stimpel für die AFM-Aufnahmen an den $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$ -Schichten, Dr. Richard Warburton für sein Engagement am IR-Spektrometer sowie Martin Streibl und Jan Domke für AFM-Aufnahmen von Ge-Inseln auf Si(111).

Dr. Tim Salditt danke ich für sein Interesse, seine Diskussionsbereitschaft und die Anregungen zur Interpretation der diffusen Streuung von *sehr* rauen Grenzflächen.

Markus Rauscher, Lehrstuhl Prof. H. Wagner, verkörperte den idealen 'Haustheoretiker'. Sein theoretischer Hintergrund ergänzte sich perfekt mit seinem weit über sein Forschungsthema hinausführendes Interesse an experimentellen Aspekten der Streuphysik und mündete in die Simulationsprogramme zur Berechnung der Kleinwinkel- und CTR-Streuung.

Herrn Prof. Rogerio Paniago, Universidade Federal de Minas Gerais, Belo Horizonte, Brasilien danke ich für seine Vorarbeiten am System Ge/Si(111) und sein anhaltendes Interesse am weiteren Fortgang der Arbeit. Seine Unterstützung während gemeinsamer Meßzeiten trug wesentlich zum Gelingen der Experimente bei. Besonders danke ich ihm und seiner Frau Claudia für ihre Gastfreundschaft während eines Forschungsaufenthaltes in Brasilien.

Für sein Interesse und die fruchtbaren und ermutigenden Diskussionen möchte ich auch Herrn Dr. Vaclav Holý, Masaryk University, Brno, danken.

Dr. Kai Nordlund, Academy of Finland, Helsinki, danke ich für seine Einfüh-

rung in die atomistische Simulationen der Gitterrelaxation um Punktdefekte und in verspannten Inseln sowie die Einblicke in die Trickkiste der Shell-Script-Programmierung.

Den Mitarbeitern des HASYLAB, besonders den Verantwortlichen an den Instrumenten BW2, D4 und W1 danke ich für ihre Unterstützung während der Experimente in Hamburg. Besonders sei auch der Werkstatt am HASYLAB gedankt, deren zügige und informelle Bearbeitung kleinerer Aufträge das manchmal notwendige Improvisieren vor Ort erst möglich machte.

Gleichermaßen danke ich den Mitarbeitern der ESRF, Grenoble, für ihre Unterstützung und die überaus nutzerfreundliche Atmosphäre, die ein effizientes Arbeiten bei minimalen Reibungsverlusten ermöglichte. Besonders sei den Teams an den Instrumenten ID3, ID10A und ID10B und den Verantwortlichen, Dr. S. Ferrer, Dr. G. Grübel und Dr. D. Smilgies gedankt.

Dem Fahrer der Sektion Physik, Herrn Rainhardt Satzkowski gilt mein Dank für sein großes Engagement beim Transport der oftmals umfangreichen experimentellen Ausrüstung. Ohne seine Flexibilität und ohne seinen behutsamen Umgang mit dem empfindlichen Equipment hätte manches Experiment nicht rechtzeitig oder gar nicht begonnen.

Ohne die Unterstützung der Werkstatt wären wir jedoch gar nicht zum Experimentieren gekommen. Allen voran sei Herrn Wolf gedankt für seinen Rat in konstruktiven und logistischen Fragen, für sein hohes Fachwissen bei der Wartung und Reparatur der Drehanoden und allen Mitarbeitern für die prompte und zuverlässige Anfertigung von Aufträgen.

Den Lehrstuhlsekretärinnen Frau Margarita Stimpfle und Frau Lana Polero sei gedankt für ihre freundliche und hilfsbereite Unterstützung in allen administrativen Belangen und bei der Organisation der zahlreichen Reisen.

Herrn Dipl. Ing. Christoph Singer danke ich besonders für die freundschaftliche Zusammenarbeit, seine nie versiegende Hilfsbereitschaft sowie die Wartung der Instrumente am Institut und seine Unterstützung in allen computertechnischen Belangen.

Sigi Schmid möchte meinen besonderen Dank aussprechen für seine Unterstützung und Hilfe bei komplexen Problemen und eleganten Lösungen der Datenverarbeitung, die Einführung des Programms *DISCUS* am Institut sowie die Administration des mächtigen *jabba*, der die Auswertung der Daten in der Endphase um vieles beschleunigte und einige anspruchsvolle Simulationsrechnungen erst ermöglichte.

Meinen Kollegen Udo Beck und Wolfgang Sauer danke ich für ihre Hilfe, ihren Humor und den Spaß, den wir bei gemeinsamen Meßzeiten hatten.

Allen anderen Mitarbeitern am Institut danke ich für die freundschaftliche und kollegiale Zusammenarbeit, wie sie nur auf dem Boden gegenseitiger Hilfsbereitschaft gedeihen konnte.

Für ihre Unterstützung möchte ich auch meinen Eltern danken.

Frauke danke ich für das Korrekturlesen dieser Arbeit. Besonders möchte ich

ihr aber für ihre Geduld, ihr Verständnis und den Rückhalt in allen Phasen dieser Arbeit danken.

Die vorliegende Arbeit wurde in wesentlichen Teilen durch die Volkswagenstiftung (Projekt Nr. I/72 512) finanziert. Die Zusammenarbeit mit Prof. Dr. Rogerio Paniago, Brasilien, wurde durch einen projektbezogenen Personenaustausch vom Deutschen Akademischen Austauschdienst (Projekt Nr. 415-PROBRAL/SCHÜ) unterstützt, ebenso die Kooperation mit Dr. Kai Nordlund, Finnland, (Projekt Nr. 313/SF-PPP 6/98).

Veröffentlichte Teile der Arbeit

Z. Kovats, T. Salditt, T. H. Metzger, J. Peisl, T. Stimpel, H. Lorenz, J. O. Chu, und K. Ismail. Interface morphology in strained layer epitaxy of Si/Si_{1-x}Ge_x layers studied by X-ray scattering under grazing incidence and atomic force microscopy, *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **32**, 359 (1999).

R. Paniago, H. Metzger, M. Rauscher, Z. Kovats, J. Peisl, J. Schulze, I. Eisele, und S. Ferrer. Grazing incidence small angle X-ray scattering from laterally ordered triangular pyramidal Ge islands on Si(111). Zur Veröffentlichung angenommen bei *Journal of Applied Crystallography*.

M. Rauscher, R. Paniago, H. Metzger, Z. Kovats, J. Domke, J. Peisl, H.-D. Pfannes, J. Schulze, und I. Eisele. Grazing incidence small angle x-ray scattering from free-standing nanostructures. *Journal of Applied Physics*, **86**, 6763 (1999).

Lebenslauf

Name Zoltan Kovats
Anschrift Augustenstraße 64
80333 München
Geburtsdatum/-ort 05.09.1968 in München
Staatsangehörigkeit Österreich
Familienstand ledig
Eltern Gerda und Ladislaus Kovats

Ausbildung

Schule:

1975 - 1979 Grundschule an der Königswieser Str., München
1979 - 1988 Albert-Einstein-Gymnasium, München
1988 Abitur

Studium:

1988 -1989 Neuere und Neueste Geschichte
Neuere Deutsche Literatur
an der Ludwig-Maximilians-Universität München
1989 - 1995 Physik
an der Ludwig-Maximilians-Universität München
1995 Diplom Physik

seit Februar 1996 wissenschaftlicher Angestellter der Sektion Physik
an der Ludwig-Maximilians-Universität München
Promotion am Lehrstuhl Prof. Dr. J. Peisl

