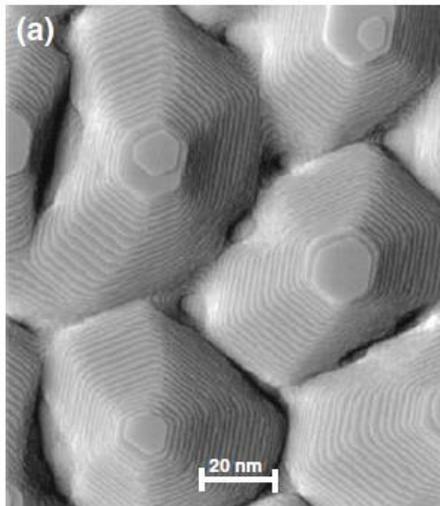


Vorlesung 11 Homoepitaxie



4. Schichtwachstum

Übersicht über Kapitel 4

4. Schichtwachstum

4.1 Homoepitaxie

4.2 Nukleation

4.3 Inselformen

4.4 Wachstumsmanipulation

4.5 Heteroepitaxie

Lernziele

- Vertraut werden mit Homoepitaxie, unterschiedlichen Wachstumsmodi
- Diffusionsprozesse auf Oberflächen
- Schwöbel-Ehrlich Barriere

4.1 Homoepitaxie

Hetero- und Homoepitaxie

“**Epitaxie** bedeutet, dass die Kristallstruktur der aufwachsenden Schicht sich der des Substrates anpasst, solange die physikalischen Eigenschaften (insbesondere die Gitterparameter) der beiden Substanzen nicht zu stark voneinander abweichen. Man spricht von **Homoepitaxie**, wenn Substrat und Schicht aus der gleichen Verbindung bestehen, ansonsten von **Heteroepitaxie**.”

<https://de.wikipedia.org/wiki/Molekularstrahlepitaxie>



1. Homoepitaxy. *When the difference of the chemical potentials of the substrate and deposit crystals is mainly due to the lattice misfit rather than to the difference in chemistry.*

→ Si auf Si dotiert mit Bor (kleinere Gitterkonstante) → Unterschiedliche chemische Potentiale aufgrund Gitterkonstante → Homoepitaxie

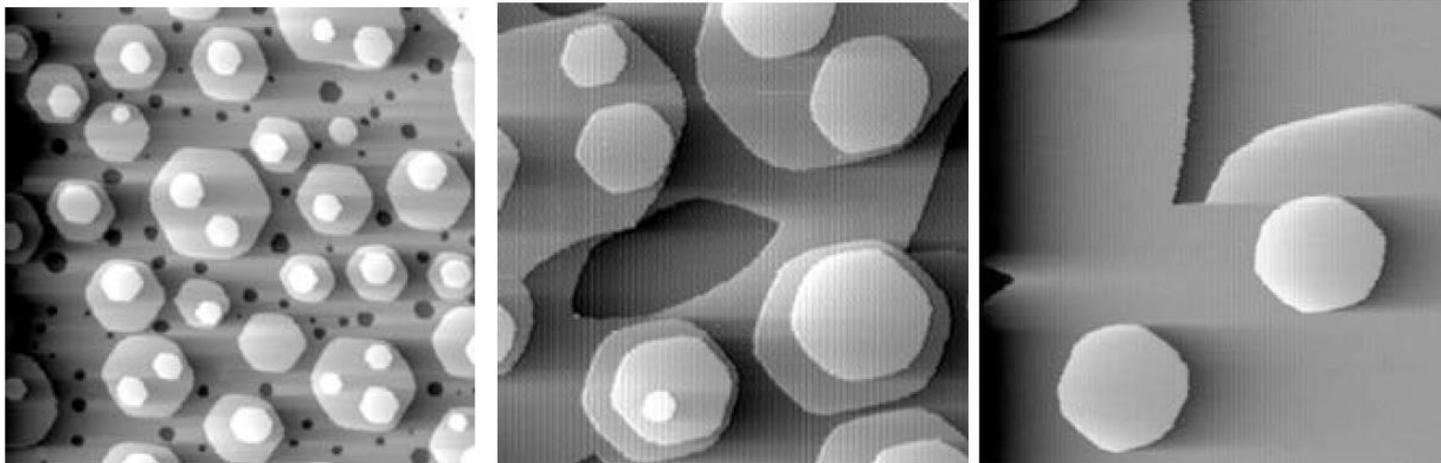
2. Heteroepitaxy. *When the difference of the chemical potentials of the substrate and deposit crystals is due mainly to the difference in strength of the chemical bonds irrespective of the value of the lattice misfit.*

→ $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ auf (100)InP mit $x = 0.47$ → Gleiche Gitterkonstante → Unterschiedliche chemische Potentiale aufgrund unterschiedlicher Bindungsstärken → Heteroepitaxie

Markov, S. 365

Unterschiedliches Wachstum in der Homoepitaxie

Ag-Inseln gewachsen auf Ag(111)



190 nm x 190 nm

Ibach, S. 556

Unterschiedliches Wachstum in der Homoepitaxie

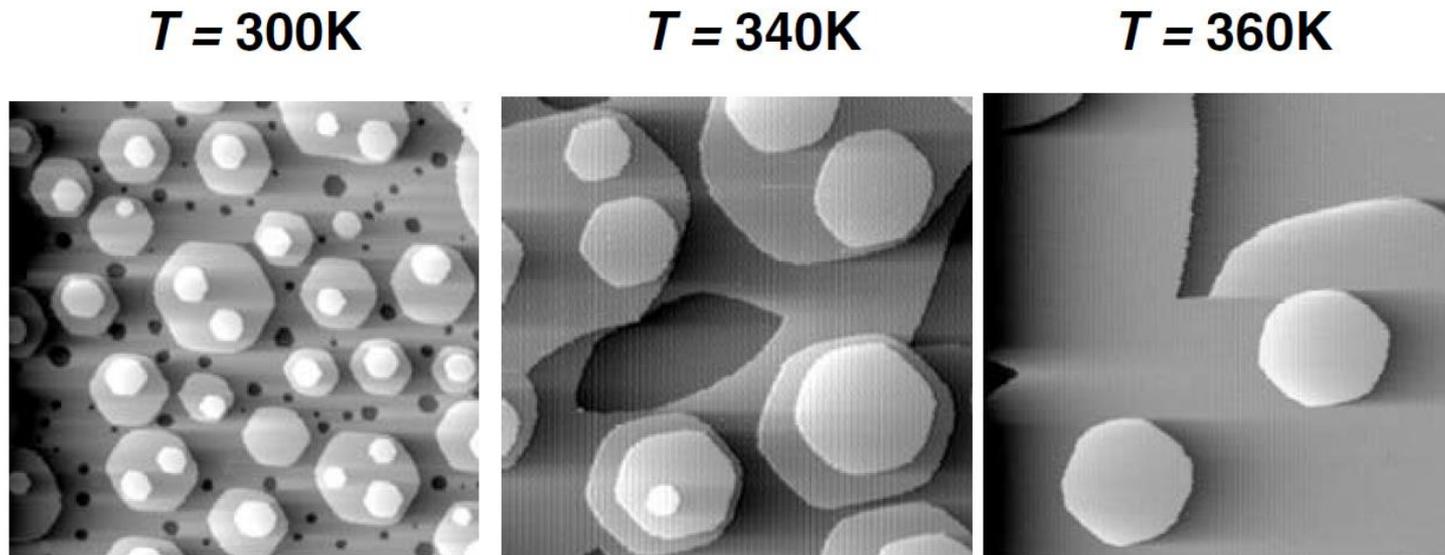
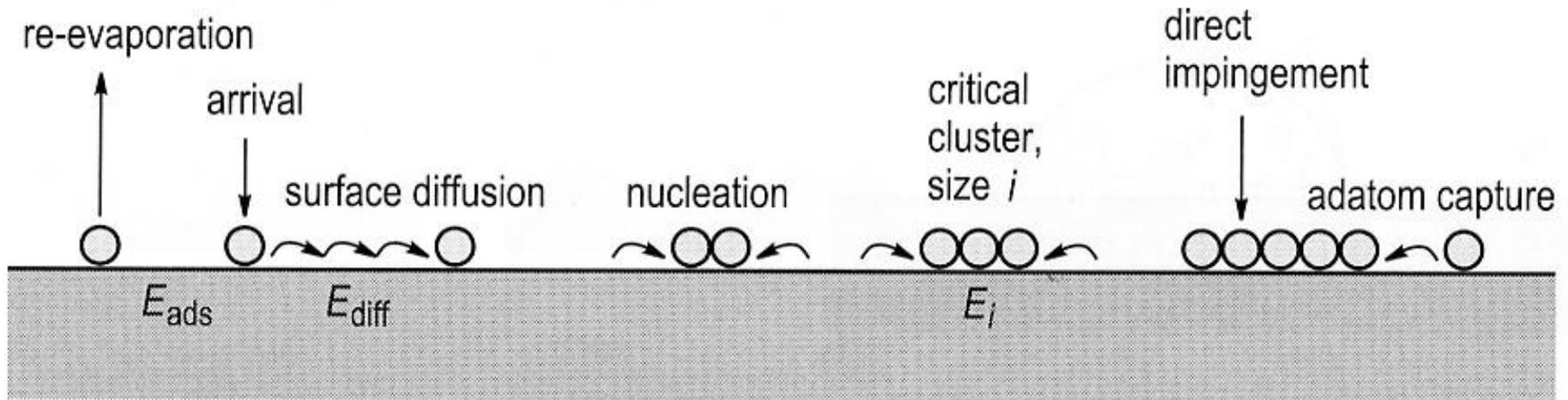


Fig. 11.1. $190\text{ nm} \times 190\text{ nm}$ STM images of Ag(111) after deposition of a few monolayers of Ag at different temperatures with the same flux. The lower density of islands at higher temperatures is due to the faster diffusion (courtesy of Margret Giesen, unpublished).

Ibach, S. 556

4.1 Homoepitaxie

Wie funktioniert Wachstum auf einem idealen Kristall (keine Defekte, Stufen etc.)?



- Es existiert ein ganzer Zoo an Diffusionsprozessen
- Unterschiedliche Barrieren erlauben gezieltes Anschalten von Prozessen durch Temperaturwahl
- Ausnahme : Diffusion durch quantenmechanisches Tunneln bei leichten Elementen

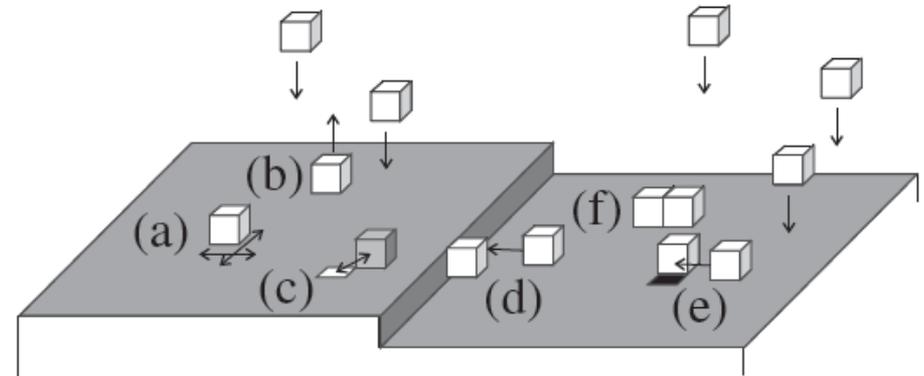
Thermisch aktivierte Diffusion

Oura, S. 360

4.1 Homoepitaxie

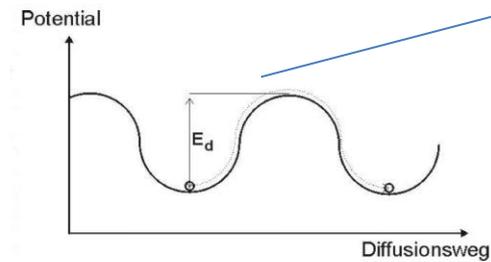
Verschiedene Prozesse möglich auf einer Oberfläche

Abb. 2.4: Elementarprozesse nach dem Auftreffen eines Atoms aus der Gasphase auf eine Oberfläche: (a) Adsorption und Diffusion, (b) Desorption, (c) Platzwechsel mit einem Substratatom, (d,e) Anlageung an einer Stufenkante oder an einem Defekt und (f) Nukleation eines Keimes.



Fauster, S. 42

- Jeder Prozess besitzt eine charakteristische **Wahrscheinlichkeit**, gegeben durch **charakteristische Energie**, die in einem **thermisch aktivierten** Prozess aufgebracht werden muss: Diffusionsbarrieren, Bindungsenergien etc
- Für Diffusion auf der Oberfläche müssen unterschiedliche Energie-Hürden überwunden werden

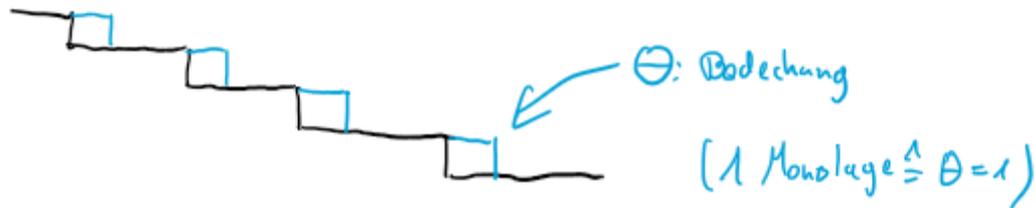


$$\text{Frequenz: } \nu = \nu_0 e^{\frac{-E_d}{K T}}$$
$$\nu_0 = 10^{12} \text{ Hz}$$

4.1 Homoepitaxie

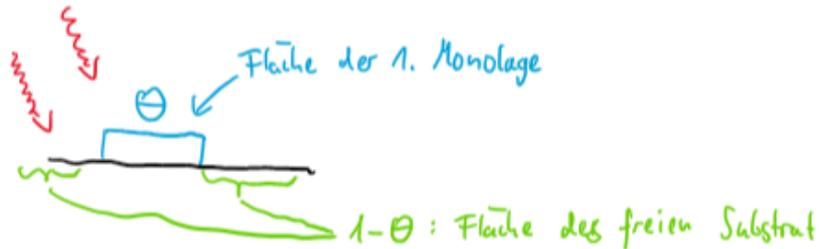
1. Stufenwachstum (Step-flow)

Vizinale Oberfläche



4.1 Homoepitaxie

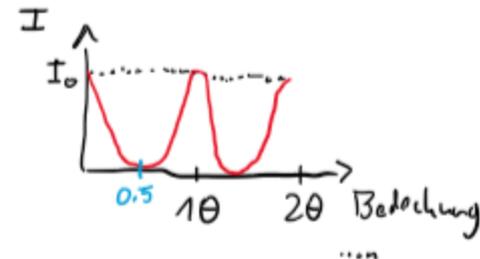
2. Ideale 2D Wachstum (Lage-für-Lage Wachstum)



$$\theta \in [0, 1]$$

In einem Streuexperiment: Streubedingung; Antiphase
zwischen zwei Lagen
 \hookrightarrow destruktive Interferenz

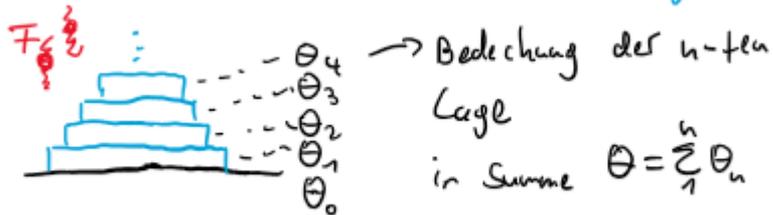
$$\rightarrow I = I_0 \cdot [1-\theta - \theta]^2 = I_0 \cdot (1-2\theta)^2$$



4.1 Homoepitaxie

3. Ideale 3D Wachstum

Ideal $T=0$, keine Diffusion \rightarrow Atome bleiben da wo sie gelandet sind („hit-and-stick“-growth)



Θ_n^o : offene Fläche der n -ten Lage

$$\Theta_n^o = \Theta_n - \Theta_{n+1}$$

$$\frac{d\Theta_n}{dt} = F \cdot \Theta_{n-1}^o$$

Fluss herabregnender Atome

$$F = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{d\Theta_n}{dt}$$

gekoppelte DGL

(1)

(2)

4.1 Homoepitaxie

$$\text{Lösungsansatz: } \frac{d\theta_n}{dt} = F \cdot \frac{(F+t)^{n-1}}{(n-1)!} \cdot e^{-F \cdot t}$$

in (2)
=>

$$\begin{aligned} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{d\theta_n}{dt} &= \sum_{n=1}^{\infty} F \cdot \frac{(F+t)^{n-1}}{(n-1)!} \cdot e^{-F \cdot t} \\ &= F \cdot e^{-F \cdot t} \cdot \sum_{n=1}^{\infty} \frac{(F+t)^{n-1}}{(n-1)!} = F \cdot e^{F \cdot t} \cdot e^{-F \cdot t} = F \end{aligned}$$

in (1)
=>

$$\frac{d\theta_n}{dt} = F \cdot \theta_{n-1} = F \cdot \frac{(F+t)^{n-1}}{(n-1)!} \cdot e^{-F \cdot t}$$

$$\hookrightarrow \theta_{n-1} = \theta_{n-1} - \theta_n = \frac{(F+t)^{n-1}}{(n-1)!} \cdot e^{-F \cdot t}$$

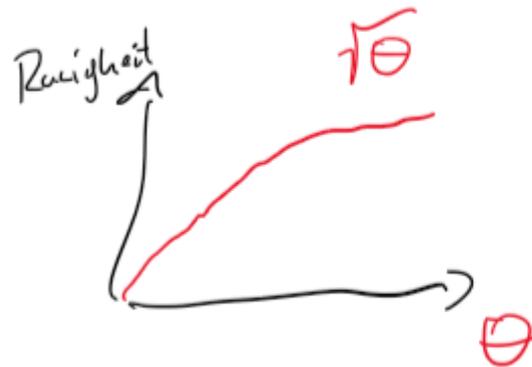
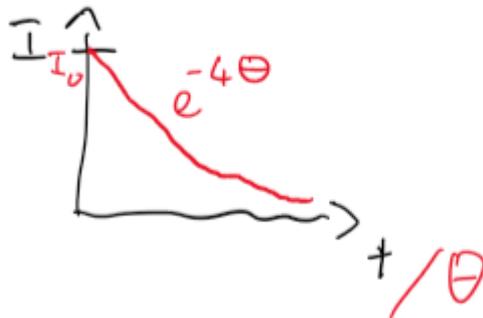
$$\hookrightarrow \text{rekursiv anwenden} \quad \theta_n = 1 - \sum_{m=1}^n \frac{(F+t)^{m-1}}{(m-1)!} \cdot e^{-F \cdot t}$$

$$\frac{d\theta_n}{dt} = \dots = F \cdot (\theta_{n-1} - \theta_n)$$

4.1 Homoepitaxie

Streuexperiment?

$$\begin{aligned} I &= I_0 \cdot \left| \sum_{n=0}^{\infty} (-1)^n \cdot \Theta_n^2 \right|^2 = I_0 \cdot \left| \sum_{n=0}^{\infty} (-1)^n \cdot \frac{(\mp \cdot t)^n}{n!} \cdot e^{-\mp \cdot t} \right|^2 \\ &= I_0 \cdot e^{-2\mp t} \cdot \left| \sum_{n=0}^{\infty} \frac{(-\mp \cdot t)^n}{n!} \right|^2 = I_0 \cdot e^{-2\mp t} \cdot e^{-2\mp t} \\ &= I_0 \cdot e^{-4\mp t} \end{aligned}$$



4.1 Homoepitaxie

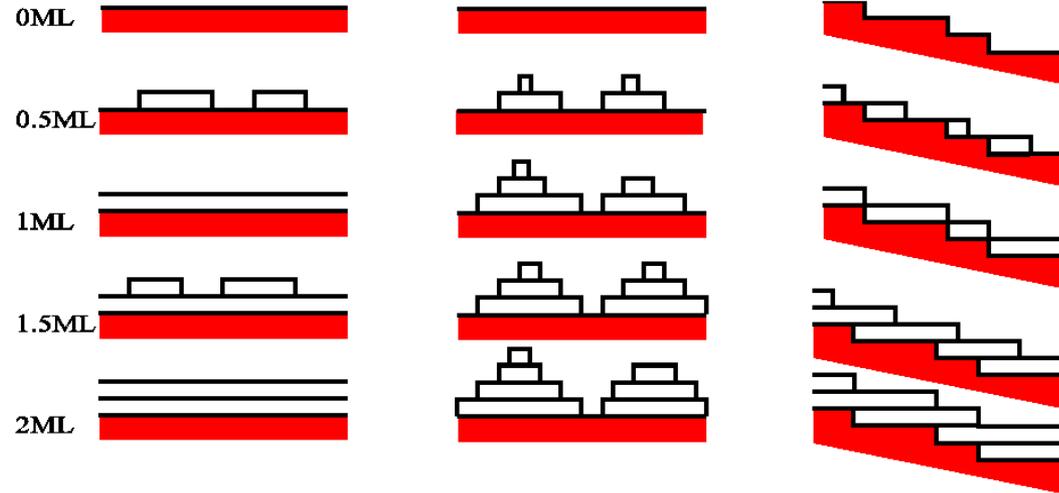
Wachstumsmodi

2D

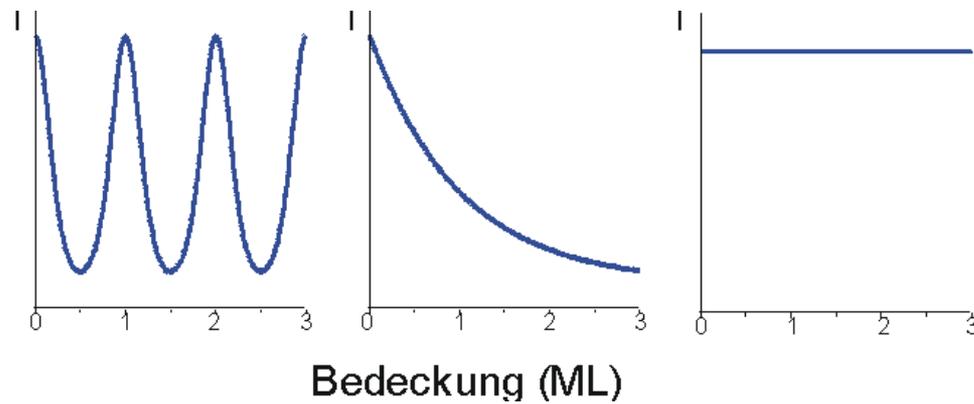
3D

Stufenwanderung

Realraum

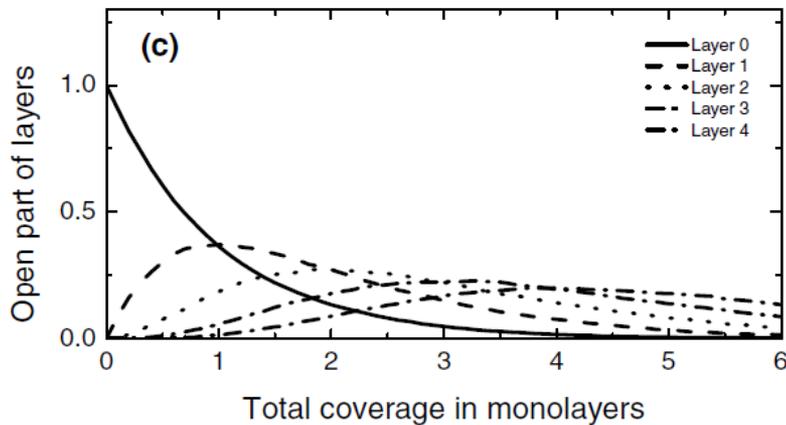
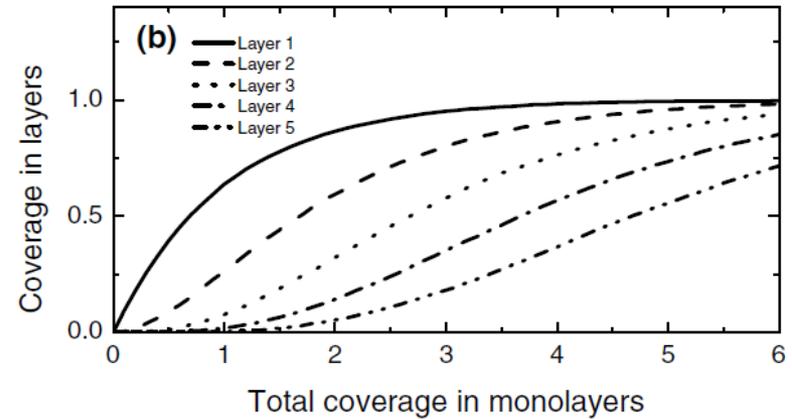
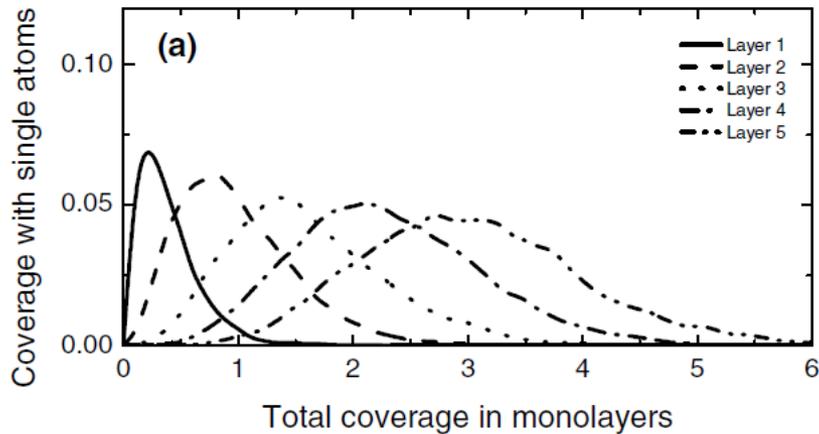


Streumethode

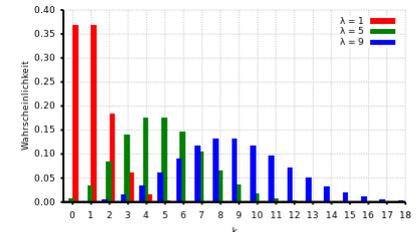


3. Ideales 3D Wachstum

MD Simulations



$$P_{\lambda}(k) = \frac{\lambda^k}{k!} e^{-\lambda}$$



<https://de.wikipedia.org/wiki/Poisson-Verteilung>

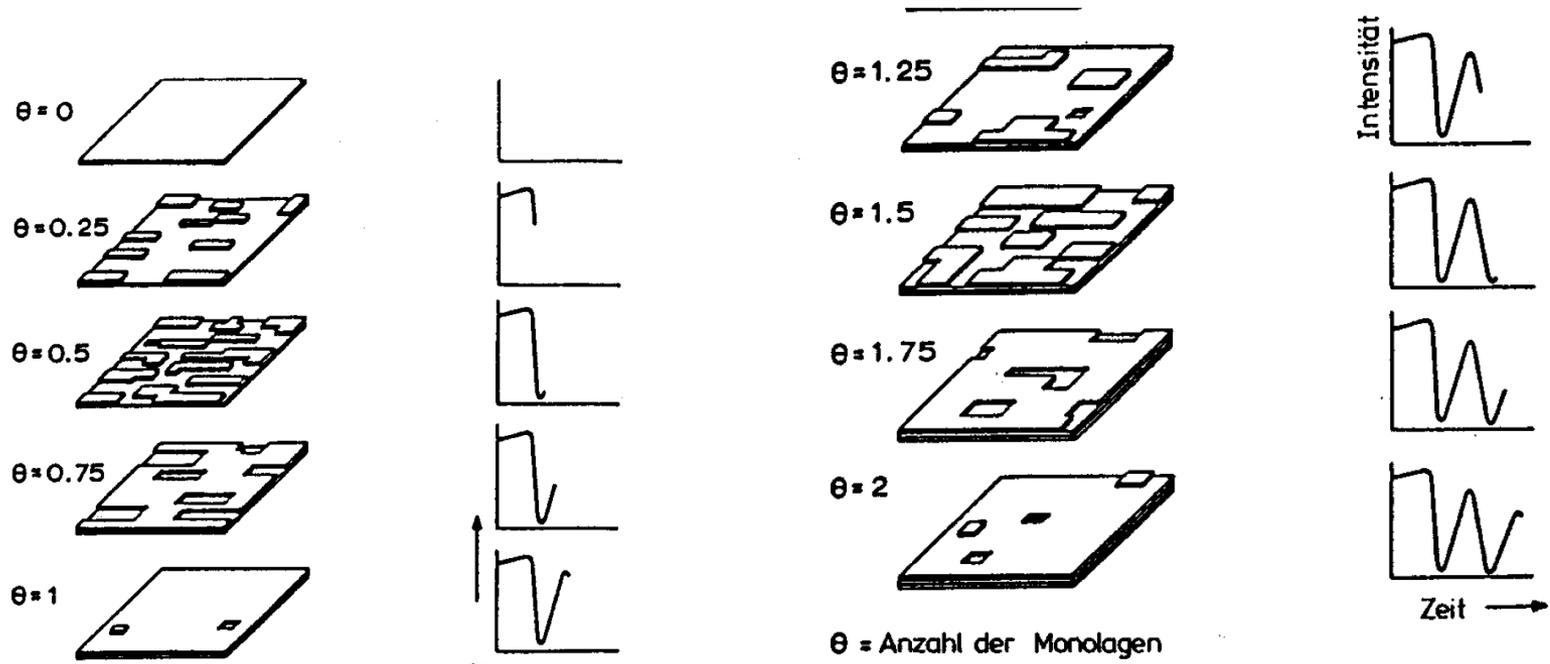
Ibach S. 563

4.1 Homoepitaxie

Reales 2D Wachstum

Nukleation der nächsten Atomlage vor Vollendung der darunterliegenden.

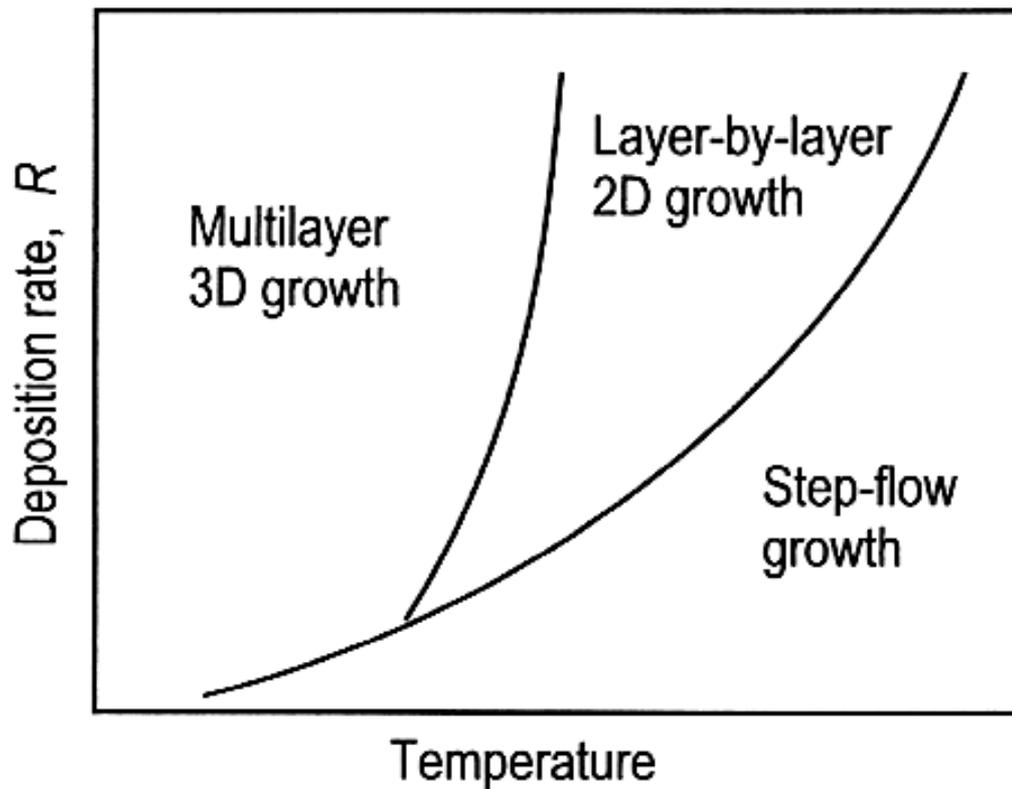
→ leicht ansteigende Rauigkeit



Henzler, S. 541

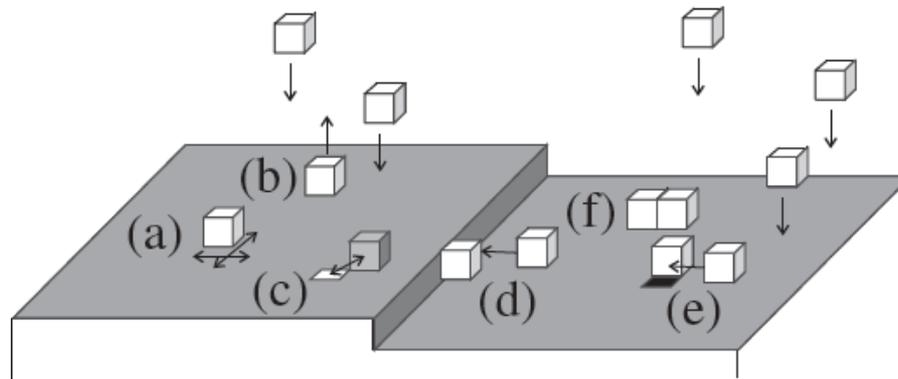
4.1 Homoepitaxie

- Wachstum hängt vor allem von **Temperatur T** und **Depositionsrate R** ab



Oura, S. 377

Eigenschaften unterschiedlicher Prozesse

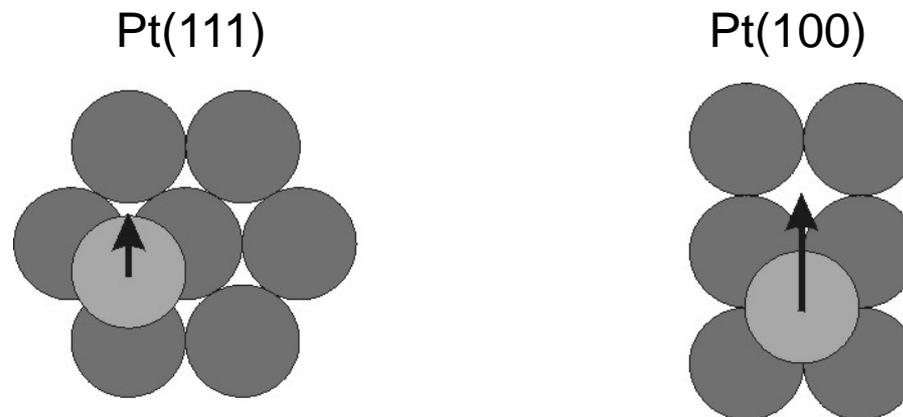


Fauster, S. 42

Einfache Regeln für die Diffusionsbarrieren

Daumenregel 1: Höhe der Barriere wächst mit der Anzahl von Bindungen, die bei dem Prozess gebrochen werden müssen

Beispiel Pt

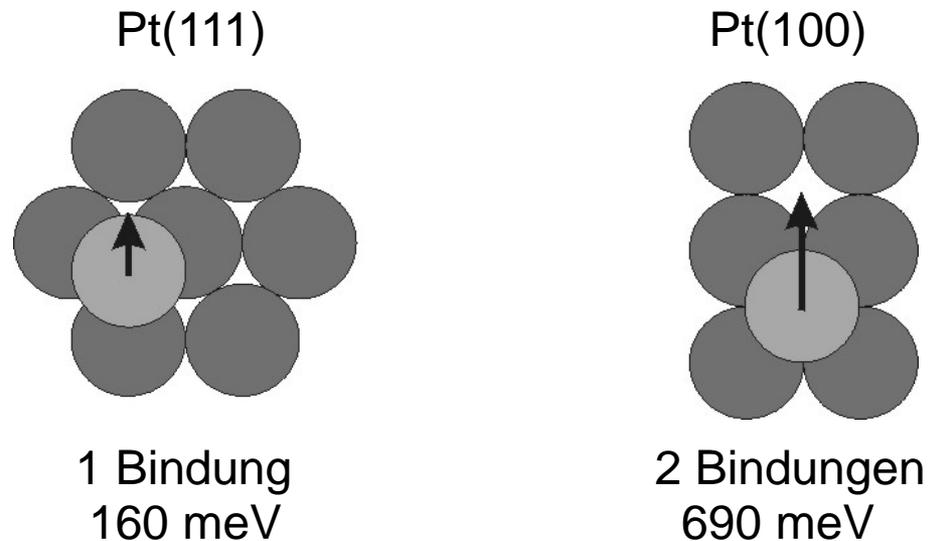


Daumenregel 2: Barrieren skalieren mit der Schmelztemperatur

Einfache Regeln für die Diffusionsbarrieren

Daumenregel 1: Höhe der Barriere wächst mit der Anzahl von Bindungen, die bei dem Prozess gebrochen werden müssen

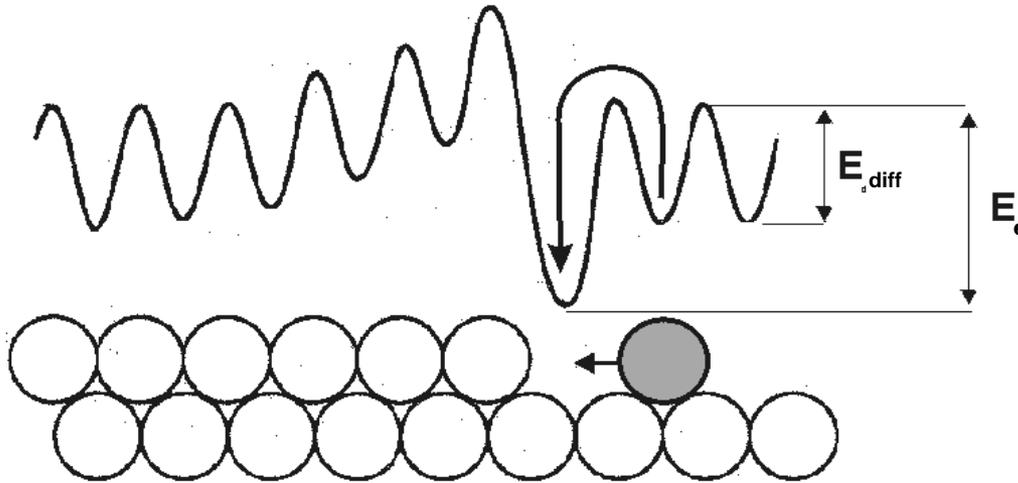
Beispiel Pt



Daumenregel 2: Barrieren skalieren mit der Schmelztemperatur

4.1 Homoepitaxie

Was passiert, wenn ein Atom eine Stufenkante trifft?



z.B. Ag(111)

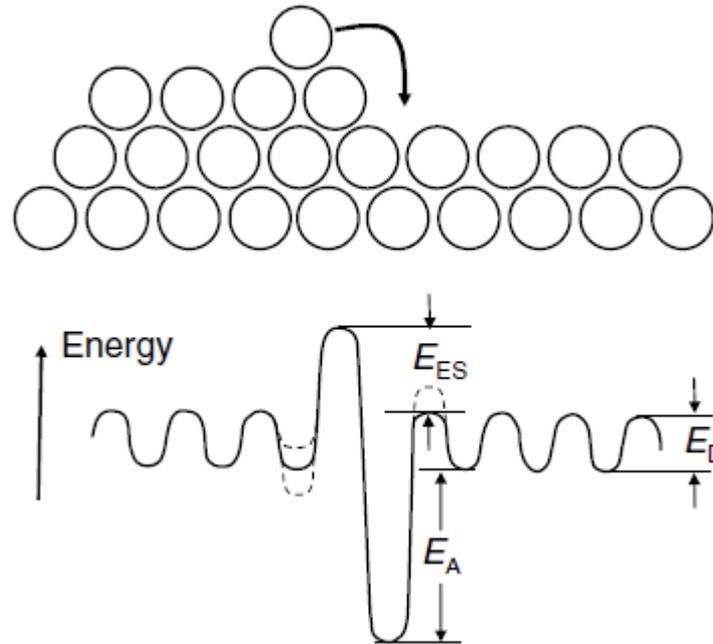
$$E_{diff} = 60\text{meV}$$

$$E_e = 500\text{meV}$$

- Koordination des Atoms steigt an der Stufenkante
- Atom ist an Stufe stärker gebunden
- Stufenkanten verhalten sich als Adatomsenken

→ Ist die Wachstumstemperatur hoch (schnelle Diffusion) oder die Aufdampftrate niedrig, so dass Adatome eher eine Stufenkante erreichen als andere Adatome, so fangen Stufen alles deponierte Material auf → Stufenwanderung

Diffusion über Abwärtsstufe

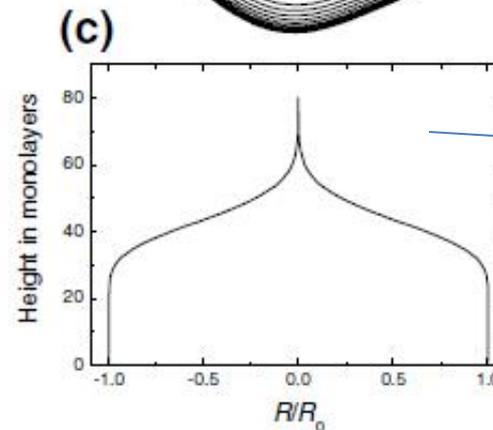
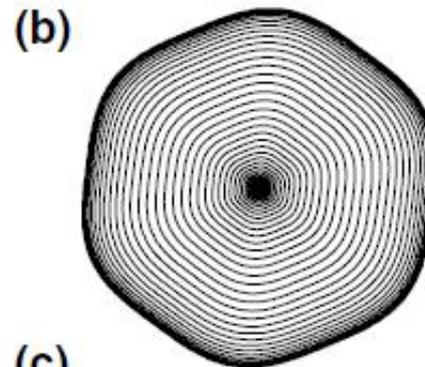
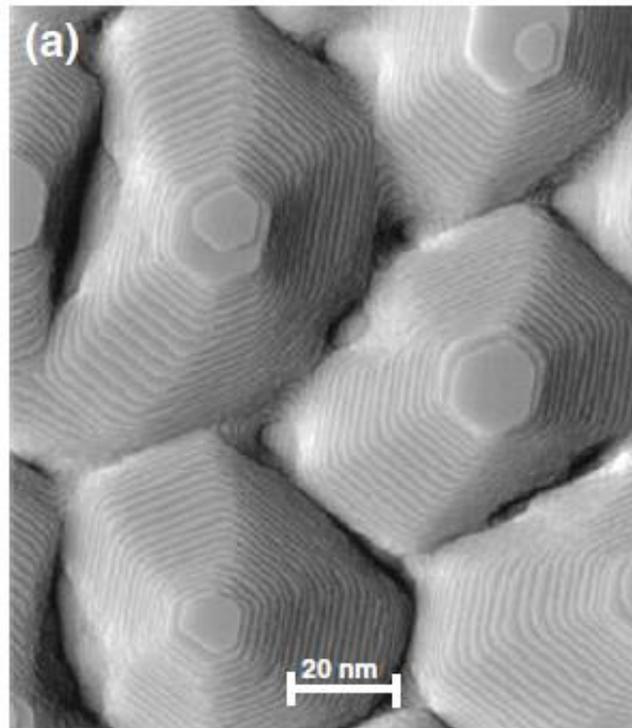


- Bei Diffusion über eine Abwärtsstufe kann die Barrierenhöhe zusätzlich zur Diffusionsbarriere E_{diff} um einen Betrag E_s erhöht sein
- zusätzliche Barriere führt zur Reflexion von Adatomen an einer Abwärtsstufe
→ Schwöbel Ehrlich Barriere

4.1 Homoepitaxie

Systeme mit Schwöbel Ehrlich Barriere

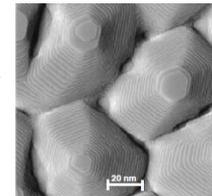
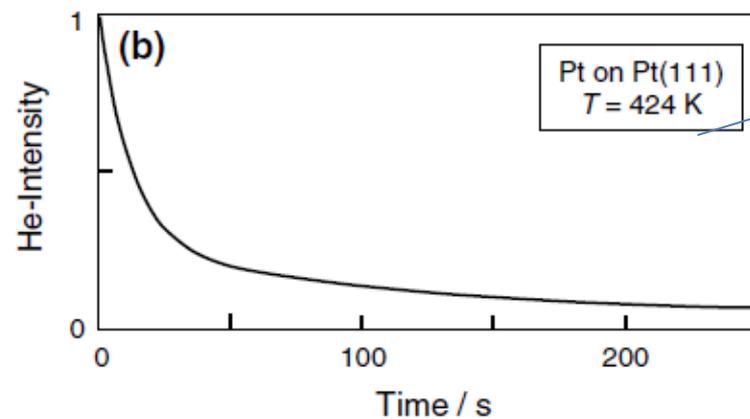
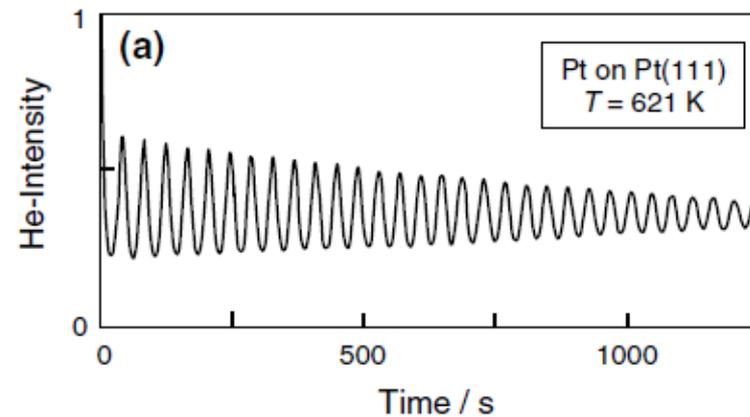
- Im Extremfall führt SE Barriere zu 3D Wachstum
- Pt(111) surface after deposition of 40 ML of platinum at 440 K in the presence of 1.9×10^{-9} mbar CO which increases the SE barrier



Poisson-Verteilung
für unendlich hohe
SE Barriere

Systeme mit Schwöbel Ehrlich Barriere

- Verhalten auch sichtbar in He Atom Scattering



4.1 Homoepitaxie

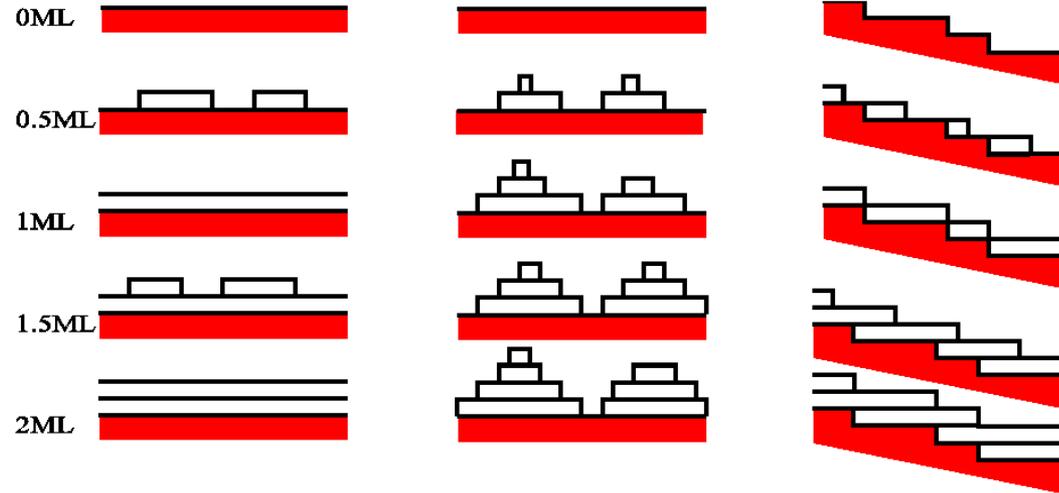
Wachstumsmodi

2D

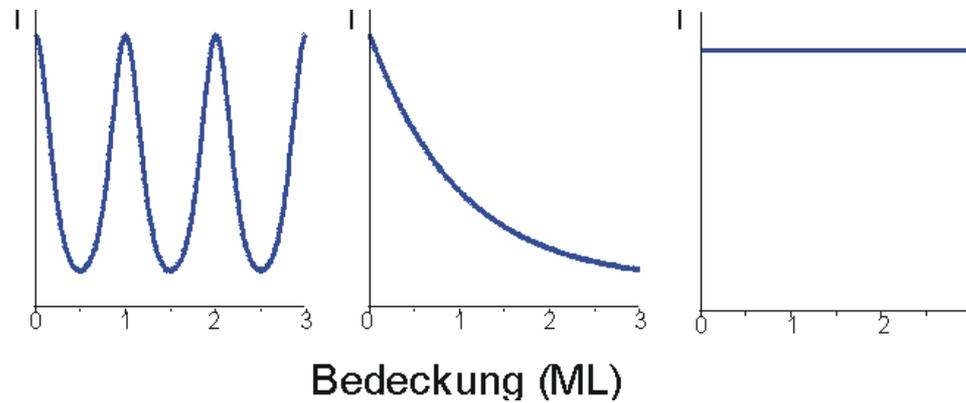
3D

Stufenwanderung

Realraum



Streumethode

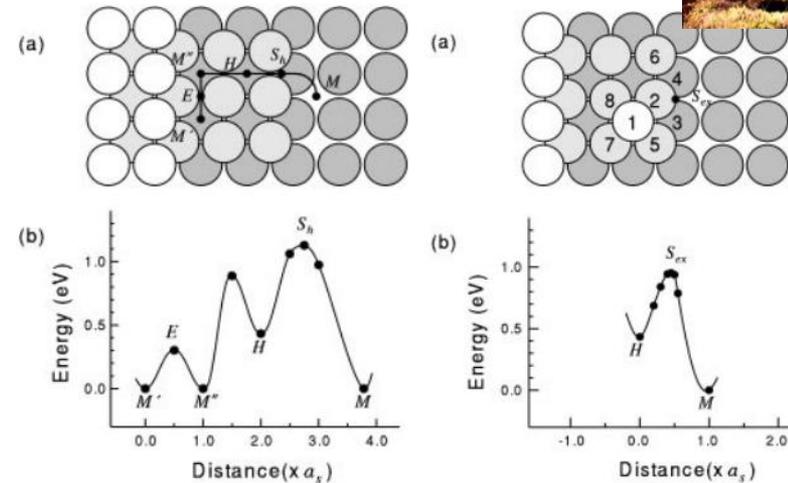
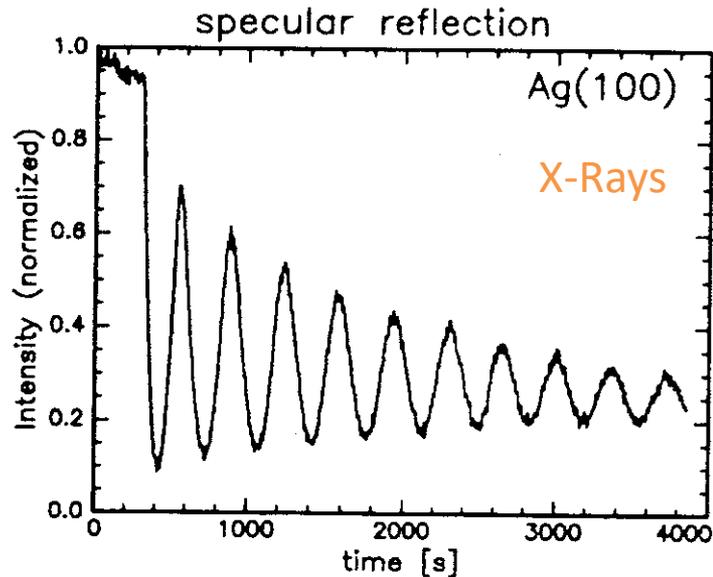


4.1 Homoepitaxie

Systeme ohne Schwöbel Ehrlich Barriere

Experiment

Theorie



- 2D-Wachstum mit anhaltenden Oszillationen
- oft bei Homoepitaxie auf fcc(100) und bcc(100)

- Ab-initio Rechnungen der Barrieren
 $E_{\text{diff}}=520$ meV
über die Kante: 700 meV ($E_s=180$ meV)
Austausch : 520 meV ($E_s=0$)

Van der Vegt et al., Surf. Sci. 330, 101 (1995)

Yu et al. Phys. Rev. Lett. 77, 1095 (1996)

Hier tritt Austausch an der Stufenkante auf. Vorsicht bei der Heteroepitaxie (Durchmischung!)

4.1 Homoepitaxie

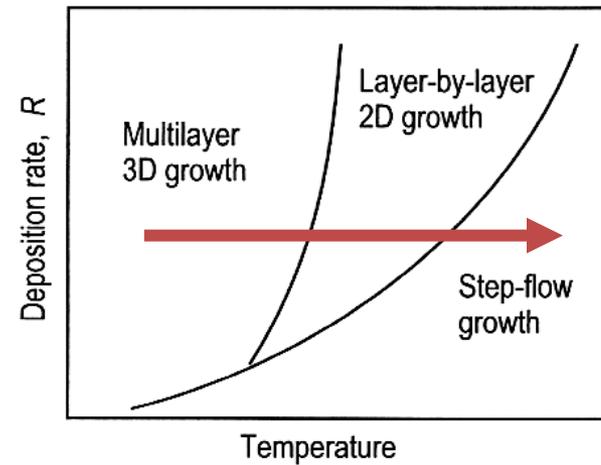
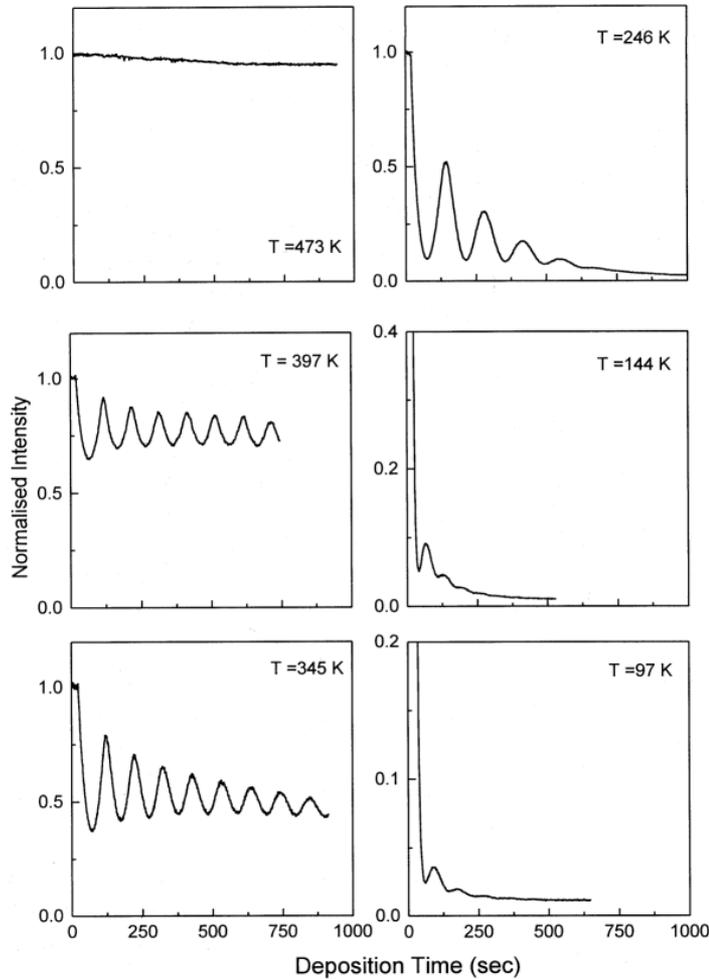
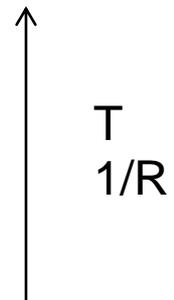
Cu/Cu(100)

- Keine oder niedrige Schwöbel-Ehrlich Barriere

Stufenwanderung

Lage-für-Lage Wachstum

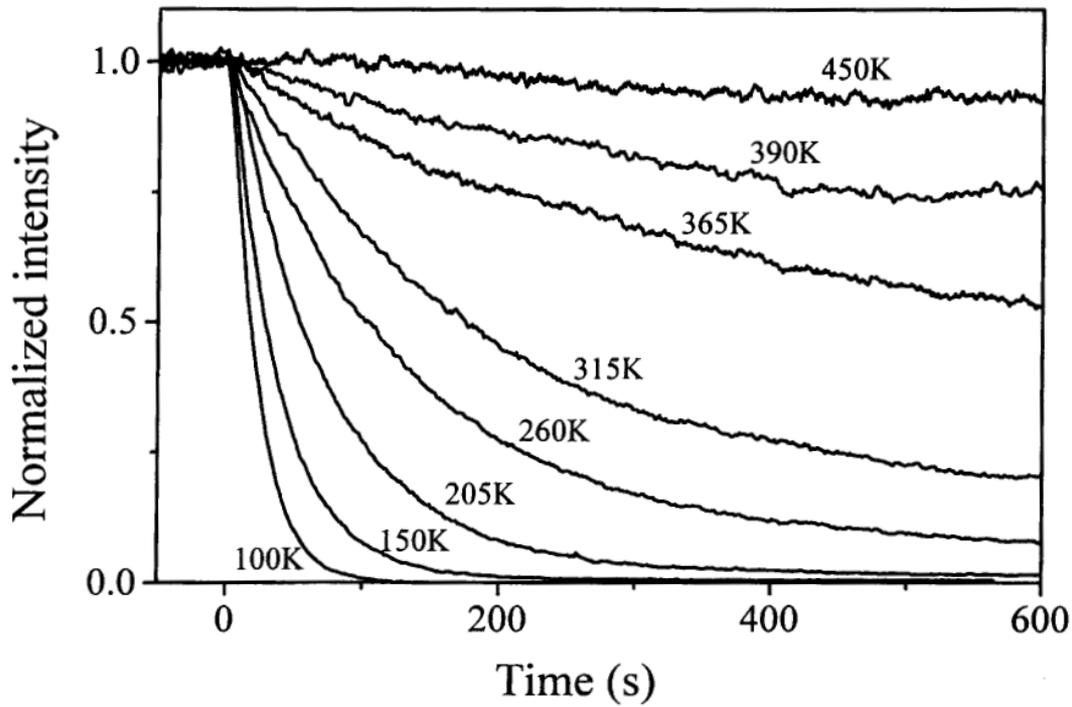
3D-Wachstum



4.1 Homoepitaxie

Systeme mit Schwöbel Ehrlich Barriere

Beispiel Cu/Cu(111)



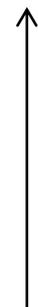
Wulfhekel et al. Surface Science 348 (1996) 227-242

oft bei fcc(111), bcc(110), hcp(0001)

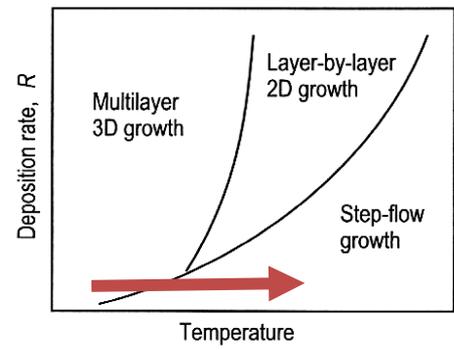
Signifikante Schwöbel-Ehrlich Barriere

Stufenwanderung

3D-Wachstum

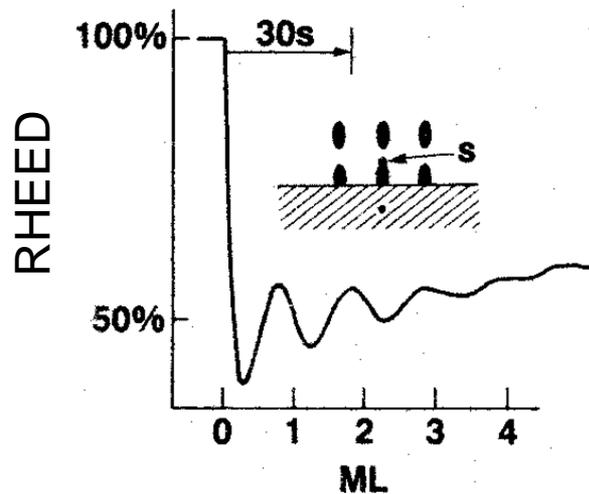


T
1/R



Transient Mobility (Umwandlung von Absorptionsenergie in Diffusionsenergie)

Aufdampfen von Cu auf Cu(100) bei 77K,
gemessen mit RHEED



W. F. Egelhoff, Jr. and I. Jacob Phys. Rev. Lett. **62**, 1577 (1989)

- Aufdampfen bei 77K Substrattemperatur
- bei 77K ist thermische Diffusion eingefroren (ein Sprung in 8 Jahren)
- statistisches 3D-Wachstum erwartet
- Elektronenbeugung (RHEED) zeigt Oszillationen
- 2D-Wachstum?
- Absorptionsenergie wird in Diffusionsenergie umgewandelt?

4.1 Homoepitaxie

Cu/Cu(100) $T=80\text{K}$, $\Delta t=0.2\text{ps}$

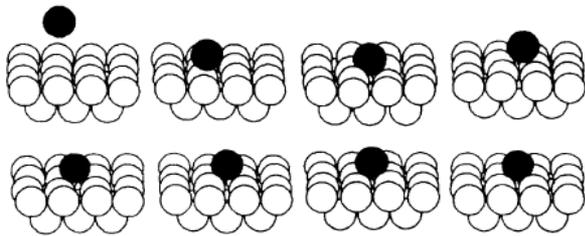


FIG. 5. Deposition dynamics for 0.25-eV Cu impinging vertically on a Cu(100) surface held at 80 K. Only a small subset of the moving substrate atoms is shown. The time increment (from left to right) is 0.20 ps.

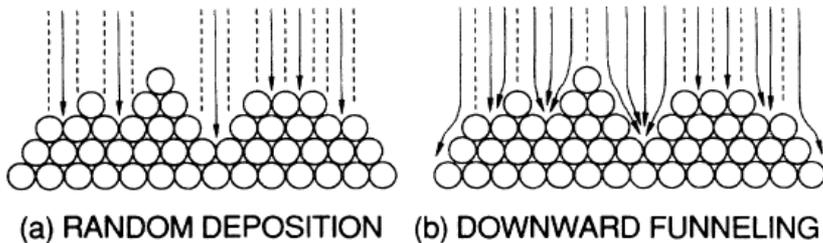


FIG. 1. Schematic of random immobile deposition (Ref. 7) vs downward funneling deposition dynamics.

- 80% der Energie wird schon bei erster Kollision an das Gitter übertragen
- ähnliche Resultate auch bei anderen Rechnungen zu anderen Metallen

Keine Transient Mobility!

Glättung durch fcc oder bcc Kristallstruktur
(keine Überhänge)

- fcc oder bcc Struktur bewirkt ein “Abrutschen” und vermeidet Überhänge
- erklärt Egelhoffs Resultate
- ideales, statistisches 3D-Wachstum existiert nicht

J. W. Evans, et al. Phys Rev B 41 8 (1990)

Literatur

Wachstumsmodi

Ibach S. 555-571

Fauster S. 48-49

Schichtwachstum

Fauster S. 42-49