

# Werner Naumann

## Darstellung der Forschungsaktivitäten

Kernpunkt der Arbeit ist die Ultrahochvakuumpräparation und Charakterisierung von InAs(100) Oberflächen. Von den vier grundsätzlich möglichen Präparationsverfahren – Überwachsen, Spalten, Sputtern und Desorbieren – wurden die beiden letzteren hinsichtlich der resultierenden Oberflächenstrukturen untersucht. Ziel der Untersuchungen war in beiden Fällen eine umfassende Oberflächencharakterisierung in Korrelation mit geeigneten Präparationsparametern. Das Spektrum der Untersuchungsmethoden umfaßte sowohl den gesamten Bereich der lateralen und vertikalen Struktur, als auch die quantitative chemische Zusammensetzung der Oberfläche. Um dies zu erreichen, standen innerhalb eines UHV-Anlagenverbundes mit den Präparationsanlagen ein STM, eine XPS/ARPES Analysechamber sowie eine in situ RHEED Einrichtung zur Verfügung. Ex vacuo fanden weitere Untersuchungen mit einem speziell für große Probenflächen konzipiertem AFM statt [2], welches bereits erfolgreich für Untersuchungen an MBE-gewachsenen GaAs(100)-Oberflächen eingesetzt wurde [1][3]. Nach einer abschließenden Querschnittspräparation wurde die vertikale Struktur im Oberflächenbereich mit einem TEM in Hochauflösung betrachtet.

Für die Sputterpräparation der InAs(100)-Wafer im Anlagenverbund wurde auf ECR Ionenquellen gruppeneigener Konstruktion zurückgegriffen, welche sich durch hohe Ionenstromdichten auszeichnen [4]. Dies war notwendig, da erste mit einer herkömmlichen Kaufmann-Quelle durchgeführte Messungen zeigten, daß im Falle zu geringer Stromdichten für die Entfernung der kompletten Kontaminationsschicht sehr hohe Ionenenergien größer 500 eV und lange Sputterzeiten erforderlich sind. Beides ist ungünstig für die kristallographische und chemische Struktur im Oberflächenbereich.

Im Falle der Ionenenergie äußert sich dies zum einen in einer Amorphisierung des Oberflächenbereiches bis zu einer mittleren Tiefe, die proportional zur Normalkomponente der effektiven freien Weglänge im Substrat ist. Durch die Absenkung der Ionenenergie unter 100 eV konnte diese Schicht auf weniger als 2 nm reduziert werden. Zum anderen steigt die Selektivität des Sputterprozesses mit der Ionenenergie. Hieraus resultiert die für hohe Energien gemessene Abweichung der Stöchiometrie im Oberflächenbereich von der des kristallinen Substrates. Unterhalb von 150 eV ist diese Abweichung nicht mehr nachweisbar.

Die Kombination von geringen Stromdichten, hohen Energien und langen Sputterzeiten führt im Fall von Inhomogenitäten zu Strukturausbildungen aufgrund der Winkelabhängigkeit der Abtragsrate. Diese waren bei Verwendung der Kaufmann-Quelle deutlich sichtbar. Ausreichend hohe Stromdichten unterdrücken diesen Effekt. Bei der Variation der Ionenenergie wurden für die ECR Quellen keine Strukturbildungen beobachtet. Die meßbare Rauigkeit der amorphen Oberflächen entspricht hierbei einer leicht gestuften kristallinen Oberfläche, unabhängig von der Ionenenergie. Der Abtrag erfolgt homogen über den gesamten Oberflächenbereich.

Eine untere Grenze des limitierenden Präparationsparameter, der Ionenenergie, konnte aus apparativen Gründen nicht bestimmt werden. Auf die indirekte Variation über den Einschubwinkel und die Ionenmasse wurde verzichtet.

Um Oberflächen ohne amorphe Grenzschicht zu präparieren wurde daher auf ein alternatives Verfahren zurückgegriffen.

Die Methode der thermischen Desorption ermöglicht unter geeigneten Prozessparametern die Aufrechterhaltung der kristallinen Struktur im gesamten Oberflächenbereich. Kritischer Punkt ist der relativ hohe Dampfdruck des Arsens, welcher bei Temperaturen oberhalb von etwa 450 °C zu Verarmungen führt. Zur Erzeugung eines ausreichend hohen Arsengegendrucks wurde die Thermodesorption in dem MBE-Teil der Verbundanlage durchgeführt. Selbst unter Arsengegendruck ist eine thermische Desorption aller Kontaminationen, besonders von langkettigen Kohlenstoffverbindungen, ohne eine Störung der Stöchiometrie und einer massiven Aufrauung der InAs-Oberfläche nicht möglich. Durch eine UV-Ozon forcierte Oxidation nativer InAs-Oberflächen kann eine aus reinen Arsen- und Indiumoxiden bestehende Grenzschicht weniger Nanometer Dicke direkt oberhalb des InAs-Substrates erzeugt werden [5]; die Rauigkeit der Grenzschicht zum kristallinen InAs bleibt äußerst gering. Bei dem folgenden Aufheizen der Probe desorbieren bis 350 °C sämtliche auf der Oxidschicht aufliegenden Kontaminationen. Oberhalb von 450 °C verbleiben nur noch In<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Nanokristallite in epitaktischer Orientierung auf dem InAs-Substrat. Flächendichte und mittlere Größe der In<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Kristallite wird durch die Oxidationszeit und die Aufenthaltszeit im Temperaturbereich zwischen 350 °C und 450 °C beeinflusst. In<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ist als Festkörper bis zu Temperaturen von 800 °C thermisch stabil. In der vorliegenden nanokristallinen Form desorbieren diese vollständig je nach Ausgangsgröße und Temperaturführung  $T(t)$  in einem Bereich von 510 °C bis 560 °C. Die simultan stattfindende Desorption des InAs-Substrates führt zu einer ausgeprägten dreidimensionalen Strukturierung der Oberfläche.

Für eine Optimierung des Desorptionsverlaufes in dem System In<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/InAs wurden zunächst empirische Energieparameter für die Abnahme der Kristallitdichte  $N(T, t)$  bestimmt. Da keine Interdiffusion während des Desorptionsprozesses zwischen den Kristalliten stattfindet, wurde hierfür eine Kinetik erster Ordnung nach Frenkel zugrunde gelegt. Mit den so gewonnenen Desorptionsparametern der Kristallite und entsprechenden Energieparametern der InAs-Desorption aus der Literatur konnte der effektive InAs-Lagenabtrag als Funktion von  $T(t)$  in ein Simulationssystem gekoppelter Differentialgleichungen eingebettet werden. Für eine Aufklärung der realen Desorptionskinetik reichen die direkten Strukturmessungen mittels STM, AFM, TEM und XPS nicht aus. Die hierzu erforderliche Beobachtung der Größen- und Formänderung der Kristallite als Funktion von  $T(t)$  ist weder über die flächenintegrale quantitative ARPES Messung, noch über die TEM Querschnittsproben zugänglich. In STM und AFM Bildern können die Dimensionen einzelner Kristallite durchaus gemessen werden; da das Bild einer Oberfläche für beide Verfahren aber eine Faltung aus der lokalen Topographie und der dreidimensionalen Geometrie des Sensors ist, weicht die abgebildete von der realen Kristallitform immer ab. Besonders groß werden die Fehler quantitativer SPM-Untersuchungen, wenn die Dimensionen der abzubildenden Strukturen den des Sensors nahe kommen, wie in dem vorliegenden Fall von Nanostrukturen. Eine Entfaltung der Bilddaten unter Annahme einer Sensorgeometrie ist nur wenig sinnvoll, da hieraus lediglich eine mögliche Maximalform der Strukturen hervorgeht, die Entfaltung ist nicht eindeutig. Um dennoch die vorliegenden quantitativen SPM Daten bestmöglich auszuwerten, wurde ein anderer Weg eingeschlagen. Hierzu wurde ausgenutzt, daß die Zahl der In<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Kristallite pro  $\mu\text{m}^2$  mittels SPM durchaus sehr genau bestimmt werden kann, ebenso das Gesamtvolumen des In<sub>2</sub>O<sub>3</sub>

pro  $\mu\text{m}^2$  über die ARPES-Messungen. Das hieraus berechenbare mittlere Kristallitvolumen stellt eine Kopplungsgröße der gesuchten Parameter (Durchmesser  $D$ , Höhen  $H$ , Form  $F$ ) dar. Durch Auswahl einer Desorptionskinetik sowie einer Ausgangsform ist somit die Entwicklung der Parameter mit der Zeit festgelegt:  $D(t)$ ,  $H(t)$ . Um zu bestimmen, welches die „richtige“ Kinetik und Form ist, wurden die berechneten Parameter der Kristallite ( $D(t)$ ,  $H(t)$ ) nach Faltung mit variablen Sensorgeometrien mit den gemessenen Werten verglichen.

Trotz der großen Zahl der benötigten Parameter war das Ergebnis dieser Abbildungssimulation erstaunlich eindeutig. Desorptionen an den Kristalliten sind ausschließlich die Stufenkanten; aus den Flächen ist bei den vorliegenden Temperaturen keine Desorption möglich. Dieses Ergebnis steht im Konsens mit der hohen thermischen Stabilität der geschlossenen  $\text{In}_2\text{O}_3$  Flächen in Festkörperform. Für die Ermittlung der molaren Energieparameter der  $\text{In}_2\text{O}_3$  Kristallitdesorption muß nun eine erweiterte Form der Frenkelgleichung gewählt werden, bei der die einfache Teilchenzahl  $n(t)$  durch eine Auswahlfunktion  $S(n, t)$  ersetzt wird. Diese beschreibt, ausgehend von der gefundenen Kinetik, die Zahl der Teilchen, die gerade desorptionsfähig sind - in diesem Fall also die Zahl der Teilchen an den Kanten. Durch die nun bekannte Variation der realen  $\text{In}_2\text{O}_3$  -Bedeckung, die bei dem ersten empirischen Ansatz zur Desorptionsbeschreibung noch überschätzt wurde, konnte ein verfeinertes Simulationsmodell für das Gesamtdesorptionssystem  $\text{In}_2\text{O}_3 / \text{InAs}$  erstellt werden. Hieraus resultieren Simulationsrechnungen, um die Oberflächenstrukturen in beliebigen Phasen der Thermodesorption vorausszusagen.

Die gewonnenen Erkenntnisse beider Präparationsverfahren sind auf andere indiumhaltige Verbindungshalbleiter übertragbar.

## Zusammenarbeit mit anderen Mitgliedern des Graduiertenkollegs

Vergleiche der präparierten InAs-Oberflächen mit MBE überwachsenen InAs-Wafern sowie Untersuchungen zur Wachstumseignung der präparierten Oberflächen wurde von

- Silke Bargstädt-Franke

tatkräftig unterstützt. Mit

- Jens Wiebe

fand ein Erfahrungsaustausch bezüglich des thermischen Aufdampfens von Niob auf reine InAs-Oberflächen im Vakuum statt. Weiterhin wurden alternative Depositionsverfahren, insbesondere die Sputterdeposition bei mittleren bis kleinen Ionenenergien, in Hinblick auf eine optimierte Keimbildungsphase diskutiert.

Bei der Bewertung der technischen Relevanz des Spaltverfahrens zur Herstellung idealer InAs-Oberflächen waren die praktischen Erfahrungen und Messungen von

- Christian Meyer

äußerst hilfreich. Hierdurch gelang die Deutung der anisotropen Struktureffekte der InAs(110)-Spaltflächen beim Brechen in  $[1\bar{1}0]$ - und  $[001]$ -Richtung.

Für die praktische Auswertung der Desorptionsmessungen konnten die komplexen thermodynamischen Wechselwirkungen, welche bei der Aufheizung und Temperaturmessung von Proben in UHV-Anlagen auftreten, mit Hilfe von

- Sven Willenbücher

weitgehend vereinfacht werden. Hierdurch wurde eine hinreichend genaue semiempirische Beschreibung der Temperaturfelder basierend auf reduzierten Parametersätzen möglich.

## Ausblick

Für die durch Sputtern präparierten Oberflächen ist die Auswirkung der Strukturstörung auf die elektronischen Eigenschaften noch ungeklärt.

Bei der Thermodesorption erhält man die besten Substratoberflächen bei einer Restbedeckung von etwa 10 %  $\text{In}_2\text{O}_3$ . Ein möglicher Einfluß der verbliebenen Kristallite auf die elektronische Transparenz der Grenzfläche in Kontakten konnte nicht erschöpfend untersucht werden.

Der Einfluß des anormalen Desorptionsverhaltens des Arsens an Stufenkanten auf die Strukturbildung konnte in den Simulationsrechnungen noch nicht berücksichtigt werden. Eine entsprechende Erweiterung wäre möglich, sobald der Literatur die benötigten Energieparameter entnommen werden können.

## Publikationen

Angehörige und Gäste des Graduiertenkollegs sind unterstrichen

- [1] T. Franke, P. Kreutzer, Th. Zacher, W. Naumann und R. Anton: *In Situ RHEED, AFM and REM investigations of the surface recovery of MBE-grown GaAs(001)-layers during growth interruptions*, Journal of Crystal Growth **193**, 451–459 (1998).
- [2] M. Hannß, W. Naumann und R. Anton: *Performance of a Tilt-Compensating Tube Scanner in Atomic Force Microscopy*, Scanning **20**, 501–507 (1998).
- [3] P. Kreutzer, W. Naumann Th. Zacher, T. Franke und R. Anton: *Comparative REM and AFM investigations of the surface recovery of MBE-grown GaAs(001)-layers during annealing*, Ultramicroscopy **76**, 107–114 (1999).
- [4] R. Anton, Th. Wiegner, W. Naumann, M. Liebmann und Chr. Klein: *Design and performance of a versatile, cost-effective microwave electron cyclotron resonance plasma source for surface and thin film processing*, Review of Scientific Instruments **71**, 1177–1180 (2000).
- [5] M. Schäfer, W. Naumann, T. Finnberg, M. Hannß, A. Dutschke und R. Anton: *UV/Ozone activated growth of oxide layers on InAs(100) surfaces and oxide desorption under arsenic pressure*, Applied Surface Science **158**, 147–158 (2000).

## Teilnahme an Tagungen

- „Rasterelektromikroskopische Untersuchungen von InAs(100) Oberflächen nach Oxid-desorption“  
W. Naumann, M. Schäfer, A. Dutschke, K. Oehlstrom, T. Finnberg, R. Anton  
Frühjahrstagung der DPG Arbeitskreis Festkörperphysik  
Regensburg 23.-27.03.1998  
Poster
- „UHV-Präparation von InAs(100)-Oberflächen“  
W. Naumann, M. Schäfer, A. Dutschke, M. Hannß, T. Finnberg, R. Anton

MBE Workshop  
Hamburg 21.-22.09.1999  
Poster

- „Untersuchung der Oxiddesorption von UV-Ozon behandelten InAs(100) Oberflächen“  
W. Naumann, M. Schäfer, A. Dutschke, M. Hannß, T. Finnberg, R. Anton  
MBE Workshop  
Hamburg 21.-22.9.1999  
Vortrag
- „Präparation und Charakterisierung von InAs(100)-Oberflächen mit STM,AFM und XPS/UPS“  
W. Naumann, M. Schäfer, T. Wiegner, M. Liebmann, R. Anton  
Frühjahrstagung der DPG Arbeitskreis Festkörperphysik  
Münster 23.-26.03.1999  
Poster

## Tagungsbeiträge als Mitautor

- „Rasterkraftmikroskopische Untersuchung von MBE - gewachsenen GaAs(100)-Oberflächen“  
T. Zacher, T. Franke, W. Naumann, M. Harsdorff  
Frühjahrstagung der DPG Arbeitskreis Festkörperphysik  
Münster 21-25.03.1997  
Poster
- „Untersuchung eines neuartigen Röhrenchenners zur Kompensation der sphärischen Verkippung in der Rastersondenmikroskopie“  
M. Hannß, W. Naumann, R. Anton  
Frühjahrstagung der DPG Arbeitskreis Festkörperphysik  
Regensburg 23.-27.03.1998  
Poster
- „Hochauflösende Transmissionselektronenmikroskopie an UV-Ozon oxidierten InAs(100) Oberflächen“  
A. Dutschke, M. Schäfer, A. Kornowski, M. Hannß, W. Naumann, R. Anton  
Frühjahrstagung der DPG Arbeitskreis Festkörperphysik  
Regensburg 23.-27.03.1998  
Poster
- „XPS/UPS-Untersuchungen zur Präparation oxidfreier InAs(100)-Oberflächen“  
T. Finnberg, M. Schäfer, W. Naumann, K. Oehlstrom, A. Dutschke, R. Anton  
Frühjahrstagung der DPG Arbeitskreis Festkörperphysik  
Regensburg 23.-27.03.1998  
Poster
- „Strukturelle Entwicklung MBE gewachsener GaAs(001)-Oberflächen während Wachstumsunterbrechungen“

T. Franke, P. Kreutzer, T. Zacher, W. Naumann, C. Heyn, R. Anton  
Frühjahrstagung der DPG Arbeitskreis Festkörperphysik  
Regensburg 23.-27.03.1998  
Poster

- „Untersuchungen zur Anisotropie des MBE-Wachstums von [001]-GaAs“  
K. Oehlstrom, T. Franke, M. Hannß, W. Naumann, R. Anton  
Frühjahrstagung der DPG Arbeitskreis Festkörperphysik  
Regensburg 23.-27.03.1998  
Poster
- „Untersuchung der Oxidation und Oxiddesorption von UV-Ozon behandelten InAs(100) Oberflächen“  
M. Schäfer, T. Finnberg, W. Naumann, M. Hannß, A. Dutschke, R. Anton  
Frühjahrstagung der DPG Arbeitskreis Festkörperphysik  
Regensburg 24.03.1998  
Vortrag
- „Design and Performance of a versatile, cost-effective microwave ECR Plasma Source for Surface and Thin Film Processing“  
R. Anton, Th. Wiegner, W. Naumann, M. Liebmann, Chr. Klein, Chr. Bradley  
8th international conference on ion source  
Kyoto-Japan 6.-10.09.1999  
Poster

## Eigene Vorträge im Rahmen des Graduiertenkollegs

- „Untersuchung zur Kinetik der Keimbildung und des Wachstums dünner, durch MBE erzeugter GaAs/AlGaAs Halbleiterschichten“  
1. Workshop des GrK nanostrukturierter Festkörper  
Timmendorf 13.-15.01.1997
- „Grenzflächenphysik : Ein Überblick“  
2. Workshop des GrK nanostrukturierter Festkörper  
St. Peter-Ording 12.-14.01.1998
- „STM- und AFM-Untersuchungen der Topographie von InAs(100)-Oberflächen“  
Ringvorlesung „Physik der Mikro- und Nanostrukturen“  
Hamburg 18.2.1998
- „Preparation and characterisation of InAs(100) surfaces“  
3. Workshop des GrK nanostrukturierter Festkörper  
Grömitz 25.-27.05.1999
- „Präparation und Charakterisierung von InAs(100) Oberflächen“  
Ringvorlesung „Physik der Nanostrukturen“  
Hamburg 12.04.2000