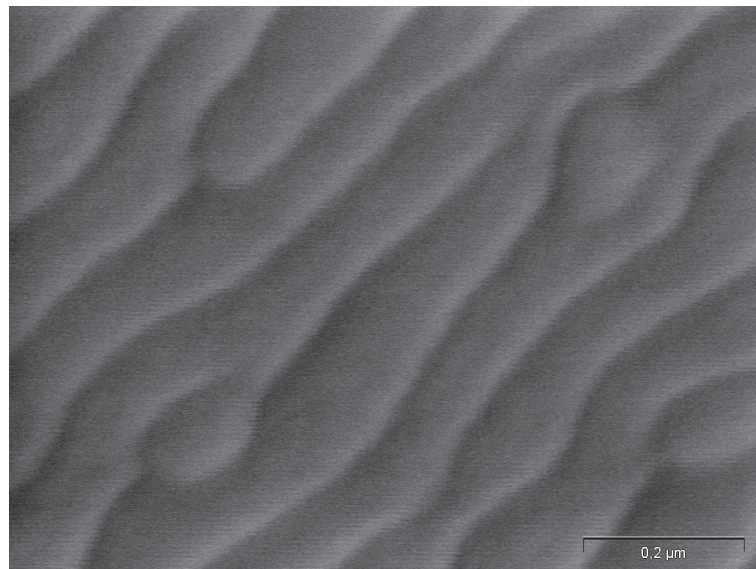


Untersuchung der Musterbildung auf ionenbestrahlten Oberflächen mit dem Rasterelektronenmikroskop

Westfälische Wilhelms-Universität Münster
Physikalisches Institut, Prof. Dr. Helmut Kohl
Examensarbeit im Fach Physik (Sek. II/I)
Katrin Pientka

März 2004

Untersuchung der Musterbildung auf ionenbestrahlten Oberflächen mit dem Rasterelektronenmikroskop



Westfälische Wilhelms-Universität Münster
Physikalisches Institut, IG I
Abteilung Elektronenmikroskopie
Examensarbeit in Physik (Sek.II/I)
vorgelegt von Katrin Pientka
März 2004

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Grundlagen	4
2.1	Modelle zur Entstehung von Ripples	5
2.1.1	Die Sputtertheorie nach Sigmund	5
2.1.2	Modell nach Bradley und Harper	7
2.1.3	Nichtlineare Modelle	9
2.2	Musterbildung mit Hilfe von Fremdatomen	13
3	Präparation und Untersuchung der Proben	15
3.1	Rasterelektronenmikroskop	15
3.2	Ionendünnungsanlage	19
4	Experimentelle Ergebnisse und Diskussion	22
4.1	Sekundäre Strukturen	23
4.2	Ripples	33
5	Zusammenfassung	40
	Literaturverzeichnis	43

Kapitel 1

Einleitung

Unter dem Begriff „Sputtern“ (engl.: to sputter: sprühen, zerstäuben) versteht man das Abtragen von Oberflächenatomen eines Festkörpers (Target) durch den Beschuss mit energiereichen Teilchen (Projektilen) wie Atomen, Molekülen oder auch Ionen. Die Technik des Sputterns bietet vielfältige Anwendungsmöglichkeiten. Beispielsweise werden auf diese Weise Oberflächen mit Edelgasionen gereinigt, durch gezielte Abtragung von Oberflächenschichten mit Hilfe von Ionenstrahlen und anschließender Analyse lassen sich auch Tiefenprofile eines Targets erstellen oder man kann mit Hilfe von Ionenstrahlen Fremdatome in Halbleiter implantieren [1]. In der Elektronenmikroskopie wird diese Technik zur Probendünnung eingesetzt.

Durch Ionenbestrahlung können auch selbstorganisierte periodische Strukturen auf Festkörperoberflächen entstehen, die für viele der oben genannten Anwendungen jedoch störend sind. Andererseits bieten solche Strukturen auch Anwendungspotentiale: Geordnete Strukturen könnten als Template beispielsweise für dünne magnetische Filme und damit als Datenspeicher mit sehr hoher Speicherdichte eingesetzt werden, da die Periodizität dieser Muster im Submikrometer- bis Nanometerbereich liegt [2]. Abhängig vom Einfallswinkel der Ionen auf das Target ergeben sich unter bestimmten Umständen sogenann-

te „Dots“ (engl.: dot: Punkt), die bei normalem und sehr steilem Einfallswinkel entstehen [3] oder auch wenn die Probe während des Sputterns rotiert wird [5]. Bei größere Einfallswinkeln können waschbrettartige Muster entstehen, die als Ripples bezeichnet werden. Vom Aussehen erinnern die Ripples an Muster im Wattenmeer, die durch Auf- und Abfließen des Wassers entstehen (Ozillationsripples) oder auch an wellenartige Dünenstrukturen in Wüsten [4]. Nun liegen die Größenordnungen dieser Strukturen im makroskopischen Bereich, auch sind die Entstehungsmechanismen völlig verschieden: Die dem Wasser bzw. Wind ausgesetzten Sandkörner werden direkt in Bewegung gesetzt, es handelt sich hier also um einen reinen Oberflächeneffekt. Beim Sputtern dagegen dringen die Projektilteilchen zuerst in den Festkörper ein, um dort ihre kinetische Energie durch Stoßkaskaden an die Targetatome zu verlieren. Am Ende einer solchen Stoßkaskade hat dann ein Oberflächenatom eventuell genügend Energie erhalten, um den Festkörper verlassen zu können.

Entscheidende und notwendige Voraussetzung für einen erfolgreichen Einsatz im technischen Anwendungsbereich ist eine kontrollierbare und reproduzierbare Herstellung dieser selbstorganisierten Nanostrukturen. Dazu müssen auch mögliche Störfaktoren erkannt werden.

So wurde über Strukturbildung auf Oberflächen berichtet, die auf gezielte Verunreinigung des Targets mit Fremdatomen während des Sputterprozesses zurückgeführt werden („sekundäre Strukturen“). Diese Art der Strukturbildung unterscheidet sich von der oben beschriebenen [17].

Im Rahmen dieser Arbeit werden ionenbeschossenen Oberflächen mit dem Rasterelektronenmikroskop untersucht. Verwendete Materialien waren im Wesentlichen Silizium, aber auch Germanium und Kupfer wurden als Targetmaterial eingesetzt. Gesputtert wurde mit einer Ionendünnungsanlage in einem Winkelbereich zwischen 55° und 75° , gemessen relativ zur Oberflächennormalen. Üblicherweise wird diese Anlage für die Probendünnung im TEM-Bereich

(TEM: Transmissionselektronenmikroskop) genutzt, dabei wird mit Argonionen gesputtert.

Neben den geordneten Ripplesstrukturen ergaben sich auch die erwähnten sekundäre Strukturen.

Kapitel 2

Grundlagen

In diesem Kapitel sollen die Modelle zu den ioneninduzierten Musterbildungsprozessen vorgestellt werden.

Zunächst soll auf die Sputtertheorie nach Sigmund eingegangen werden. Hierauf aufbauend entwickeln Bradley und Harper eine lineare Gleichung zur Beschreibung von ionenbeschossenen Oberflächen. Dabei wird das Zusammenwirken von zwei entgegengesetzt wirkenden Mechanismen, nämlich einen durch den Ionenbeschuss hervorgerufenen Erosionsmechanismus und einen durch Diffusionsprozesse hervorgerufenen Glättungsmechanismus, für die Strukturbildung verantwortlich gemacht. Um diese Strukturbildung besser beschreiben zu können, wird diese lineare Gleichung durch nichtlineare Terme ergänzt. In diesen Modellen wird von einem reinen Targetmaterial ausgegangen, d.h. Verunreinigungen werden vernachlässigt und liefern keinen Beitrag zur Strukturbildung.

Es gibt jedoch Berichte über eine ioneninduzierte Musterbildung, die auf gezielte Impfung des Targets mit Fremdatomen zurückgeführt wurde. Verunreinigungen des Targets können also im Fall der geordneten Nanostrukturen zu unerwünschten Effekten führen.

2.1 Modelle zur Entstehung von Ripples

2.1.1 Die Sputtertheorie nach Sigmund

Nach P. Sigmund [6, 7] kann man sich den Sputterprozess im Wesentlichen als Kollision der einfallenden Projektilteilchen (Ionen, Atome, Moleküle) mit den Targetatomen vorstellen: Das Projektil dringt in den Festkörper ein, wird gestreut und schließlich an den Targetatomen vollständig abgebremst. Durch die inelastische Stöße wird eine lineare Kollisionskaskade in Gang gesetzt. Die mittlere Eindringtiefe für Argonionen in Silizium beträgt beispielsweise für eine Ionenenergie von 5 keV laut SRIM-Simulation $92 \text{ \AA}$ [8]. Die im Folgenden vorgestellten Modelle zur Ripplebildung basieren auf dem Modell der linearen Stoßkaskaden, welches den Sputterprozess im Bereich mittlerer Ionenenergien zwischen 0,5 keV und 1 MeV beschreibt [9].

Nun trifft auf so eine Targetoberfläche nicht ein einzelnes Ion, sondern sehr viele. Für eine quantitative Beschreibung eines solchen statistischen Erosionsprozesses definiert man die Sputterausbeute Y (engl.: yield) als Verhältnis von emittierten Atomen zu einfallenden Ionen:

$$Y := \frac{\text{Anzahl der emittierte Atome}}{\text{Anzahl der einfallenden Ionen}}. \quad (2.1)$$

Ausgehend von einem amorphen bzw. polykristallinen, aber vor allem planen Target leitet Sigmund einen mathematischen Ausdruck für die Sputterausbeute Y her. Diese Größe ist unter anderem abhängig vom Einschusswinkel der Ionen. So nimmt die Sputterausbeute mit wachsendem Winkel relativ zur Oberflächennormalen zu, erreicht ein Maximum und fällt bei sehr großen Winkeln aufgrund der erhöhten Reflexion wieder ab.

Der tatsächlich viel kompliziertere Kollisionsprozess lässt sich nach Sigmund durch eine dreidimensionale gaußförmige Energieverteilung der durch die Io-

nen deponierten Energie beschreiben (Abb. 2.1). Das einfallende Ion dringt dabei in das Target ein und verliert beim Durchlaufen der mittleren Eindringtiefe a seine kinetische Energie. Vom Punkt P aus lässt sich die Verteilung der deponierten Energie dann als gaußförmig mit der Standardabweichung σ in Richtung des einfallenden Ionenstrahls und mit den Standardabweichungen μ senkrecht dazu beschreiben.

Sigmunds Modell ist in der Lage, den lokalen Prozess der Erosion zu be-

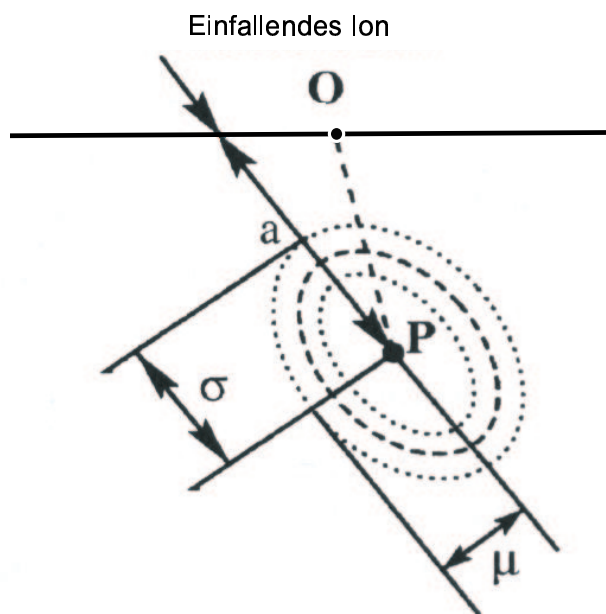


Abbildung 2.1: Das einfallende Ion dringt in das Target ein und verliert nach Durchlaufen der mittleren Eindringtiefe a seine kinetische Energie. Vom Punkt P aus lässt sich die Energieverteilung als gaußförmig mit den Standardabweichungen σ und μ beschreiben (aus [10]).

schreiben. Die Entwicklung der gesamten Oberflächenmorphologie kann dieses Modell nicht erklären, denn hier werden keine lokalen Oberflächenrauigkeiten oder Diffusionsprozesse berücksichtigt.

2.1.2 Modell nach Bradley und Harper

Einen recht erfolgreichen Ansatz für die Erklärung von Ripplemorphologien stammt von R. M. Bradley und J. M. E. Harper [11]. Sie bestimmen die Sputerausbeute in Abhängigkeit von der lokalen Oberflächenkrümmung basierend auf Sigmunds Modell. So werden bei senkrechtem oder fast senkrechtem Einfall

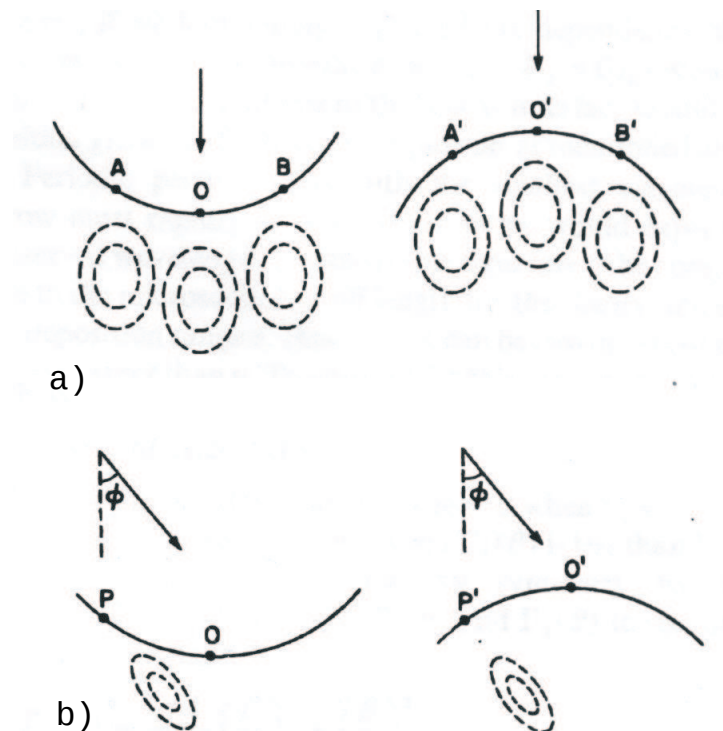


Abbildung 2.2: a) Für normalen Einfall oder kleine Einfallswinkel werden „Täler“ schneller erodiert als „Berge“, für größere Einfallswinkel dreht sich der Sachverhalt um, Abb. b). (aus [11])

„Täler“ schneller erodiert als „Berge“. Dies lässt sich an Abb. 2.2 anschaulich verstehen: Der Energiebeitrag, der in O bzw. O' deponiert wird, stammt nicht nur von Ionen, die in O bzw. O' auftreffen, sondern auch aus der Umgebung (gaußförmige Energieverteilung!). Auf Abb. 2.2 a) bezogen heißt das, es gibt auch Energiebeiträge von „Ioneneinschlägen“ in den Punkten A, B bzw. A',

B'. Argumentiert man geometrisch, erkennt man, dass der Energiebeitrag in O von den Punkten A, B größer ist als der Energiebeitrag in O' von den Punkten A', B'. Ein höherer Energiebeitrag bedeutet aber auch gleichzeitig eine erhöhte Sputterwahrscheinlichkeit.

Für sehr große Einfallswinkel (relativ zur Oberflächennormalen) dreht sich der Sachverhalt um: Der Energiebeitrag vom Punkt P zu O ist zwar immer noch größer als der Energiebeitrag vom Punkt P' zu O', allerdings ist die Zahl der Ionen, die am Punkt P' auftrifft größer als am Punkt P.

Bradley und Harper gehen nun von dieser mikroskopischen Beschreibung über zu einer Kontinuumsbeschreibung auf mesoskopisches Niveau: Ausgehend von dem Modell nach Sigmund leiten sie in linearer Näherung eine Bewegungsgleichung für die Höhenfunktion $h(x, y, t)$ für die Oberfläche her. Die Höhenfunktion ist abhängig von der Zeit t . Die Koordinaten x und y beschreiben die zweidimensionale Oberfläche, wobei die x -Richtung parallel zum projizierten Ionenstrahl steht, die y -Richtung senkrecht dazu.

Die sich daraus ergebende Ripplewellenlänge ist im Vergleich zu den experimentell beobachteten Ripples zu klein. Um diesen Fehler zu korrigieren, fügen Bradley und Harper noch einen Term, der die thermisch bedingte Oberflächendiffusion mit $-K\nabla^4 h$ berücksichtigt, hinzu. Der exponentielle Zusammenhang der Oberflächendiffusion steckt in der temperaturabhängigen Konstante K . Damit werden zwei entgegengesetzte Mechanismen, nämlich zum einen der Erosionsprozess und zum anderen die Oberflächendiffusion als Glättungsmechanismus, für die Entstehung der Ripples verantwortlich gemacht. Die Bradley Harper Gleichung lautet demnach [10] :

$$\frac{\partial h}{\partial t} = -v(\theta) + \nu_x(\theta) \frac{\partial^2 h}{\partial x^2} + \nu_y(\theta) \frac{\partial^2 h}{\partial y^2} - K \nabla^4 h. \quad (2.2)$$

Der erste Term $-v(\theta)$ in der Gleichung ist die Erosionsrate einer planen unge-

störten Oberfläche nach Sigmund. Die Koeffizienten ν_x und ν_y stehen für eine effektive Oberflächenspannung, die durch den Erosionsprozess induziert wird. Sie sind dabei abhängig von Größen, die den Ionenstrahl beschreiben, wie z.B. Ionenenergie, Ionenfluss, Art der Ionen, dem Einfallswinkel des Ionenstrahls und dem Material [12]. Außerdem werden durch ν_x und ν_y die Wellenlänge der Ripples und ihre Orientierung bestimmt, deren Wellenvektoren entweder parallel zur Ionenstrahlrichtung für kleinere Einfallswinkel (relativ zur Oberflächennormalen), oder senkrecht dazu für größere Winkel ausgerichtet sind. Aus Gleichung 2.2 folgt für die Wellenlänge l_c :

$$l_c = 2\pi \sqrt{\frac{2K}{|\nu|}} \quad (2.3)$$

ν ist der betragsgrößte Koeffizient aus ν_x und ν_y . Die Theorie von Bradley und Harper macht also Aussagen über Ripplewellenlänge und -orientierung. Außerdem wird in diesem linearen Modell ein zeitlich exponentielles Wachstum der Rippleamplitude vorhergesagt. In [13] wird ein exponentielles Wachstum der Amplitude beobachtet, jedoch tritt für längere Sputterzeiten eine Sättigung des Amplitudenwachstums ein. Diese Sättigung des Amplitudenwachstums kann durch nichtlineare Terme in den erweiterten Modellen beschrieben werden. Auch kann das Modell nach Bradley und Harper keine Ripplebildung in Bereichen niedriger Temperaturen erklären, in denen die thermisch bedingte Oberflächendiffusion keine Rolle mehr spielt.

2.1.3 Nichtlineare Modelle

In [14] gehen Cuerno und Barabási über das lineare Modell von Bradley und Harper hinaus. Genau wie Bradley und Harper gehen sie von der Sputtertheorie nach Sigmund aus (Abschnitt 2.1.1), berücksichtigen in ihrer Näherung aber nichtlineare Terme bis zur zweiten Ordnung. Hinzu kommen noch der Term

$-K\nabla^4 h$, der die thermisch bedingte Oberflächendiffusion berücksichtigt, sowie ein Rauschterm $\eta(x, y, t)$, der aufgrund des statistischen Charakters des Sputterprozesses berücksichtigt werden muß:

$$\begin{aligned} \frac{\partial h}{\partial t} = & -v_0 + \gamma \frac{\partial h}{\partial x} + \nu_x \frac{\partial^2 h}{\partial x^2} + \nu_y \frac{\partial^2 h}{\partial y^2} + \frac{\lambda_y}{2} \left(\frac{\partial h}{\partial y} \right)^2 + \frac{\lambda_x}{2} \left(\frac{\partial h}{\partial x} \right)^2 \\ & -K\nabla^4 h + \eta(x, y, t). \end{aligned} \quad (2.4)$$

Die Koeffizienten ν_x und ν_y sind die gleichen Koeffizienten wie bei Bradley und Harper in Gl. 2.2. Auch v_0 hat die gleiche Bedeutung wie $\nu(\theta)$ in Gl. 2.2.

λ_x und λ_y charakterisieren die krümmungsabhängige Erosionsrate. Der Koeffizient γ spielt für die charakteristische Oberflächenmorphologie keine Rolle, der zweite Term steht für die gleichförmige Bewegung der Oberflächenmerkmale entlang der x-Richtung [9, 10]. Gleichung 2.4 ist eine anisotrope Form der Kuramoto-Sivashinsky Gleichung, der noch zusätzlich ein Rauschterm hinzugefügt wurde [14].

Auch diese Gleichung 2.4 sagt ähnlich wie bei Bradley und Harper eine Rippelbildung entlang der projizierten Ionenstrahlrichtung und senkrecht dazu voraus. Für die Wellenlänge ergibt sich der gleiche (temperaturabhängige) Zusammenhang wie in Abschnitt 2.1.2.

In Experimenten bei [15] wird beobachtet, dass die Wellenlänge ab einer Targettemperatur von 55° C während des Sputterns konstant bleibt. Diese Beobachtungen lassen sich durch einen ioneninduzierten Diffusionsmechanismus erklären.

Makeev und Barabási diskutieren diese ioneninduzierte effektive Oberflächendiffusion in [9]. Der Ausgangspunkt ihrer Gleichung ist wieder die Erosionsgeschwindigkeit nach Sigmund. In ihrer Näherung werden Terme bis hin zur vierten Ordnung berücksichtigt:

$$\begin{aligned} \frac{\partial h}{\partial t} = & -v_0 + \gamma \frac{\partial h}{\partial x} + \nu_x \frac{\partial^2 h}{\partial x^2} + \nu_y \frac{\partial^2 h}{\partial y^2} + \frac{\lambda_x}{2} \left(\frac{\partial h}{\partial x} \right)^2 + \frac{\lambda_y}{2} \left(\frac{\partial h}{\partial y} \right)^2 \\ & - D^I_x \frac{\partial^4 h}{\partial x^4} - D^I_y \frac{\partial^4 h}{\partial y^4}. \end{aligned} \quad (2.5)$$

Die Koeffizienten D^I_x und D^I_y sind abhängig von der Ionenenergie, dem Ionenfluss und dem Einfallswinkel. Sie repräsentieren die ioneninduzierte Oberflächendiffusion. Allerdings ist dieser Mechanismus nicht als Massentransport entlang der Oberfläche wie bei der thermisch induzierten Diffusion zu verstehen. Vielmehr werden abhängig von der lokalen Oberflächenmorphologie verschiedene Erosionsraten erwartet. Betrachtet man das System in dem mit der durchschnittlichen Oberflächenhöhe mitbewegten Koordinatensystem, erscheint dieser Prozess als eine Reorganisation der Oberfläche, ähnlich wie bei einem Diffusionsmechanismus. Abhängig vom Vorzeichen der Koeffizienten D^I_x und D^I_y wird diese Art der Oberflächendiffusion unterstützt bzw. unterdrückt [9]. Nun können D^I_x und D^I_y vergleichbare Werte wie K aus Gleichung 2.2 oder Gleichung 2.4 annehmen, damit bei entsprechendem Vorzeichen den gleichen Effekt wie die thermische Oberflächendiffusion bewirken und eine Ripplebildung unterstützen [9].

Für die Ripplewellenlänge ergeben sich die Ausdrücke $l^I_x = 2\pi\sqrt{D^I_x/|\nu_x|}$ bzw. $l^I_y = 2\pi\sqrt{D^I_y/|\nu_y|}$.

In [10] werden diese Modelle erweitert, indem der Erosionsprozess ähnlich wie in [9] mit Termen bis zur vierten Ordnung berücksichtigt wird und zusätzlich die thermisch bedingte Oberflächendiffusion und der Rauschterm aus [14] mit einbezogen werden.

Um nun Aussagen über die Oberflächenmorphologien machen zu können, müssen diese Gleichungen numerisch integriert und simuliert werden. Demnach lässt sich die Entwicklung der Oberfläche nach Park et al. zeitlich trennen [16, 10]: Für kleine Zeiten ist die Oberflächenmorphologie durch die linearen

Terme bestimmt. Erst nach Überschreiten einer kritischen Zeit t_c überwiegen die nichtlinearen Terme. Abhängig von den Vorzeichen der vom Einfallswinkel abhängigen Koeffizienten λ_x und λ_y kann die geordnete Ripplestruktur verschwinden, oder es kann ein Übergangsgebiet entstehen, in dem die Ripples verschwinden und nach Überschreiten einer zweiten kritischen Zeitgrenze neue Ripplestrukturen entstehen. Diese sind jedoch nicht mehr senkrecht oder parallel zur projizierten Ionenstrahlrichtung orientiert, sondern sind um einen Winkel dazu gedreht („rotated ripples“). In Abb. 2.3 werden verschiedene Oberflächenmorphologien in Abhängigkeit vom Einschusswinkel θ und von der auf die laterale Breite der Gaußverteilung der deponierten Energie normierten mittleren Eindringtiefe a_σ der Ionen in Phasendiagrammen für den linearen Fall dargestellt. Dabei wird zwischen den dominierenden Diffusionsmechanismen unterschieden.

So ergeben sich für den linearen Fall und bei hohen Targettemperaturen ähnlich wie bei Bradley und Harper zwei Regionen: Für kleinere Einfallswinkel ergibt sich eine Orientierung der Ripples senkrecht zum auf die Oberfläche projizierten Ionenstrahl (d.h. der Wellenvektor ist parallel zum projizierten Ionenstrahl). Ändern sich bestimmte Koeffizienten (in diesem Fall von $\nu_x < \nu_y < 0$ nach $\nu_x > \nu_y$), tritt eine Bifurkation auf und die Orientierung der Ripples wird nun parallel zum projizierten Ionenstrahl erwartet.

Kann man die thermische Oberflächendiffusion bei niedrigen Targettemperaturen vernachlässigen und geht man nur von einem ioneninduzierten Diffusionsmechanismus aus, ergibt sich eine dritte Übergangsregion. Um Aussagen über das dortige Verhalten machen zu können, reicht die Taylorentwicklung bis zur vierten Ordnung bei der Beschreibung des Erosionsprozesses nicht aus [10]. Über diese Region macht die Theorie also keine klaren Aussagen.

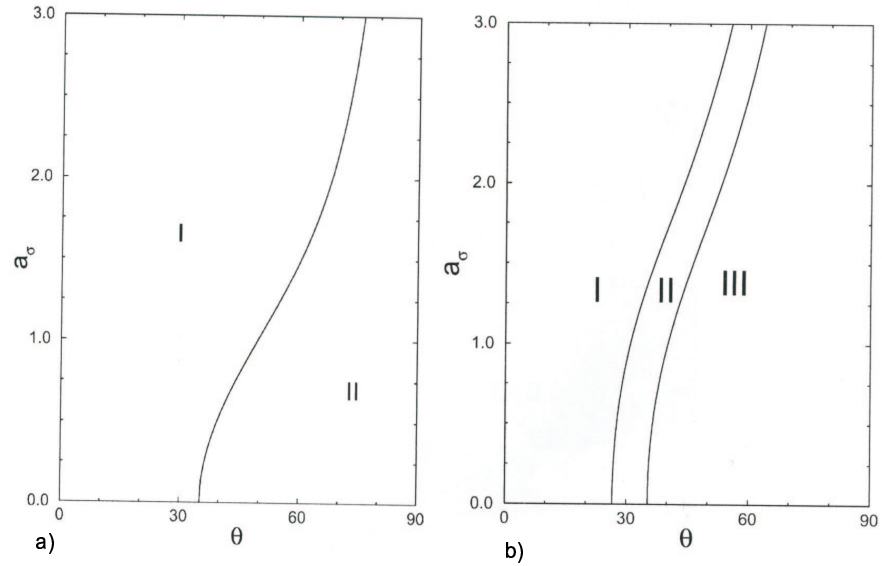


Abbildung 2.3: a) Phasendiagramm für den linearen Fall bei hohen Temperaturen. In Region I wird eine Rippelmorphologie senkrecht zur projizierten Ionenstrahlrichtung erwartet, in Region II soll sich die Orientierung der Ripples um 90° drehen. b) Für den linearen Fall bei niedrigen Temperaturen kommt noch eine dritte Übergangsregion (hier mit II bezeichnet) hinzu, über das Verhalten in dieser Region ist wenig bekannt (aus [10]).

2.2 Musterbildung mit Hilfe von Fremdatomen

Rossnagel, Robinson und andere berichten in [17] bis [22] über Strukturbildungsprozesse durch Sputtererosion bei gleichzeitigem Impfen des Targets mit Fremdatomen. Die dabei entstehenden Strukturen reichen von zapfen- bzw. kegelartigen Formen über wellenartige Muster mit Periodizitäten in der Größenordnung des Wellenlängenbereichs des sichtbaren Lichts bis zu fadenartigen Gebilden. Da in unserem Fall diese Strukturen nicht beabsichtigt waren, werden sie im Folgenden unter dem Begriff „sekundäre Strukturen“ zusammengefasst.

Hintergrund der oben beschriebenen Untersuchungen war, die Absorption von Oberflächen gezielt beeinflussen zu können. So wurden Strukturbildungsprozesse in Abhängigkeit von Targetmaterial, Impfatomen, Impfrate, Substrattemperatur und diversen Sputterbedingungen (Ionenfluss, -dosis, -energie, usw.) untersucht.

Für auswertbare und reproduzierbare Resultate werden also möglichst definierte Versuchsbedingungen benötigt, wie z.B. eine homogene Impfung mit Fremdatomen. In [17] bis [19] wird das Impfmateriel beispielsweise so in den Ionenstrahl gehalten, dass 0,2% bis 3% des Strahls aus Impfmateriel besteht und ein ständiger Nachschub an Fremdatomen sichergestellt ist.

In [22] wird die Oberflächendiffusion der Fremdatome für die Musterbildung verantwortlich gemacht: So bilden die diffundierenden Fremdatome auf der Oberfläche Cluster. Dies wiederum sorgt für eine lokal variierende Sputterausbeute, was schließlich zur Ausbildung einer Oberflächenstruktur führt. Die mittleren Abstände der Cluster untereinander sind dabei temperaturabhängig und unterhalb einer kritischen Temperatur findet keine Clusterbildung mehr statt.

Trotzdem werden noch kegelartige Formen bei niedrigen Temperaturen unterhalb dieser kritischen Temperatur beobachtet, die auf anfängliche Oberflächenrauigkeiten zurückgeführt werden [19].

Auch das Wiedereinfangen von gesputtertem Material und die Reflexion der Ionen könnte die Strukturbildung beeinflussen [19, 17].

Im Allgemeinen sind für die Entstehung dieser sekundären Strukturen Keime oder Keimkanten notwendig [17, 21].

Kapitel 3

Präparation und Untersuchung der Proben

3.1 Rasterelektronenmikroskop

Die Untersuchung der gesputterten Proben erfolgte mit Hilfe eines Niederspannungsrasterelektronenmikroskops (LV SEM: Low Voltage Scanning Electron Microscope) vom Typ Hitachi S 4000. In Abb. 3.1 findet sich eine schematische Darstellung. Die Bildentstehung erfolgt in einem SEM mit Hilfe eines Elektronenstrahls, der über die Probe gerastert wird und einer dazu synchron abgerasterten Fernsehröhre. Die Primärelektronen treffen mit einer kinetischen Energie zwischen 0,5 und 30 keV auf die Probe und werden im sogenannten Wechselwirkungsvolumen gestreut, das in Abb. 3.2 skizziert ist. Dabei erzeugen sie unter anderem Sekundärelektronen (SE). Das Anregungsvolumen der SE für mittlere Atomgewichte hat etwa einen Durchmesser von $0,1\,\mu\text{m}$ [24]. Ihre Energie beträgt definitionsgemäß weniger als 50 eV, Elektronen dagegen, die eine Energie von mehr als 50 eV haben, werden als Rückstreuelektronen (RE) bezeichnet. Die Sekundärelektronen werden vom positiven Potential des Detektors abgesaugt, treffen dort auf einen Szintillator und erzeugen dort ein

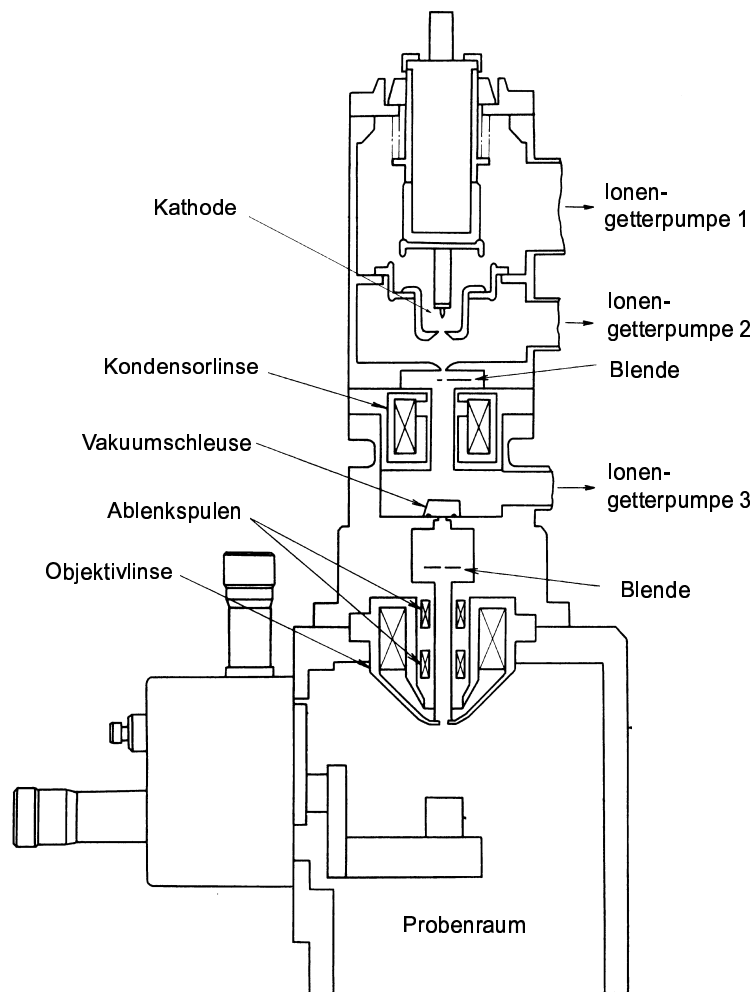


Abbildung 3.1: Schematische Darstellung des Hitachi S 4000. Der Elektronenstrahl wird mit Hilfe einer Feldemissionskathode erzeugt. Das dazu nötige Ultrahochvakuum wird durch die Ionengetterpumpen erreicht. Der Elektronenstrahl wird durch die Blenden und die magnetischen Linsen fokussiert. Die Ablenkspulen sorgen für die Rasterung des Elektronenstrahls auf der Probe. Der Probenraum wird durch eine Rotations- und Öldiffusionspumpe (nicht eingezeichnet) evakuiert (aus [23]).

Lichtsignal. Dieses wird mit Hilfe eines Photomultipliers in ein verstärktes elektrisches Signal umgewandelt. Der Bildkontrast, der schließlich zum Gesamteindruck des Bildes führt, kommt durch verschiedene Effekte zustande.

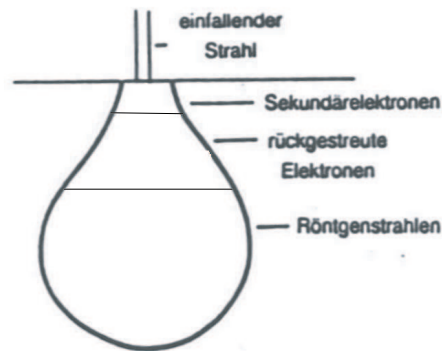


Abbildung 3.2: Schematische Darstellung des Wechselwirkungsvolumens. Die Sekundärelektronen stammen aus einem relativ kleinen Volumen (obere Linie), die Rückstreuungselektronen stammen ungefähr aus der halben Tiefe des Wechselwirkungsvolumens (untere Linie). Das Anregungsvolumen für Röntgenstrahlung ist fast so groß wie das Wechselwirkungsvolumen (aus [24]).

Der wohl wichtigste Kontrasteffekt bei der Abbildung der Oberflächentopographie wird durch Flächenneigung verursacht: Das Austrittsvolumen der SE wird mit zum Elektronenstrahl geneigter Oberfläche größer, so dass mehr Elektronen die Probe verlassen können. Das führt zu einer erhöhten Bildhelligkeit (Abb. 3.3). Ähnlich führt auch eine Vergrößerung des Austrittsvolumens an Kanten oder durchstrahlbaren Objektteilen zu einer höheren Intensität des Detektorsignals, so dass solche Objektstrukturen übertrieben hell erscheinen. So eine SE-Aufnahme macht im Allgemeinen daher keine eindeutige Aussage über die Oberflächenhöhe wie z.B. Aufnahmen von einem Rastertunnelmikroskop. Prinzipiell lässt sich mit einem SEM auch die Oberflächenhöhe bestimmen. Bei diesem Verfahren, auf das hier nicht weiter eingegangen wird, sind

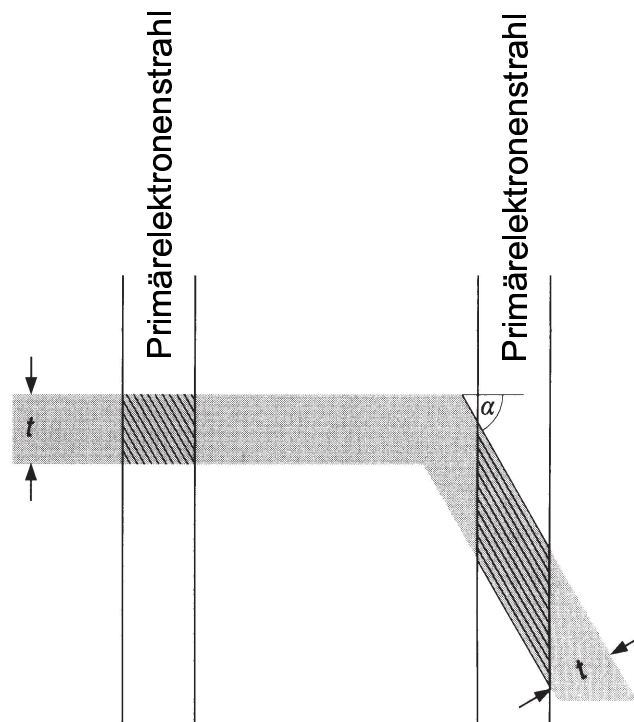


Abbildung 3.3: Flächenneigungskontrast: SE, die in der dünnen Oberflächenschicht der Dicke t erzeugt werden, können die Probe verlassen und zum Signal beitragen. Das Austrittsvolumen ist in der Zeichnung schraffiert dargestellt. Trifft der Elektronenstrahl auf eine geneigte Fläche, so ist das Austrittsvolumen größer als bei einer planen Fläche und es können mehr SE aus der Probe austreten. Somit erscheinen geneigte Flächen heller. (aus [25])

jedoch zwei Detektoren nötig.

Durch Wechselwirkungen des Primärstrahls mit der Probe entsteht zusätzlich charakteristische Röntgenstrahlung, die mit einem entsprechenden EDX-Detektor (Energy Dispersive X-Ray) nachgewiesen werden kann. So lassen sich auch Materialuntersuchungen mit einem SEM durchführen. Nun ist das Anregungsvolumen für die Röntgenstrahlung fast genauso groß wie das Wechselwirkungsvolumen, so dass eine bessere Auflösung als $1\mu\text{m}^3$ nicht möglich ist [24]. Demnach machen Materialuntersuchungen mit dieser Methode nicht so

sehr Aussagen über die Oberfläche, sondern über oberflächennahe Regionen. Das Hitachi S 4000 ist nicht mit einem EDX-Detektor ausgestattet. Für EDX-Untersuchungen wurde daher ein Jeol SM 6300 F benutzt.

3.2 Ionendünnungsanlage

Die Oberflächen wurden mit einer Ionendünnungsanlage der Firma Gatan (Modell 600, DuoMill) präpariert. Die Ionendünnungsanlage wird in der Regel zur Präparation von TEM-Proben eingesetzt. Dabei lassen sich die Präparate von oben und unten mit zwei Ionenkanonen gleichzeitig dünnen. In unserem Fall ist das Sputtern von einer Seite ausreichend. Außerdem lässt sich der Winkel zwischen Ionenstrahl und Probe zwischen 50° und 81° (gemessen von der Oberflächennormalen) variieren.

Die Beschleunigungsspannung ist bis zu 10 kV, der Ionenstrom („gun current“) bis 2 mA regelbar. Die Abb. 3.4 zeigt schematisch den Aufbau einer solchen Io-

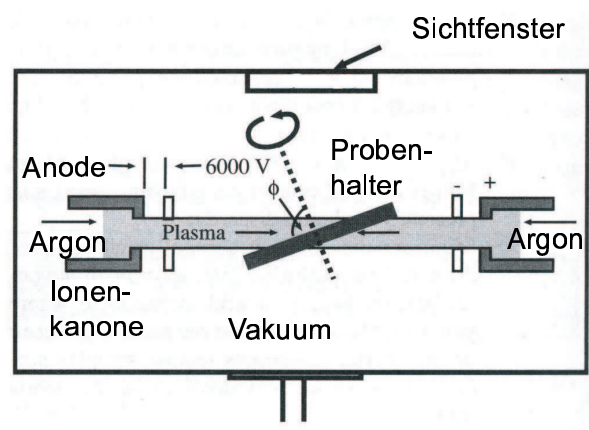


Abbildung 3.4: Bei der DuoMill wird der Winkel zwischen Probe und Ionenstrahl eingestellt, indem die Ionenkanonen verdreht werden. Die Rotationsvorrichtung zur Drehung der Proben während des Sputtervorgangs wurde im Rahmen dieser Arbeit nicht genutzt (aus [26]).

Ionendünnungsanlage. In den Probenhalter der Ionendünnungsanlage lassen sich die Präparate so einspannen, dass eine kreisförmige Fläche mit 3 mm Durchmesser gesputtert werden kann. Vor dem Sputtern wird zunächst die Probe in die Schleusenkammer geschraubt. Nachdem die Schleusenkammer evakuiert worden ist, wird die Probe von der Schleusenkammer aus in die Probenkammer gefahren. Der Druck in der Probenkammer liegt etwas unter $1 \cdot 10^{-4}$ Pa, solange die Ionenkanonen nicht in Betrieb sind.

Während des Sputtervorgangs steigt der Druck auf etwas unter $1 \cdot 10^{-2}$ Pa. Gesputtert wird mit Argon-Ionen.

Insgesamt ist es schwierig, einheitliche Sputterbedingungen zu schaffen, da die Ionendünnungsanlage keine Möglichkeit bietet, alle Parameter zu kontrollieren. So lassen sich weder Strahldurchmesser noch Strahlprofil messen. Der Strahldurchmesser vergrößert sich durch den Betrieb der Ionenkanonen, da die Kathodenblende ja auch gesputtert wird und sich somit vergrößert. Das macht einen Wechsel der Kathodenblenden nach ca. 80 Betriebsstunden erforderlich. Damit lässt sich die Ionendosis auch nur sehr grob abschätzen: Geht man von einem minimalen Strahldurchmesser von 3 mm am Ort des Targets aus und einem Gun Current von 0,5 mA, so ergibt sich eine Ionendosis von ungefähr $2,8 \cdot 10^{16}$ Ionen/(s · cm²). Nimmt man schon eine Fläche von 5 mm Durchmesser an, verringert sich die Dosis auf ca. $1 \cdot 10^{16}$ Ionen/(s · cm²).

Wahlweise lässt sich die Probe während des Sputtervorgangs mit flüssigem Stickstoff kühlen. Die Anlage kann aber auch ohne Kühlung betrieben werden. Eine Temperaturmessung der Proben in der DuoMill ist direkt nicht möglich. Um dennoch eine Vorstellung davon zu bekommen, wie stark sich eine Probe durch den Sputtervorgang aufheizt, wurde die Temperatur mit Hilfe eines externen Thermoelements gemessen. Dazu wurde das Thermoelement durch das Sichtfenster der Schleusenkammer geführt, so dass die Probe in direktem Kontakt mit dem Thermoelement steht, falls sie sich in der Schleusenkammer

befindet. Um eine Messung vorzunehmen, muss der Sputtervorgang abgebrochen werden und die Probe in die Schleusenkammer gefahren werden, dieser Vorgang dauert etwa 5 s. Das heißt, die Messung findet mit einer Zeitverzögerung statt. In dieser Zeitspanne nimmt die Probe schon wieder Wärme aus ihrer Umgebung auf. Sobald die Probe in Kontakt mit dem Thermoelement tritt, geht außerdem Wärme durch Wärmeleitung auf die relativ kleine Probe über. Wie stark diese Einflüsse die gemessene Probentemperatur verfälschen, kann man nicht genau angeben. Es wird jedoch deutlich, dass die gemessene Temperatur zu hoch ist. Ohne Berücksichtigung dieser Einflüsse konnte die gemessenen Probentemperatur mit etwa -50°C abgeschätzt werden, falls die Probe gekühlt wurde. Ohne Kühlung erhitzt sich die Probe ungefähr auf 106°C . In diesem Fall ist die gemessene Probentemperatur jedoch zu niedrig.

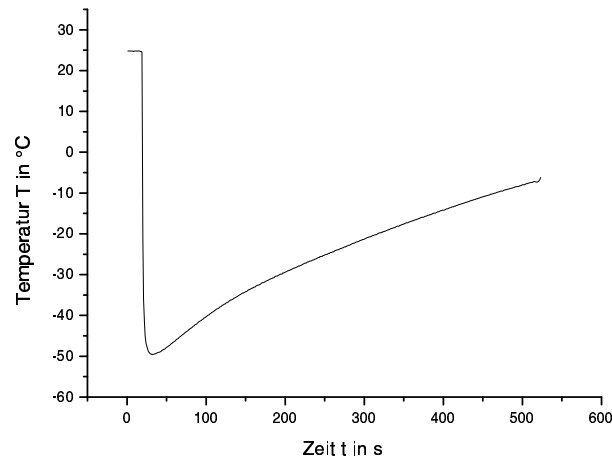


Abbildung 3.5: Die Temperatur der Probe wurde mit Hilfe eines Thermoelements abgeschätzt. Die Messung erfolgt mit einer Zeitverzögerung nach Abbruch des Sputtervorgangs. Das Temperaturminimum dieser Messung liegt bei $-49,6^{\circ}\text{C}$.

Kapitel 4

Experimentelle Ergebnisse und Diskussion

Im Rahmen dieser Arbeit wurden nun Oberflächen mit der in Abschnitt 3.2 beschriebenen Ionendünnungsanlage präpariert und auf Musterbildung untersucht.

Gesputtert wurde bei Beschleunigungsspannungen zwischen 4 kV und 6 kV und einem Ionenstrom von 0,5 mA. Die Winkel zwischen Oberflächennormalen und Ionenstrahl wurden zwischen 55° und 75° variiert. Als Probenmaterial wurde in den meisten Fällen poliertes Si mit einer (100)-Oberfläche verwendet, das mit Argonionen beschossen wurde.

Die resultierenden Muster unterscheiden sich in ihrem charakteristischen Aussehen zum Teil erheblich. So fanden sich neben den für technische Anwendungen interessanten Ripples auch gröbere und inhomogenere Strukturen, hier als sekundäre Strukturen bezeichnet werden. Auf diese sekundären Strukturen soll in Kapitel 4.1 eingegangen werden. Die Ripples werden dann in Kapitel 4.2 näher diskutiert.

4.1 Sekundäre Strukturen

Die Targets werden zur Präparation zwischen zwei Molybdänplättchen in den Probenhalter geschraubt. Der Ionenstrahl gelangt durch ein Loch (3 mm Durchmesser) in einem dieser Molybdänplättchen auf die Probe. Dieses Loch wirkt somit als Blende.

Abbildung 4.1 zeigt SEM-Aufnahmen von präpariertem Silizium in 30facher Vergrößerung. Der gesputterte Bereich ist in a) als kreisförmige Fläche auf der Aufnahme zu erkennen. In b) wurde nur der halbkreisförmige Bereich gesputtert. Der helle sichelmondförmige Bereich innerhalb der Sputterfläche in a) bzw. der helle Streifen in b) entstehen durch den Sputterprozess. Diese Bereiche lassen sich schon mit bloßem Auge erkennen: Sie erscheinen nicht mehr metallisch glänzend, sondern mattiert.

Die sichelmondartige Form in Abb. 4.1a) ist typisch für die Präparation mit einer kreisförmigen Blende. Dabei hat die Beschleunigungsspannung oder der gewählte Winkel keine erkennbaren Auswirkungen auf diese Art der Strukturbildung. Auch auf Germanium- oder Kupfertargets waren diese „Mondsicheln“ zu finden. Zusammenfassend kann man für die Mikrostrukturierung bei diesen Materialien (d.h. Germanium und Kupfer) und Galliumantimonit ein schuppenartiges Aussehen festhalten.

Mit Verformung der Blende ändert sich auch die geometrische Ausdehnung dieser hellen Bereiche: in Abb. 4.1 b) wurde vor dem Sputtern ein Wolframstreifen auf der Siliziumprobe angebracht, so dass quasi eine halbkreisförmige Blende entstand. Der helle Bereich richtete sich an der geraden Kante aus. Die hellen parallelen dünnen Streifen, die in 4.2 b) in horizontaler Richtung zu erkennen sind, zeigen bei höheren Vergrößerungen auch Strukturen. Die auffällige parallel Anordnung lässt sich auf Kratzer, die sich auf der Probe befanden, zurückführen. D.h. die Strukturbildung fand entlang dieser Kratzer statt.

Insgesamt scheint die oben beschriebene Art der Strukturbildung offenbar an

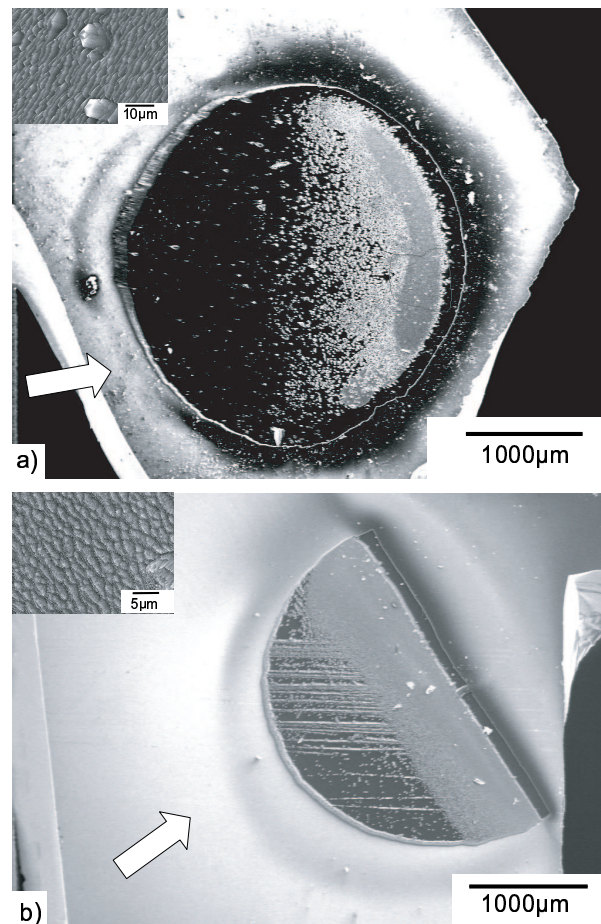


Abbildung 4.1: Abb. a) zeigt eine Si-Probe in 30facher Vergrößerung. Die Probe wurde ungekühlt im kreisförmigen Bereich unter einem Einfallswinkel von 55° 4 h lang bei 5 kV und einem Ionenstrom von 0,5 mA gesputtert. In Bereichen hoher Helligkeit hat sich eine mikroskopische wellenartige Struktur ausgebildet. Die kleinen hellen Stellen erweisen sich als kegelartige Formen, wie später in Abb. 4.6 zu sehen. In Abb. b) wurde die runde Kante der Molybdänblende durch eine gerade ersetzt, ansonsten sind die Sputterbedingungen und die Vergrößerung identisch mit denen in a). Die Pfeile zeigen jeweils die projizierte Ionenstrahlrichtung. Links oben ist jeweils ein Ausschnitt aus den Bereichen heller Intensität in höherer Vergrößerung dargestellt: Man erkennt die mikroskopische Struktur.

Keime bzw. Keimkanten gebunden zu sein, denn sputtert man ohne Blende (d.h. die Probe wird auf das untere Molybdänplättchen mit Zweikomponentenkleber geklebt), entstehen keine solchen hell erscheinenden Bereiche. Musterbildung an Keimen wird auch in [17] - [19] beschrieben.

Auch an aufliegenden Materialsplittern (u.a. Molybdänsplitter von der Blende), die erst bei höheren Vergrößerungen am SEM zu erkennen sind, beginnt eine Musterbildung (siehe Abb. 4.2). In Abb. 4.2 ist zum Teil schon die mikroskopische Struktur erkennbar. Diese mikroskopische Struktur ist in den großflächiger strukturierten Gebieten, wie in Abb. 4.1 zu sehen sind, jedoch ausgeprägter: Bei höheren Vergrößerungen erkennt man eine wellenartige Struktur auf dem gesputterten Silizium. Diese Wellen sind aber im Vergleich zu den Ripplestrukturen, auf die im nächsten Abschnitt noch eingegangen werden soll, kantig und rau. Auch ihre „Wellenlänge“ ist um das Zehn- bis Hundertfache größer. Insgesamt erweist sich die Struktur als recht uneinheitlich in ihrer Periodenlänge und auch in ihrer Orientierung, wie in Abb. 4.3 zu erkennen ist. Alle drei Aufnahmen stammen von derselben Siliziumprobe und sind bei 5000facher Vergrößerung aufgenommen worden. Die Oberfläche der Probe war für alle Aufnahmen senkrecht zum Elektronenstrahl orientiert, so dass sich keine unterschiedlichen Perspektiven für die Aufnahmen ergeben. Man erkennt unterschiedliche Periodenlängen, auch die Orientierung relativ zur Projektion des Ionenstrahls variiert erheblich. In Abb. 4.4 a) sind verschiedene Orientierungen in *einem* Bildausschnitt der Siliziumprobe zu sehen. Die im oberen rechten Bildbereich erkennbare Orientierung O1 entwickelt sich in Diagonalrichtung stetig zu einer Orientierung O2 fast senkrecht zu dieser im unteren linken Bildbereich. In b) ist ein sehr plötzlicher Orientierungswechsel um fast 90° von Gebiet I zu II zu erkennen. Die schwarzen Bereiche in den Abbildungen sind auch gesputtert worden. Hier lässt sich allerdings auch bei hohen Vergrößerungen keine Struktur sichtbar machen.

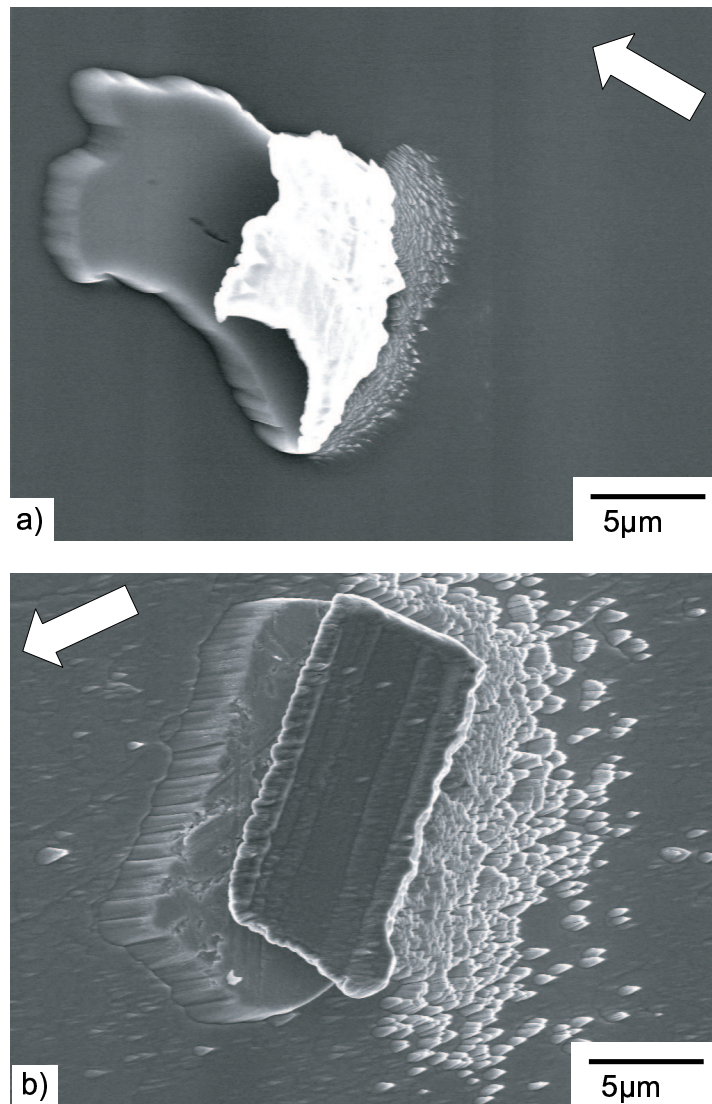


Abbildung 4.2: An aufliegenden Splittern bilden sich Strukturen. Man beachte im Vergleich zu Abb. 4.1 die höheren Vergrößerungen, so dass die mikroskopische Struktur z.T. schon erkennbar ist. In Abb. a) wurde Silizium gesputtert, in b) Germanium. Die Pfeile zeigen jeweils die projizierte Ionenstrahlrichtung.

Die Grenzen in Abb. 4.4 zwischen strukturiertem und schwarzem unstrukturiertem Bereich sind sehr scharf. Betrachtet man jedoch die dem Ionenstrahl zugewandte Seite der gesputterten Oberfläche wie in Abb. 4.5, so werden se-

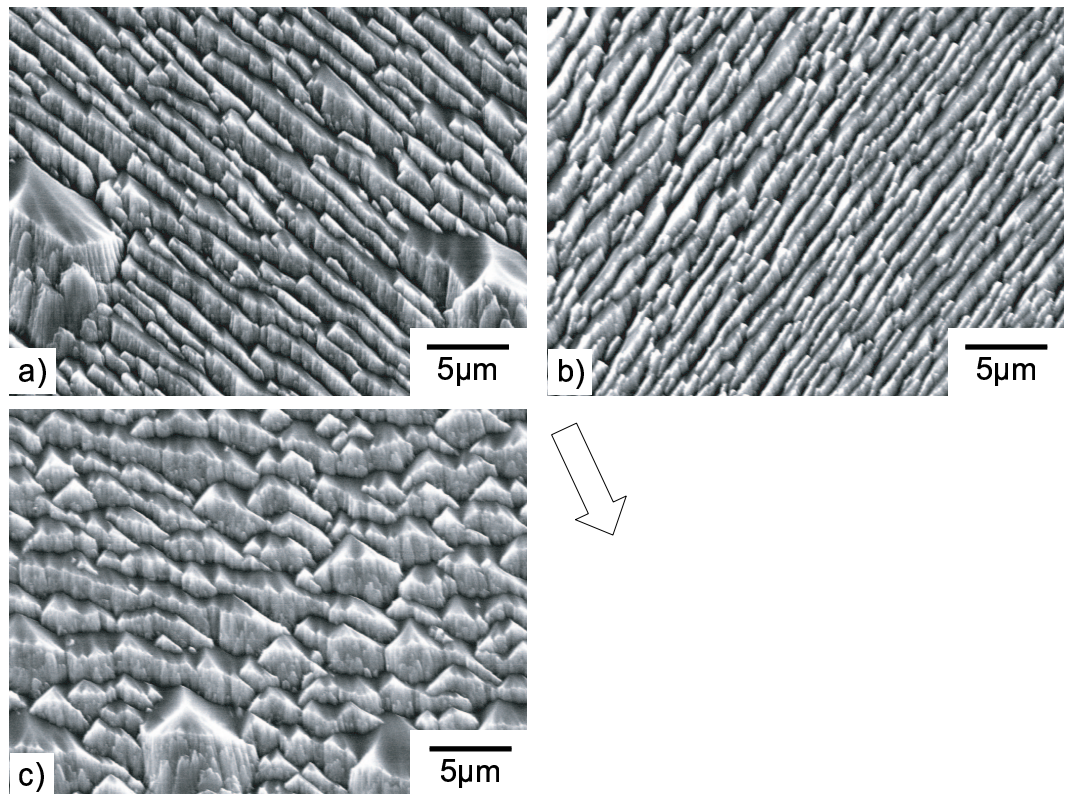


Abbildung 4.3: Die Aufnahmen a) bis c) stammen von derselben Siliziumprobe und sind bei 5000facher Vergrößerung aufgenommen worden. Man sieht die unterschiedlich orientierten Wellenmuster. Gesputtert wurde bei einer Beschleunigungsspannung von 5,5 kV. Der Pfeil zeigt die projizierte Ionenstrahlrichtung an.

parate kegelförmige Strukturen auf der Siliziumprobe sichtbar (Einfallswinkel: 55° , 5,5 kV Beschleunigungsspannung, Sputterzeit: 4h ohne Kühlung). Diese kegelförmigen Strukturen treten sehr verstreut über die Probe auf, in Richtung der Keimkante verdichten sie sich und scheinen schließlich in die oben beschriebene dichte Struktur überzugehen. Es lässt sich also keine homogene Verteilung dieser Kegel bestimmen. Auch sind ihre Größen und ihr Aussehen nicht einheitlich. Dafür ist ihre Ausrichtung zum Ionenstrahl ausnahmslos auf allen Proben gleich: Ihre spitze Seite zeigt in die Richtung, aus der der Ionenstrahl gekommen ist. Damit ist ihre Entstehung auf den Sputterprozess

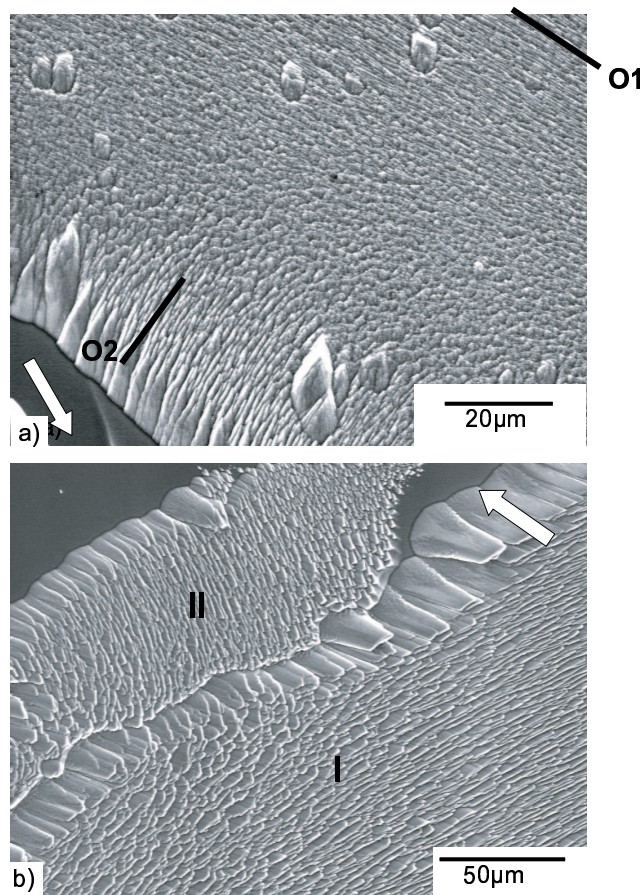


Abbildung 4.4: Bei einer kleineren Vergrößerung sind unterschiedliche Orientierungen in einem Bildausschnitt zu sehen. Die Aufnahmen stammen von unterschiedlichen Silliziumproben. a) wurde bei 5,5 kV b) bei 5 kV gesputtert. Gesputtert wurde ohne Kühlung jeweils 4h. Die Pfeile zeigen die projizierte Ionenstrahlrichtung an.

zurückführbar. Hinzu kommt, dass solche Formen auf unbehandelten Proben nicht zu finden waren. In Abb. 4.6 sind verschiedene Kegelformen dargestellt. Die Kegel mit der glatteren Oberfläche (Abb. 4.6b)) sind auch auf den Proben zu finden, auf denen andere sekundäre Strukturen nicht zustande kamen, weil Keimkanten und mögliche Impfquellen durch Weglassen der Blende vermieden wurden. Robinson und Rossnagel führen ähnliche Strukturen auf gesputtertem Kupfer auf Anfangsrauhigkeiten zurück. Man beachte in der Abbildung

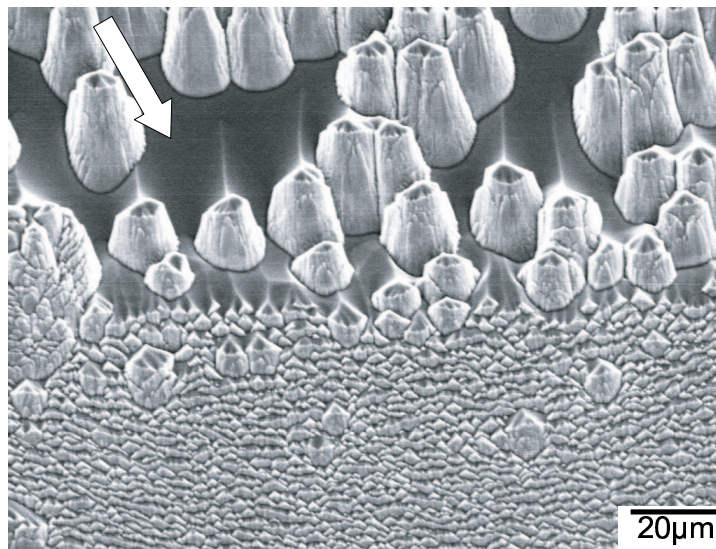


Abbildung 4.5: Kegelartige Formen gehen in eine dichte Struktur über. Die Siliziumprobe wurde bei einer Beschleunigungsspannung von 5,5 kV gesputtert. Der Pfeil zeigt die projizierte Ionenstrahlrichtung an.

die unterschiedlichen Maßstäbe!

EDX-Untersuchungen am Jeol SM 6300 F zeigen keine Materialkontraste in den gesputterten Gebieten. Daraus lässt sich schließen, dass die sekundären Strukturen durch den Sputterprozess entstehen und nicht indirekt durch Redeposition von gesputterten Atomen. Denn ansonsten würde man einen nicht vernachlässigbaren Anteil Molybdän erwarten, weil der Ionenstrahl auch die aufliegende Molybdänblende trifft. Da die Sputterausbeute von Molybdän nach Matsunami et al. für 5 kV ca. 1,75 beträgt [27], die von Silizium mit ca. 1,51 bei 5 kV sogar nach [27] kleiner ist und bei einem angenommenen Strahldurchmesser von 5 mm ein Flächenbereich von $16\pi \text{ mm}^2$ der Molybdänblende im Vergleich zu einer Fläche von $9\pi \text{ mm}^2$ Siliziumprobe gesputtert werden, müssten diese Strukturen auch Molybdän enthalten.

Die bei EDX-Untersuchungen detektierte charakteristische Röntgenstrahlung kommt aber im Vergleich zu den SE bzw. RE aus tieferen Regionen des Wech-

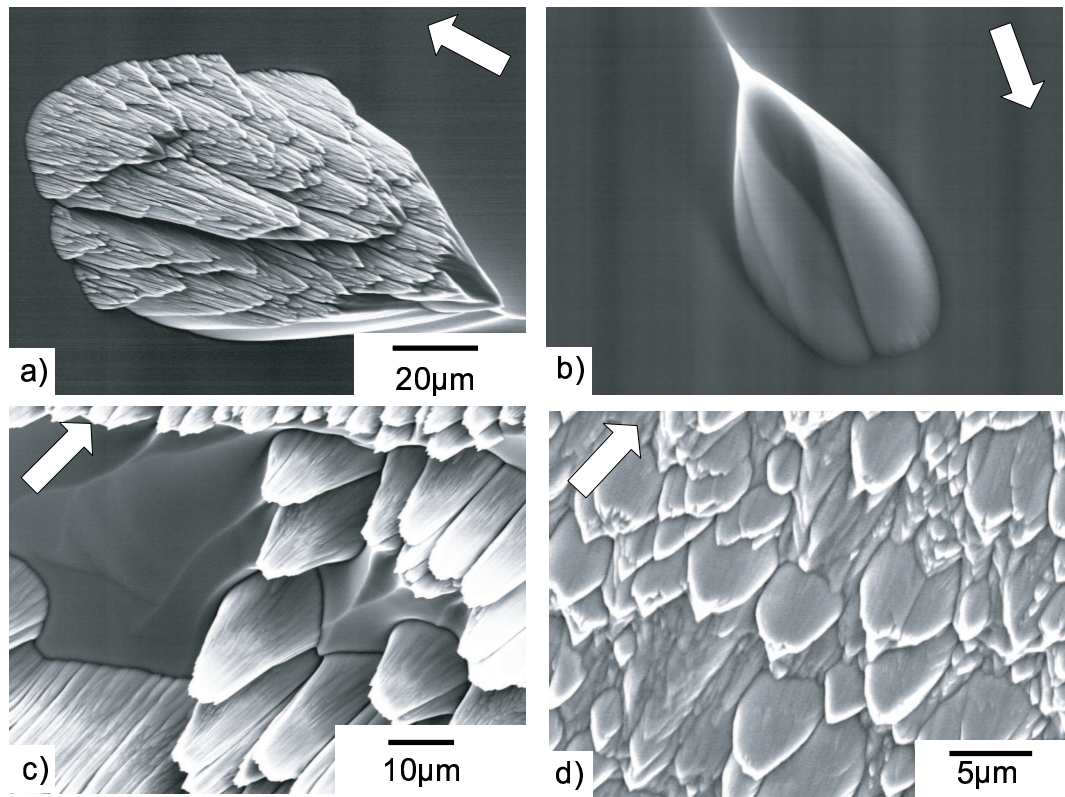


Abbildung 4.6: Auf den gesputterten Oberflächen bilden sich kegel- bzw. zapfenartige Formen aus. Das verwendete Targetmaterial in a) bis c) war Silizium, die Beschleunigungsspannungen lagen zwischen 5,5 und 6 kV, jedoch scheint die Beschleunigungsspannung keine Auswirkungen auf das charakteristische Aussehen der Ripples zu haben. In b) wurde die Probe ohne aufliegende Molybdänblende präpariert. a) und c) weisen insgesamt viel mehr Struktur auf. Diese Proben wurden mit Blende präpariert. In d) wurde Kupfer bei 5 kV 4h lang gesputtert.

selwirkungsvolumens, so dass nur Aussagen über oberflächennahe Gebiete gemacht werden und nicht so sehr über die Oberfläche selbst. Die erkennbaren sekundären Strukturen sind aber relativ groß, so dass EDX-Untersuchungen Aufschluss über ihre materielle Zusammensetzung geben. Gelangen gesputterte Molybdänatome nur in geringer Konzentration auf die Probe, können diese also nicht mit der EDX-Methode nachgewiesen werden, vereinzelte Mo-

lybdänsplitter dagegen schon, wie in Abb. 4.7 zu sehen. Dabei könnten solche

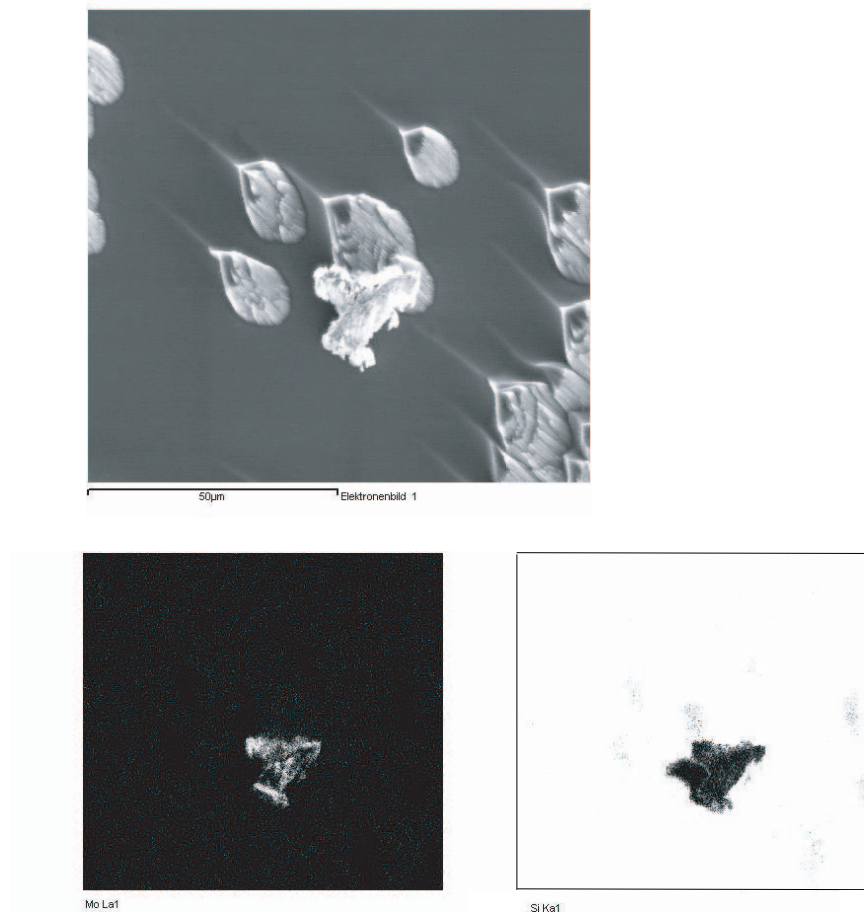


Abbildung 4.7: Im oberen Bild ist ein Sekundärelektronenbild einer gesputterten Siliziumprobe (5,5 kV, 55°, 4h Sputterzeit, ohne Kühlung) zu sehen. Die unteren Aufnahmen zeigen Mappings der Mo- $L_{\alpha}1$ - bzw. Si- $K_{\alpha}1$ - Kanten. Man erkennt, dass die Verunreinigung aus dem SE-Bild ein Materialsplinter der Molybdänblende ist. Die gesputterte Siliziumprobe und die durch den Sputterprozess entstandenen Kegel zeigen hier keine Molybdänanteile.

redeponierten Molybdänatome oder Atome, die von der Kathode weggesputtert werden und in geringerer Konzentration auf die Probe gelangen, als Impfquelle für Clusterbildung dienen und zu Strukturbildungen führen, wie sie in

Abschnitt 2.2 beschrieben werden.

Die beobachtete Strukturbildung erinnert teilweise an die Strukturen, die in [17] bis [21] dargestellt werden. Die *wellenartigen* Muster in unserem Fall sehen denen bei Rossnagel und Robinson nicht sehr ähnlich. Außerdem liegt die Periodizität der Wellen in Abb. 4.4 und Abb. 4.3 auch nicht im Lichtwellenlängenbereich, im Gegensatz zu den betrachteten Periodizitäten bei [18]. Nun kann man die Experimente auch nicht eins zu eins übertragen: Materialunterschiede bei der Wahl des Targets sowie höhere Beschleunigungsspannungen (in der Literatur reichen die Angaben von 500 V bis maximal zu 4,5 kV, während die hier gesetzten Beschleunigungsspannungen zwischen 4 kV und 6 kV lagen) verändern die Versuchsbedingungen. Zudem war in unserem Fall die Impfung mit Fremdatomen nicht beabsichtigt und auch nicht kontrollierbar.

Bessere Übereinstimmung in ihrem qualitativen Aussehen mit den bei [17] bis [21] abgebildeten Strukturen finden sich bei den kegelartigen Formationen. Verwendet man Kupfer als Targetmaterial wie in den angegebenen Literaturquellen sind die Strukturbildungen sogar recht gut vergleichbar.

Bei längeren Sputterzeiten ($\approx 10\text{h}$) geht die Oberflächenstrukturierung der Siliziumproben wieder zurück. Rossnagel und Robinson berichten in [19], dass die Musterbildung bei Ionendosen $> 5 \cdot 10^{20} \text{ Ionen/cm}^2$ wieder abnimmt. Geht man nun bei der genutzten Ionendünnungsanlage von einer maximalen Ionendosis (d.h. bei angenommenem minimalen Strahldurchmesser am Ort der Probe von 3 mm) nach 4 h Sputterzeit von $4 \cdot 10^{20} \text{ Ionen/cm}^2$ aus, so überleben demnach die durch Fremdmaterial induzierten Strukturen noch. Nach 10 h liegt die Ionendosis bei etwa $1 \cdot 10^{21} \text{ Ionen/cm}^2$ und überschreitet die von Rossnagel und Robinson angegebene Grenze.

Jedoch verschwinden die etwas feineren Kegel aus Abb. 4.6b) nach langen Sputterzeiten nicht. Wenn man allerdings die feineren Strukturen auf Anfangsrauigkeiten zurückführen will, so müssten sie nach Rossnagel und Robinson

nach Überschreiten einer Ionendosis von $> 2 \cdot 10^{19}$ Ionen/cm² erodiert werden. Allerdings werden alle diese Angaben für ein anderes System mit Kupfer als Substrat und Molybdän als Impfmateriel gemacht, so dass man die Aussagen nicht ohne Weiteres auf die hier untersuchten Systeme übertragen kann.

4.2 Ripples

Viel gleichmäßigere, waschbrettartige Strukturen, sogenannte Ripples ergaben sich vorzugsweise, wenn man die Proben während des Sputterns gekühlt hat (d.h. die Probe hat eine Temperatur von $< -50^\circ \text{C}$). Ohne Kühlung waren bei nur einer Messung Ripples zu finden, die nicht reproduzierbar waren. Stattdessen fanden sich bei der ungekühlten Präparation die in Abschnitt 4.1 beschriebenen sekundären Strukturen.

Variierbare Größen an der Ionendünnungsanlage sind die Beschleunigungsspannung, der Ionenstrom, der Einschusswinkel der Ionen und die Sputterzeit. Die Ionendosis kann, wie in Abschnitt 3.2 diskutiert, nur geschätzt werden. Um jedoch Ripplestrukturen zu bekommen, benötigt man laut [28], [29] und [30] eine Minstdosis von $1 \cdot 10^{17}$ Ionen/cm²

Variiert wurde der Ioneneinschusswinkel von 55° bis 75° relativ zur Oberflächennormalen. Folgende Parameter sind bei den Experimenten konstant gehalten worden:

Targetmaterial:	Silizium
Beschleunigungsspannung:	5 kV
Ionenstrom:	0,5 mA
Sputterzeit:	4h

Während des Sputterns wurde die Probe gekühlt. Vor dem Start des Sputtervorgangs wurden die Proben etwa eine Stunde vorgekühlt. Außerdem wurde die Richtung des Ionenstrahls auf dem unteren Molybdänplättchen, auf das das Siliziumtarget mit Zweikomponentenkleber festgeklebt wurde, markiert.

Bei den oben genannten Bedingungen wurde nun in Abhängigkeit des Einschusswinkels die Musterbildung untersucht.

So ergeben sich für Einfallswinkel zwischen 55° und 68° Ripplestrukturen. Diese erstrecken sich zum Teil über den gesamten gesputterten Bereich mit einer Fläche A von $A = 9,4 \text{ mm}^2$, werden jedoch durch sekundäre Strukturen, wie in Abschnitt 4.1 beschrieben, immer wieder gestört. Die sekundären Strukturen sind nicht so ausgeprägt wie im ungekühlten Fall, ihre Ausdehnung variiert aber dennoch stark auf den einzelnen gesputterten Proben. So kann man in keinem Fall eine reine Ripplestruktur finden.

Abb. 4.8 zeigt unterschiedliche Bereiche einer gesputterten Siliziumprobe. So finden sich auf dieser relativ weitläufige Flächen mit sehr gleichmäßigen Ripples, wie in Abb. 4.8a) zu sehen. In Abb. 4.8b) ist neben der glatten Ripplestruktur noch eine sekundäre Strukturbildung zu beobachten.

Die Orientierung der Ripples ist unabhängig vom Einfallswinkel ausnahmslos senkrecht zur projizierten Ionenstrahlrichtung (d.h. der Wellenvektor parallel dazu).

Demgegenüber wird in [31] bei einem Einschusswinkel von $67,5^\circ$ von der Normalen eine parallele Orientierung der Ripples zur Ionenstrahlprojektion auf Silizium beobachtet. Jedoch wurde in [31] mit einer niedrigeren Beschleunigungsspannung (750 eV, in unserem Fall 5 kV) gesputtert. Zudem lag die Sputterzeit mit 8500 s unterhalb der bei uns gewählten Zeit von 4 h. Unterschiede gab es zusätzlich bei der Kristallorientierung (Si(001)) und bei einer Temperatur von 555° C gegenüber -50° C . Außerdem wird noch der Ionenfluss mit $0,7 \text{ mA/cm}^2$

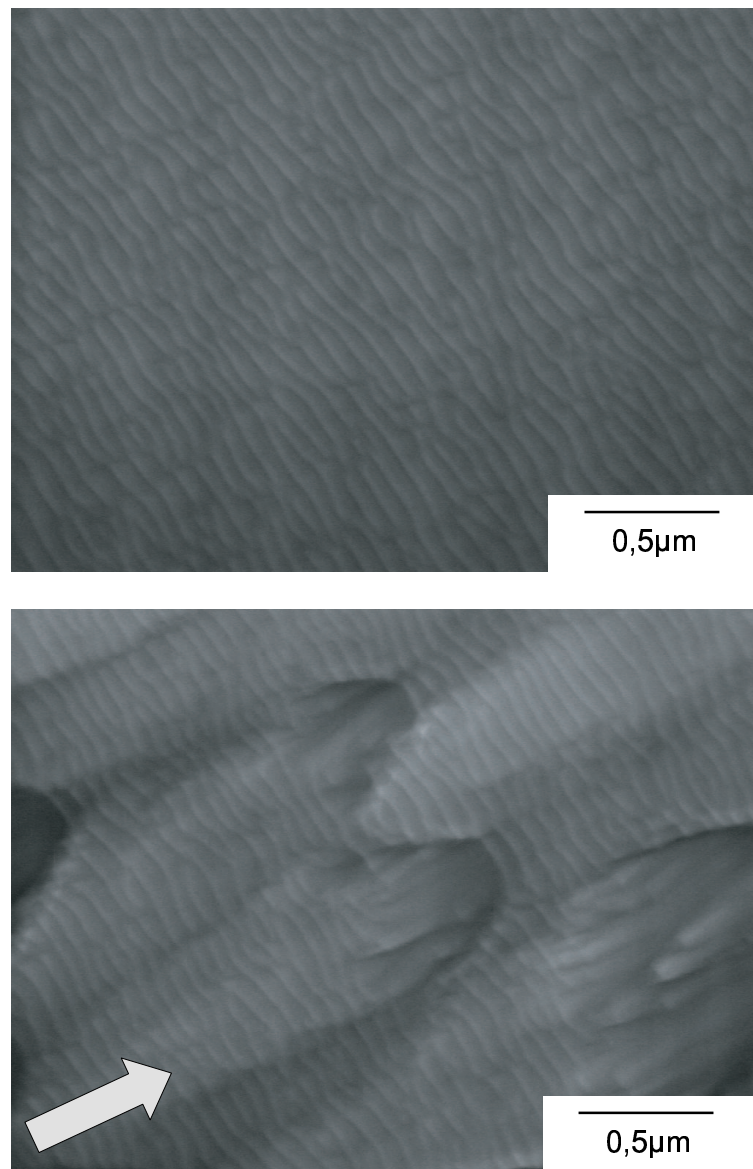


Abbildung 4.8: Aufnahmen einer gesputterten Siliziumoberfläche bei einer Vergrößerung von 60000. Der Ioneneinschusswinkel betrug 67° . a) zeigt einen Bereich sehr gleichmäßiger Ripples, in b) ist neben den Ripples noch eine sekundäre Strukturbildung zu sehen.

angegeben. In unseren Experimenten lassen sich die Ionenflüsse schwer abschätzen: Bei einem Ionenstrom von 0,5 mA und einem angenommenen Strahl-

durchmesser von 3 mm ergibt sich ein Ionenfluss von ca. $1,8 \text{ mA/cm}^2$, für einen angenommenen Strahldurchmesser von 5 mm ca. $0,6 \text{ mA/cm}^2$.

So sind neben dem Einschusswinkel offenbar noch andere Parameter für die Orientierung der Ripples verantwortlich. Die Kristallorientierung als Einflussparameter für die Ripplestruktur lässt sich ausschließen, wie Untersuchungen zeigen: Durch den Ionenbeschuss im keV Bereich bildet sich demnach eine amorphe Schicht von wenigen Nanometern auf dem Target. Die Amorphisierung von Silizium wurde in [30] untersucht. In [32] wurde auf ionenbeschossenem GaSb (normaler Einfall) eine etwa 2 nm amorphe Schicht nachgewiesen. In den Modellen nach Bradley und Harper bzw. der nichtlinearen Modelle (siehe Kapitel 2) wird die Orientierung der Ripples entscheidend durch die Koeffizienten ν_x und ν_y bestimmt. In diese Koeffizienten gehen sowohl Ionenfluss als auch die Beschleunigungsspannung ein. Die Phasendiagramme in Abb. 2.3 können bei der Einordnung dieser Fälle helfen: Laut SRIM-Simulation [8] ergibt sich für eine Beschleunigungsspannung von 750 eV wie bei [31] für a_σ ein Wert von $a_\sigma \approx 1,8$. Bei einer Temperatur von 555°C kann man annehmen, dass dieser Fall dem Bereich hoher Temperaturen zuzuordnen ist. In der linearen Region liest man aus Abb. 2.3 a) eine Orientierung der Ripples parallel zur projizierte Ionenstrahlrichtung ab. In unserem Fall lässt sich die Orientierung der Ripples senkrecht zum Ionenstrahl bei 5 kV und einem Wert von $a_\sigma \approx 2,1$ (SRIM-Simulation) nicht ohne Weiteres in die dargestellten Phasendiagramme einordnen (die Temperatur während des Sputterns lag bei $< -50^\circ \text{C}$). Allerdings sind diese Phasendiagramme nur ein Ausschnitt aus dem gesamten Phasenraum und in dieser Form beispielhaft zu verstehen, da hier nur zwei Parameter berücksichtigt wurden. Zudem zeigen die dargestellten Phasendiagramme nur den linearen Fall, ob sich die diskutierten Ergebnisse aber allein durch lineare Terme erklären lassen, ist ungeklärt. Die Experimente sind also keine Bestätigung für dieses Modell.

In unserem Fall wird für keinen Einfallswinkel eine Orientierung der Ripples parallel zum Ionenstrahl beobachtet. Jedoch liegen keine Messungen für Einfallswinkel $>75^\circ$ vor, so dass über diese Region keine Aussagen gemacht werden können.

Für einen Einschusswinkel von 69° lassen sich noch relativ deutlich Ripples erkennen, allerdings ist die glatte Ripplestruktur wie man sie z.B. in Abb.4.8a) erkennen kann, jetzt durchgängig zerklüftet (Abb.4.9).

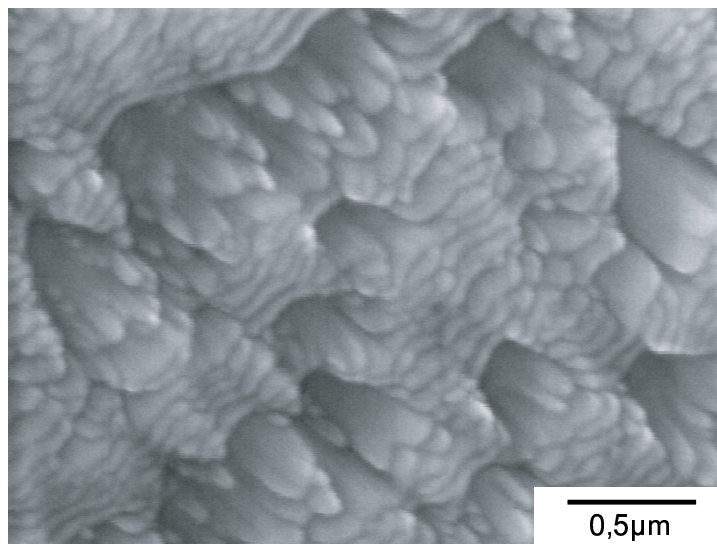


Abbildung 4.9: Aufnahme einer unter 69° gesputterten Siliziumprobe bei einer Vergrößerung von 60000

Ab einem Winkel von 70° verschwindet die klare Ripplestruktur und es sind nur noch andeutungsweise Ripples am SEM zu erkennen, die Struktur ist jedoch nicht mehr sehr ausgeprägt. Dennoch ist noch eine Vorzugsrichtung auszumachen, diese ist, wie bei kleineren Einfallswinkeln, senkrecht zum Ionenstrahl orientiert, bei 75° verschwindet die Ripplestruktur dann völlig. Stattdessen bildet sich auf großen Teilen der gesputterten Fläche eine schuppenartige Struktur.

Einfallswinkel in $^{\circ}$	Wellenlänge in nm
55	62 ± 2
65	72 ± 3
65	65 ± 5
67	78 ± 6
67,5	80 ± 2
68	64 ± 2
69	81 ± 5

Tabelle 4.1: Messergebnisse der gemittelten Ripplewellenlänge auf Silizium.

Abb. 4.10 stellt die Wellenlänge l_c der Ripples in Abhängigkeit des Ioneneinschusswinkels aus Tabelle 4.1 graphisch dar.

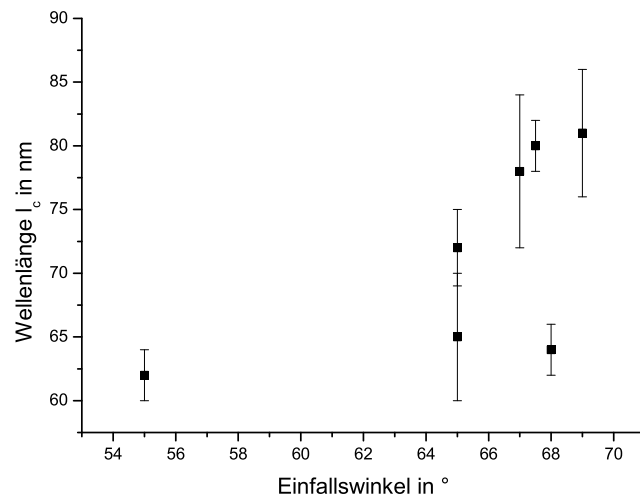


Abbildung 4.10: Die mittlere Wellenlänge l_c in Abhängigkeit des Ioneneinschusswinkels. Ab 70° verschwindet die Ripplestruktur, unterhalb von 50° ist eine Präparation der Proben nicht möglich.

Aus der Abbildung lässt sich eine Tendenz erkennen: Mit wachsendem Winkel nimmt die mittlere Wellenlänge zu. Die Messung bei einem Winkel von 68° fällt jedoch aus dieser Tendenz heraus. Auch die zweite Messung für einen Winkel von 65° weicht ab (die Differenz der mittleren Wellenlängen beträgt 7 nm). Jedoch überschneiden sich die Fehlerbalken beider Messungen. Mögliche Ursache für diese Differenz könnte eine Schwankung in der Ionendosis sein. Bestimmt wurde die Wellenlänge über die Autokorrelationsfunktion der Intensitäten aus den Sekundärelektronenbildern (siehe Abb.4.11).

Über eine Probe statistisch verteilt wurden verschiedene Aufnahmen der Rip-

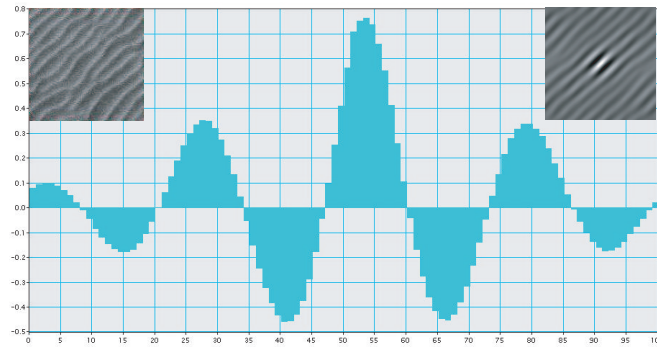


Abbildung 4.11: Links oben erkennt man das Realbild, rechts oben die dazugehörige Autokorrelationsfunktion. Die Wellenlängen ergeben sich aus den Intensitätsprofilen der Autokorrelation der SE-Bilder. Ist der Maßstab der SE-Aufnahmen bekannt, lässt sich die Wellenlänge leicht aus der Anzahl der Pixel einer Periode bestimmen.

plestruktur gemacht, anschließend wurde über die berechneten Wellenlängen der Mittelwert gebildet. Der Fehler ergibt sich dann aus der Standardabweichung.

Kapitel 5

Zusammenfassung

Im Rahmen dieser Arbeit wurde Silizium mit einer Ionendünnungsanlage gesputtert. Die gewählten Beschleunigungsspannungen lagen zwischen 4 und 6kV, wobei in den meisten Fällen bei einer Beschleunigungsspannung von 5 kV präpariert wurde. Gesputtert wurde bei einer Targettemperatur von $<50^{\circ}\text{C}$ über eine Dauer von 4h. Prinzipiell lassen sich mit der DuoMill als eigentlicher Ionendünnungsanlage Ripplestrukturen induzieren. Untersucht wurde die Entwicklung der Ripplestrukturen auf Silizium in Abhängigkeit des Ioneneinschusswinkels. Die Wellenlänge dieser Strukturen wurde mit Hilfe der Autokorrelationsfunktion berechnet. Dabei war eine Tendenz zu erkennen: Die Wellenlänge scheint mit wachsendem Einfallswinkel zu steigen. Jedoch verschwindet die Ripplestruktur ab einem Winkel von 70° . Die Orientierung der Ripples war durchweg senkrecht zur projizierten Ionenstrahlrichtung (d.h. ihr Wellenvektor parallel zur projizierten Ionenstrahlrichtung), anders als in den Beobachtungen bei [31], wo bei einer Temperatur von 555°C und einer niedrigeren Ionenenergie (750 eV) gesputtert wurde. Eine parallele Orientierung der Ripples zum Ionenstrahl (also ein senkrecht zum Ionenstrahl orientierter Wellenvektor), wie es z.B. in dem Modell von Bradley und Harper bzw. in den nichtlinearen Modellen diskutiert wird, konnte bis zu einem Ioneneinfallswin-

kel von 75° nicht beobachtet werden.

Obwohl in den theoretischen Modellen und diversen Experimenten auch Rippelbildung für hohe Temperaturen diskutiert bzw. beobachtet wird, trat Rippelbildung ohne Kühlung bei unseren Experimenten nur bei einer Messung auf und war nie reproduzierbar.

Die Modelle zur Rippelbildung beziehen keine Verunreinigungen durch Fremdmaterial in ihre Überlegungen mit ein. Zusätzlich zu den Rippelstrukturen konnten wir Musterbildungsprozesse beobachten, die vermutlich auf Verunreinigungen und Keime zurückgeführt werden können. Diese sekundären Strukturen gingen über separate Kegelformen bis zu wellenartigen Mustern, wobei sich diese Wellen deutlich von den Ripples in Größe und Aussehen unterschieden. Interessant war, dass die kegelartigen Strukturen immer in projizierter Ionenstrahlrichtung ausgerichtet waren. Diese sekundären Strukturen (besonders bei Kupfer) erinnern an Strukturen, wie sie in [17] bis [22] diskutiert werden. Dort werden diese Strukturen auf Clusterbildung durch thermisch bedingte Diffusion der Fremdatome und eine materialabhängige Sputterausbeute zurückgeführt.

In unserem Fall ergaben sich auch bei Kühlung des Targets diese sekundären Strukturen, allerdings nicht so ausgeprägt. Ob ioneninduzierte Diffusion diese Art der Strukturbildung beeinflussen kann, ist nicht geklärt. Welchen Einfluss diese sekundären Strukturen nun auf die Entstehung der geordneten Strukturen hat oder ob sie die Entstehung sogar blockieren, ist nicht bekannt.

Für systematischere Untersuchungen der Rippelbildung und evtl. sogar mögliche Anwendungen ist eine Vermeidung dieser sekundären Strukturen nötig. Leider sind auch die Sputterbedingungen an unserer Ionendünnungsanlage nicht exakt kontrollierbar. So können wichtige Parameter wie Ionendosis und Targettemperatur nur abgeschätzt werden. Ursache für die Probleme bei der Reproduzierbarkeit könnten auch Schwankungen im Ionenfluss und im Strahl-

profil sein.

Dennoch lassen sich offenbar mit recht einfachen Mitteln ioneninduzierte geordnete Nanostrukturen erreichen und mit dem Rasterelektronenmikroskop untersuchen. Für genauere Untersuchungen beispielsweise der Rippleamplituden wäre eine genaue Information über die Oberflächenhöhe interessant, die man z.B. mit einem Rastertunnel- bzw. Rasterkraftmikroskop bekommen kann. Jedoch lassen sich größere Probenbereiche einfacher mit dem SEM untersuchen [3]. Mit Hilfe von zwei SE-Detektoren lassen sich auch mit dem SEM Höheninformationen gewinnen, so dass sich die Vorteile des Rasterelektronenmikroskops zur Gewinnung der Höheninformation nutzen lassen.

Literaturverzeichnis

- [1] C. Ronning, P. Ziemann, Physik Journal **2** (2003), 37
- [2] Ch. Teichert, Phys. unserer Zeit **6** (2003), 279
- [3] Tobias Allmers: Nanostrukturierung durch Erosionssputtern, Diplomarbeit Westfälische Wilhelms-Universität Münster, 2004
- [4] C. Krülle, Physik Journal **7/21** (2002), 22
- [5] F. Frost, A. Schindler, F. Bigl, Phys. Rev. Lett. **85** (2000), 4116
- [6] Sigmund, P.: Sputtering by Particle Bombardement I, Vol.47 of Topics in Applied Physics, edited by R. Behrisch (Springer, Berlin 1981).
- [7] P. Sigmund, Phys. Rev. **184** (1970), 383
- [8] Website: www.srim.org
- [9] M. A. Makeev, A.-L. Barabási, Appl. Phys. Lett. **71 (19)** (1997), 2800
- [10] M. A. Makeev, R. Cuerno, A.-L. Barabási, Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. B **197** (2002), 185
- [11] R. M. Bradley, J. M. E. Harper, J. Vac. Sci. Technol. A **6** (1988), 2390
- [12] E. Chason, M. J. Aziz, Scripta Materialia **49** (2003), 953

- [13] J. Erlebacher, M. J. Aziz, E. Chason, M. B. Sinclair, J. A. Floro, J. Vac. Sci. Technol. A **18**(1) (2000), 115
- [14] R. Cuerno, A.-L. Barabási, Phys. Rev. Lett.**74**(1995), 4746
- [15] S.W. MacLaren, J. E. Baker, N.L. Finnigan, C.M. Loxton, J. Vac. Sci. Technol. A **10** (1992), 468
- [16] S. Park, B. Kahng, H. Jeong, A.-L. Barabási, Phys. Rev. Lett. **83** (1999), 3486
- [17] R. S. Robinson, S. M. Rossnagel, J. Vac. Sci. Technol.**21** (1982), 790
- [18] S. M. Rossnagel, R. S. Robinson, J. Vac. Sci. Technol.**20** (1982), 336
- [19] S. M. Rossnagel, R. S. Robinson, J. Vac. Sci. Technol.**20** (1982), 195
- [20] P. M. Curmi and G. L. Harding, J. Vac. Sci. Technol.**17** (1980), 1320
- [21] R. S. Berg, G. J. Kominiak, J. Vac. Sci. Technol.**13** (1976), 403
- [22] H. R. Kaufman, R.S. Robinson, J. Vac. Sci. Technol.**16** (1979), 175
- [23] Bastian Aisenbrey: Bestimmung der lateralen Ausdehnung der Elektrendiffusionswolke der rückgestreuten Elektronen, Diplomarbeit Physikalisches Institut der Westfälischen Wilhelms-Universität Münster, 2003
- [24] P.J. Goodhew, F.J. Humphreys, Elektronenmikroskopie: Grundlagen und Anwendungen, McGraw-Hill, London (1990)
- [25] R. Berger, Praxis der Naturwissenschaften- Physik in der Schule **2/52** (2003), 36
- [26] David B. Williams, C. Barry Carter: Transmission Electron Microscopy, Plenum Press, New York (1996)

- [27] Website: <http://www.ss.teen.stesunan.ac.jp/e-syb.html>
- [28] S. Habenicht, W. Bolse, K. P. Lieb, K. Reimann, U. Geyer, Phys. Rev. B **60** (1999), R 2200
- [29] G. Carter, V. Vishnyakov, Phys. Rev. B **54** (1996), 17647
- [30] T. K. Chini, F. Okuyama, M. Tanemura, K., Nordlund, Phys. Rev. B **67** (2003), 205403-1
- [31] J. Erlebacher, M. J. Aziz, E. Chason, M. B. Sinclair, J. A. Floro, Phys. Rev. Lett. **82** (1999), 2330
- [32] S. Facsko, T. Dekorsy, C. Koerd, C. Trappe, H. Kurz, A. Vogt, H.L. Hartnagel, Science **285** (1999), 1551

Danksagung

An dieser Stelle möchte ich mich bei allen bedanken, die mich bei der Fertigstellung dieser Arbeit unterstützt haben. Dabei ganz besonders:

Bei Herrn Prof. Dr. H. Kohl, für die interessante Themenstellung und sein Interesse an meiner Arbeit.

Bei allen EMIs, die mir jederzeit mit Rat und Tat zur Seite standen und für das sehr gute Arbeitsklima. Markus Silder für die Hilfe bei allen technischen Problemen. Benedikt Gralla half mir bei der Realisierung der Temperaturmessungen und Andreas Thesing für das Korrekturlesen; beiden möchte ich für weiterführende Diskussionen danken. Bastian Aisenbrey und Dr. Hilmar Hoffmeister möchte ich für die Einarbeitung am SEM danken.

Herrn Prof. Dr. S. Linz, Sebastian Vogel sowie Tobias Allmers aus der Arbeitsgruppe von Herrn Prof. Dr. M. Donath für hilfreiche Diskussionen und Tipps und Sebastian fürs Korrekturlesen.

Auch Herrn Prof. Dr. H. Arlinghaus und Dr. D. Lipinsky für ein weiterführendes Gespräch.

Meiner Familie dafür, dass sie mir das Studium ermöglicht und mich immer unterstützt haben.

Ich versichere, dass ich die schriftliche Hausarbeit selbstständig verfasst und keine anderen als die angegebenen Quellen und Hilfsmittel benutzt habe. Alle Stellen der Arbeit, die anderen Werken dem Wortlaut oder Sinn nach entnommen wurden, habe ich in jedem Fall unter Angabe der Quelle als Entlehnung kenntlich gemacht. Das gleiche gilt auch für die beigegebenen Zeichnungen, Kartenskizzen und Darstellungen.