Kapitel 11

Zusammenfassung und Ausblick

Gegenstand dieser Arbeit sind Untersuchungen zur Rekonstruktion der Ge(001)-Oberfläche nach Adsorption von Blei, Indium und Antimon, ergänzende Messungen an den entsprechenen Adsorbatsystemen der Si(001)-Oberfläche, Untersuchungen zur Facettierung der Ge(001)-Oberfläche durch Indium-Adsorption und Untersuchungen zur Struktur reiner und adsorbatbedeckter Ge(103)- und Si(103)-Oberflächen. Die hauptsächlich in dieser Arbeit verwendete Meßmethode ist die Rastertunnelmikroskopie (STM). Die hohe Auflösung des STM in Kombination mit der lokalen elektronischen Information durch den Einsatz verschiedener Tunnelspannungen erlaubte eine direkte Bestimmung der atomaren Struktur der Oberfläche für mehrere einfache Rekonstruktionen und ermöglichte die Charakterisierung von Oberflächendefekten auf atomarer Skala. Zur Lösung komplexer Rekonstruktionen wurden zusätzlich Ergebnisse von Oberflächenröntgenbeugungsmessungen (SXRD) herangezogen.

Einige Schüsselergebnisse der im Rahmen dieser Arbeit gemachten Entdeckungen sollen der ausführlichen Aufstellung vorangestellt werden:

- Durch In-induzierte Facettierung können auf der Ge(001)-Oberfläche regelmäßige Nanostrukturen ausgebildet werden. Die einheitliche Größe der Nanostrukturen ist durch die Kinetik des Facettierungsprozesses bestimmt.

- Die hochindizierte Ge(103)-Oberfläche ist stabil und bildet eine (4×1)-Rekonstruktion aus. Basiselemente der (4×1)-Rekonstruktion sind asymmetrische Dimere auf einer Doppellagenstruktur. Die Si(103)-Oberfläche kann durch die Adsorption von In und Bi stabilisiert werden.

- Für getemperte Oberflächen der III/IV(001) Adsorbatsysteme wurde ein universelles Strukturelement entdeckt. Die Gruppe-III Atome sind dreifach zum Substrat gebunden und terminieren auf einem (111)-ähnlichen Adsorptionsplatz Stufen der (001)-Oberfläche.

- Die Pb-induzierten Rekonstruktionen der Ge(001)-Oberfläche sind für niedrige Bedeckungen durch kovalent gebundenen Pb-Dimere und für hohe Bedeckungen durch eine metallische dichtgepackte Pb(111)-Lage gekennzeichnet.

- Getemperte Sb-bedeckte Ge(001)-Oberflächen zeigen eine charakteristische Rauhigkeit, deren Ausbildung im Submonolagenbereich auf eine zweidimensionale Durchmischung von Atomen der Adsorbat- und Substratlage und im Monolagenbereich auf die Ausbildung von Streß-Domänen zurückgeführt wird.

Die verschiedenen Rekonstruktionen von Pb auf Ge(001) wurden systematisch in Abhängigkeit von der Bedeckung und der Temperatur mit STM studiert. Nach RT-Deposition im Submonolagenbereich beobachteten wir die Rekonstruktionen (2×2)- und $c(8\times4)$, deren Struktur auf regelmäßige Anordnungen von Pb-Dimeren in paralleler bzw. orthogonaler Orientierung zu den Substratdimeren zurückgeführt werden konnte. Der beobachtete Ladungstransfer zwischen den Dangling Bonds der Dimeratome läßt auf eine Rehybridisierung der Pb-Atome und einen kovalenten Charakter ihrer Bindungen schließen. Die Struktur der höher bedeckten Rekonstruktionen (2103) und $c(8\times4)$i ist den Ergebnissen unserer STM-Messungen und früheren SXRD-Messungen zufolge durch eine metallische dichtgepackte Pb(111)-Lage gekennzeichnet, die in der kommensurablen (2103) Variante anisotrop komprimiert und in der uniaxial inkommensurablen $c(8 \times 4)$i Variante isotrop komprimiert ist. Die Dimer-Rekonstruktionen sind metastabil und gehen durch Tempern in eine mit Ge-Adatomen dekorierte Pb(1×1)-artige (1×5)-Rekonstruktion über, deren Oberfläche unterhalb der Sättigungsbedeckung eine ungewöhnliche Rauhigkeit zeigt. Auf der Si(001)-Oberfläche ist die $c(8 \times 4)$ Dimer-Rekonstruktion dagegen thermisch stabil. Ihre Struktur weist in Abhängigkeit von der Pb-Bedeckung verschiedene Modifikationen auf.

Für das System In auf Ge(001) wurden mit der $(3 \times 3)+$ (4×3)-Phase und der $(n \times 4)$-Phase zwei bisher unbekannte Rekonstruktionen entdeckt. In STM-Abbildungen der (2×2)-Rekonstruktion konnten die Dimer-Atome erstmals für beide Tunnelspannungspolaritäten aufgelöst werden. Das allgemein akzeptierte Modell für die (2×2)-Rekonstruktionen der III/IV(001) Adsorbatsysteme mit parallel zu den Substrat-Dimeren ausgerichteten Adsorbat-Dimeren wurde bestätigt. Die Ge(001)(2×2)-In Rekonstruktion unterscheidet sich von den (2×2)-Rekonstruktionen auf der Si(001)-Oberfläche durch das Wachstum in ausgedehnten (2×2)-Domänen bei RT und durch eine höhere Beweglichkeit der In-Dimere. Jenseits der Sättigungsbedeckung der (2×2)-Rekonstruktion konnte nach RT-Deposition mit der $(3\times3)+$ (4×3)-Phase eine weitere geordnete Struktur nachgewiesen werden. Für diese Struktur wurde auf der Grundlage der STM-Messungen ein In-Trimer-Modell entwickelt. Die durch RT-Deposition präparierten Rekonstruktionen (2×2) und $(3 \times 3)+$ (4×3) sind metastabil und gehen durch Tempern abhängig von der Bedeckung in (5×4)- und $(n \times 4)$-rekonstruierte Strukturen der ebenen Ge(001)-Oberfläche über oder die Oberfläche facettiert. Für die (5×4)-Rekonstruktion mit einer Sättigungsbedeckung 0,7 ML konnte das zuvor auf der Grundlage von SXRD-Messungen vorgeschlagene Modell weitgehend bestätigt und erweitert werden. Die nur kurzreichweitig geordnete $(n\times4)$-Rekonstruktion mit einer Sättigungsbedeckung von 0,5 ML stellt eine spannungsinduzierte Modifikation der wohlgeordneten Si(001)(3×4)-In Rekonstruktion dar. Die Struktur Si(001)(3×4)-In Rekonstruktion wurde durch die Kombination der Ergebnisse unserer STM- und SXRD-Messungen gelöst. Gemeinsames Grundelement aller In-induzierte Rekonstruktionen getemperter Oberflächen sind dreifach zum Substrat gebundene In-Monomere. Diese Bindungsgeometrie kann auf der ebenen (001)-Oberfläche nicht eingenommen werden und bedingt eine Umordnung der Substratatome unter lokalem Massentransfer. Die In-Atome besetzen lokal einen (111)-ähnlichen Adsorptionsplatz und terminieren Stufenkanten der (001)-Oberfläche.

Eine der wichtigsten Entdeckungen im Rahmen dieser Arbeit stellt die Facettierung der Ge(001)-Oberfläche in $\{103\}$-Flächen im mittleren Bereich der Indium-Bedeckung (lokal 0,63 ML) dar. Bei geeigneter Prozeßführung facettiert die Ge(001)-Oberfläche in regelmäßig angeordnete Nanostrukturen einheitlicher Größe und perfekt regelmäßiger prismenförmiger Gestalt. Die Größe der Strukturen kann durch die Präparation im Bereich zwischen 50–100 Å variiert werden. Die einzelnen Stadien der Facettierung von der Keimbildung über die Ausbreitung in Domänen durch fortgesetzte Facettierung an der Wachstumsfront und der vollständigen Facettierung der Oberflächen bis zum Zerfall der Facetten durch Indium-Verlust werden aufgezeigt. Die Struktur der Facettenflächen wird durch eine vollständige Terminierung idealer Ge{103}-Flächen durch In-Atome beschrieben. Die In-Atome sättigen alle Dangling Bonds des Substrats ab. Ihr Adsorptionplatz ist identisch mit dem der Rekonstruktionen (5×4), $(n \times 4)$ und (3×4). Die einheitliche Größe der facettierten Nanostrukturen wird auf die Kinetik des Facettierungsprozesses zurückgeführt. Eine deutliche Verspannung der Nanostrukturen gegenüber dem Substratvolumen konnte mit Hilfe von SXRD-Messungen ausgeschlossen werden. Die Eigenschaften In-induzierter Facetten der Ge(001)-Oberfläche und facettierter Ge-Lagen auf Si(001)-Oberflächen (sog. *hut-cluster*) werden einander gegenübergestellt.

Die Struktur der Sb-bedeckten Ge(001)-Oberfläche ist nach unseren STM-Messungen bis zur Sättigungsbedeckung der 2D-Wachstums lokal durch eine (2×1)-Anordnung von symmetrischen Sb-Dimeren gekennzeichnet. Die Sb- und Ge-Dimere zeigen in der Abbildung der unbesetzten Zustände einen deutlichen Kontrast, sind in der Abbildung der besetzten Zustände jedoch nahezu ununterscheidbar. Das Tempern der Oberflächen bewirkt im Submonolagenbereich und im Monolagenbereich komplementäre Vorgänge, die eine Aufrauhung der Oberfläche hervorrufen. Im Submonolagenbereich findet ein Austausch von Substrat- und Adsorbat-Dimeren zwischen den (001)-Lagen statt. Auf vollständig Sb-terminierten Oberflächen wird eine Mikro-Terrassierung (Streß-Domänen) unter Bildung von Ge(001)-Stufen beobachtet. Beide Phänomene werden auf Mechanismen zur Relaxation adsorbat-induzierter Verspannungen zurückgeführt.

Angeregt durch die Entdeckung der In-induzierten Facettierung der Ge(001)-Oberfläche in {103}-Flächen wurden die nach unserer Kenntnis ersten Experimente an Ge- und Si-Proben mit nominaler (103)-Orientierung durchgeführt. Die reine Si(103)-Oberfläche ist instabil und zerfällt in kleinste (105)-Facetten und unregelmäßig erscheinende Stufenbündel. Die reine Ge(103)-Oberfläche ist dagegen eben und bildet eine (4×1)-Rekonstruktion aus. Ihre komplexe Doppellagenstruktur mit asymmetrischen dimerisierten Oberflächenatomen konnte durch die Kombination von STM- und SXRD-Messungen gelöst werden. Bei 430 °C wurde ein reversibler $(4 \times 1) \leftrightarrow$“$(1 \times 1)$”-Phasenübergang beobachtet und als Rauhigkeitsübergang interpretiert. Die Si(103)-Oberfläche kann durch Adsorption von In und Bi stabilisiert werden und rekonstruiert wie die In-bedeckte Ge(103)-Oberfläche in eine einfache (1×1)-Adatom-Struktur. Die Sb-bedeckte Ge(103)-Oberfläche facettiert in eine regelmäßige “Berg und Tal”-Struktur aus {113}-Flächen. Abschließend wurde die Stabilität adsorbat-terminierter (103)-Oberflächen anhand einfacher geometrischer Überlegungen diskutiert.

Für die nähere Zukunft ist geplant, die Untersuchungen zur adsorbat-induzierten Facettierung voranzutreiben, da Selbstorganisation eine elegante Alternative zu konventionellen Methoden der Nanostrukturierung von Oberflächen bietet. Zuerst soll geprüft werden, inwieweit die Periodizität des facettierten Substrates auf überwachsene dünne Filme übertragen werden kann. Untersuchungen der quasi-periodisch facettierten Oberflächen auf interessante elektronische Quanten-Eigenschaften stehen ebenfalls an. Eine *in situ*-Untersuchung des In-induzierten Facettierungsprozesses der Ge(001)-Oberfläche mit Hochtemperatur-STM bei der kritischen Temperatur erscheint sehr reizvoll und könnte tiefere Einblicke in die unbekannten Elementarprozesse der Facettierung auf atomarem Niveau liefern. Es sollte nach weiteren Absorbatsystemen mit regelmäßiger Facettierung gesucht werden. Unsere Experimente am

System Sb/Ge(103) zeigen, daß hochindizierte Oberflächen in dieser Hinsicht ein großes Potential bereitstellen.

Einen zweiten Schwerpunkt werden Untersuchungen zum Wachstum von Ge auf Si(103)-Oberflächen bilden. Die Beobachtung, das die Adsorbate In und Bi die Si(103)-Oberfläche stabilisieren können, läßt vermuten, daß durch ihren Einsatz als Surfactants besonders ebene Filme erzielt werden können. Die (103)-Oberfläche ist für Verbindungshalbleiter unpolar, so daß der Einsatz von Si(103)-Substraten auch für das Wachstum von III-V-Halbleitern interessant ist. Allgemein stellen hochindizierte Oberflächen ein großes Reservoir an Alternativen zur Verbesserung des heteroepitaktischen Lagenwachstums bereit und bieten neue Möglichkeiten zur Modifikation ihrer elektronischen Eigenschaften.

Ein weiterer interessanter Forschungsgegenstand könnte der $(4 \times 1) \leftrightarrow$ "(1×1)"-Phasenübergang der reinen Ge(103)-Oberfläche sein, denn die Übergangstemperatur ist für einen Rauhigkeitsübergang ungewöhnlich niedrig. Sowohl Hochtemperatur-STM als auch Beugungsexperimente erscheinen lohnenwert.

Dank

Mein erster Dank gilt Herrn Prof. R. L. Johnson für die Aufnahme in seine Arbeitsgruppe und die engagierte Betreuung meiner Arbeit.

Dr. Lorenz Seehofer danke ich für die langjährige intensive und freundschaftliche Zusammenarbeit im Labor. Ich glaube, wir waren ein gutes Team.

Allen weiteren Mitarbeitern der STM-Labors und der SXRD-Sektion danke ich für die ausgezeichnete Arbeitsatmosphäre und die stete Hilfsbereitschaft. Sie verdienen es alle, namentlich genannt zu werden: Rasmus Rettig, Henning Riemenschneider, Lars Lottermoser, Reinhardt Kosuch, Jan-Helge Zeysing, Oliver Bunk, Henning Klar.

Einige der gezeigten STM-Bilder der Pb-induzierten Ge(001)-Rekonstruktionen könnten von Rasmus Rettig, der In-induzierten Facetten von Jan-Helge Zeysing und der Bi-stabilisierten Si(103)-Oberfläche von Henning Klar aufgenommen worden sein. Für die Unterstützung bei den Messungen bedanke ich mich herzlich.

Mein besonderer Dank gilt allen an den Röntgenbeugungsexperimenten beteiligten Kollogen für die fruchtbare Zusammenarbeit, die Überlassung ihrer Ergebnisse und die interessanten Diskussionen. Im einzelnen sind dies:
V. Jahns und W. Moritz von der Uni München (Pb/Ge(001)), R. Sawitzki und W. Moritz , ebenfalls Uni München (Ge(001)(5×4)-In), J. Steinfort, A. Ettema und P. M. L. O. Scholte von der Uni Delft (Ge/Si(001) Hut-Cluster), alle Mitarbeiter der Arbeitsgruppe vom Risø National Laboratory, insbesondere M. Nielsen und R. Feidenhans'l (Ge/Si(001) Hut-Cluster, In-induzierte Facetten, Si(001)(3×4)-In, Ge(103)(4×1) und viele weitere bald abzuschließende Projekte), und Oliver Bunk aus unserer Gruppe (Si(001)(3×4)-In, Ge(103)(4×1)).

G. von Appen danke ich für äußerst präzise Anfertigung der Si(103)- und Ge(103)-Proben.
J. Weber und seinen Mitarbeitern der Feinmechanischen Werkstatt des II. Instituts danke ich für die Nachsicht mit meinen Zeichnungen und die hervorragende Ausführung der Arbeiten.

Bei allen Mitarbeitern des HASYLAB, des II. Instituts für Experimentalphysik und der DESY-Bibliothek möchte ich mich für die freundliche Hilfe bedanken.

K. Falkenberg aus der Ärztlichen Bibliothek des Allgem. Krankenhauses St. Georg war mein Retter in der Not bei schwierigen Literaturbestellungen.

Martina Falkenberg und Oliver Bunk danke ich für die selbstlose Bereitschaft, dieses Manuskript Korrektur zu lesen.