

UHV-STM-Untersuchungen zum Wachstum von Verbindungshalbleitern

N. Frank, G. Springholz, G. Bauer
Institut für Halbleiterphysik, J. Kepler Universität Linz,
4040 Linz

1. Rastertunnelmikroskopie

Mit Hilfe der Rastertunnelmikroskopie (scanning tunneling microscopy — STM) kann man dreidimensionale Bilder von der Oberfläche leitfähiger Stoffe, gegebenenfalls mit atomarer Auflösung, herstellen. In den letzten 11 Jahren hat diese Technik wesentliche Informationen über Oberflächen verschiedenartiger Festkörper geliefert [1-4]. Eine Metallspitze wird in definiertem Abstand (z) über die zu untersuchende Probenoberfläche gerastert und die Abweichungen von einer mittleren Scanebene in eine Höhen- bzw. Bildinformation umgewandelt. Der Strom (i) über die Tunnelbarriere steht mit dem Abstand zwischen Spitze und Probe (ca. 1 bis 10 Å) in exponentiellem Zusammenhang und erlaubt daher eine sehr empfindliche Regelung des Abstandes ($\Delta z = 0.1$ Å verändert i um eine Größenordnung). Die Bewegungen zwischen Probe und Spitze werden i. a. mit Hilfe von piezoelektrischen Manipulatoren (Dreibein- oder Röhrenscanner) bewirkt. Eine weitere wesentliche Untersuchungsmethode besteht in der orts aufgelösten Tunnelspektroskopie. Dabei wird an einer im STM-Bild vorgewählten Stelle der Oberfläche oder auch im ganzen Scan-Bereich die Strom-Spannungs-Charakteristik zwischen der Tunnelspitze und der Probe aufgezeichnet. Daraus erhält man Aussagen über die lokale Oberflächen-Zustandsdichte. Mit dieser Methode konnten u. a. die lokale Bandkantendiskontinuität von AlGaAs/GaAs Heterostrukturen bestimmt werden [5-7].

Für die Verwendung eines STM zum Studium von Wachstumsvorgängen an Halbleiterheterostrukturen sollte dieses UHV- und spektroskopietauglich sein. Das in Linz verwendete STM (BEETLE-STM von Besocke Delta Phi GmbH. [8]) erfüllt diese Voraussetzungen. Es wurde aus Mitteln des Jubiläumsfonds der ÖNB angeschafft. Als Vorarbeit wurden vor Beginn der UHV-Experimente verschiedene Kristalloberflächen an Luft untersucht. Tunnelmikroskopie an Luft ist möglich, solange die Oberflächen von Spitze und Probe nicht chemisch verändert werden (z. B. durch Oxydation). Die Abbildung der Oberfläche kann auch durch physisorbierte Adsorbatschichten (z. B. H₂O) stark verzerrt werden. In Abb.1 ist die (100) Spaltfläche eines p-leitenden PbSe-Einkristalles gezeigt, die für mehr als einen Tag gegen Adsorbatbildung und Oxydation beständig ist. Die beiden Bilder zeigen auch deutlich, daß durch die Bewegung der Spitze über der Probenoberfläche diese nicht nur abgebildet, sondern auch *verändert* werden kann.

Abb. 1b wurde unmittelbar nach Abb. 1a aufgenommen. Durch die Wirkung des hohen elektrischen Feldes (ca. 10V/Å) zwischen Spitze und Probe werden die Kantenatome neu geordnet und auch ein Atom aus der oberen Terasse bis zur Kante transportiert.

Von der GME wurde die Anschaffung von UHV Komponenten gefördert, mit deren Hilfe ein System zur Unterbringung dieses STM's in einem UHV Rezipienten aufgebaut wurde.

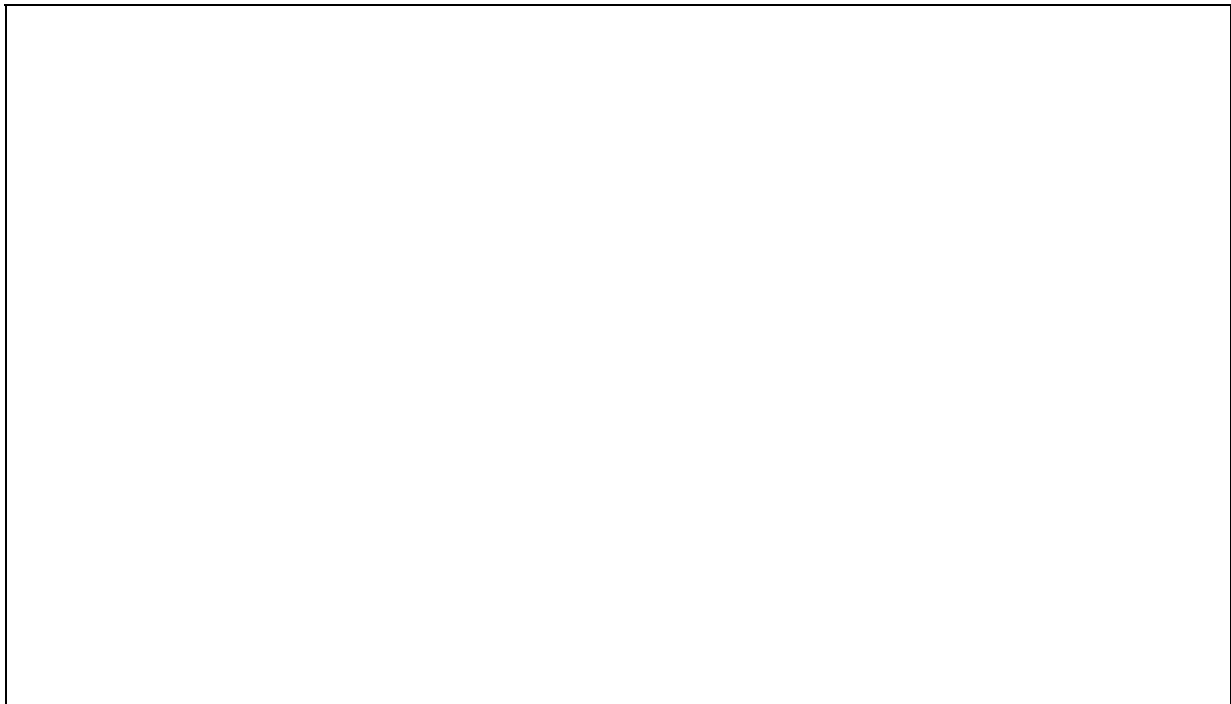


Abb. 1: STM-Aufnahmen der (100) Spaltfläche eines p-leitenden PbSe-Einkristalles (100 x 80 Å). Beide Bilder zeigen eine monoatomar hohe Stufe, die durch den Spaltprozeß entstanden ist. Die eingezeichneten Pfeile geben die kristallographischen Richtungen an.

2. Kontrolle des Wachstums von Epitaxieschichten mit RHEED und STM Untersuchungen

Für die Qualität von niedrigdimensionalen Systemen, wie Heterostrukturen, Quantum Wells und Übergittern, spielt die "Schärfe" der Grenzflächen bei kleiner werdenden Strukturparametern eine entscheidende Rolle. Beim Wachstum von Halbleitern mit Hilfe der Molekularstrahlepitaxie (MBE), bei der vom Prinzip her eine zweidimensionale Abscheidung, d. h. ein Wachstum von Atomlage auf Atomlage, möglich ist, liefern Informationen über die Oberflächenmorphologie wesentliche Beiträge zum Verständnis des elementaren Wachstumsprozesses. Die vorwiegend angewendete Technik zur Untersuchung des Epitaxieprozesses ist die in-situ-Beugung von hochenergetischen Elektronen (reflection high-energy electron diffraction RHEED). Der wesentliche Vorteil des in-situ-RHEED's liegt im guten Verständnis des Beugungsexperimentes an periodischen Strukturen der Oberfläche (Kristallgitter, Rekonstruktionen). Nichtperiodische Oberflächenmerkmale, wie Leerstellen, Fremdatome, Versetzungen und Stufen, die für das Wachstum eine wesentliche Rolle spielen, können mit RHEED aber nur schlecht untersucht werden. Das Rastertunnelmikroskop macht neben dem Oberflächen-Kristallgitter auch diese Punkt- und Liniendefekte durch die "real-space" Abbildung der Oberfläche einer Analyse zugänglich. Die Kombination von in-situ-RHEED mit einem STM ergibt daher eine sehr wirkungsvolle Möglichkeit zur Untersuchung des Wachstums einkristalliner Schichten, weil sich diese Methoden prinzipiell ergänzen [7, 9]. Der Einbau eines STM's in eine MBE-Kammer zur Abbildung der Oberfläche während des Wachstums ist aber aus mehreren Gründen nur schwer möglich [7]:

- A) Die Präzisionsbewegung zwischen Probenoberfläche und der Spitze ist nur möglich, wenn der Meßkopf von extern eingebrachten Vibrationen entkoppelt wird. Störend sind

vor allem die niederfrequenten Gebäudeschwingungen und durch Körperschall übertragene Schwingungen von mechanischen Pumpen, Drehdurchführungen und anderen mechanischen Teilen, die an UHV-Systemen Verwendung finden. Bei unserem System wird daher der STM-Meßkopf in einem eigenen Rezipienten untergebracht, der mit einer Schwingungsdämpfung gegen das Gebäude (vier luftgefüllte Dämpfer) und die gesamte UHV-Anlage (Membranbalg mit Viton-Dämpfern) ausgestattet ist.

- B) Ein direktes Anbringen des STM's vor der zu untersuchenden Oberfläche ist aufgrund der Anordnung Substrat-Zellen in der Epitaxieanlage nicht möglich. Ungleichmäßige Temperierung des STM-Meßkopfes, wie das in einer Wachstumskammer der Fall wäre, führt zu starker thermischer Drift durch unterschiedliche Ausdehnung der piezoelektrischen Manipulatoren. Eine Kontrolle der Oberfläche der Probe während des Abkühlvorganges in der Wachstumskammer mit RHEED stellt sicher, ob bei Raumtemperatur noch die "as-grown"-Oberfläche vorliegt und macht so die STM-Untersuchung erst sinnvoll.
- C) Die Kondensation von Molekülen bzw. Atomen am STM in der Wachstumskammer würde zu Kurzschlüssen führen.

3. Aufbau des Tunnelsystems

Im vorliegenden Projekt sind zunächst drei UHV-Epitaxieanlagen (IV-VI-MBE des Instituts für Halbleiterphysik, II-VI-ALE des Instituts für Experimentalphysik, II-VI-MBE des Instituts für Optoelektronik) verbunden worden (siehe Abb.2). Die Planung des Tunnelsystems wurde von Herrn Dr. W. Faschinger durchgeführt, welcher auch die Durchführung der Arbeiten gemeinsam mit Doz.Dr. H. Sitter besorgte. An dieses Tunnelsystem ist über eine Kreuzungskammer (siehe Abb. 2) der UHV-Rezipient für das STM angeschlossen.

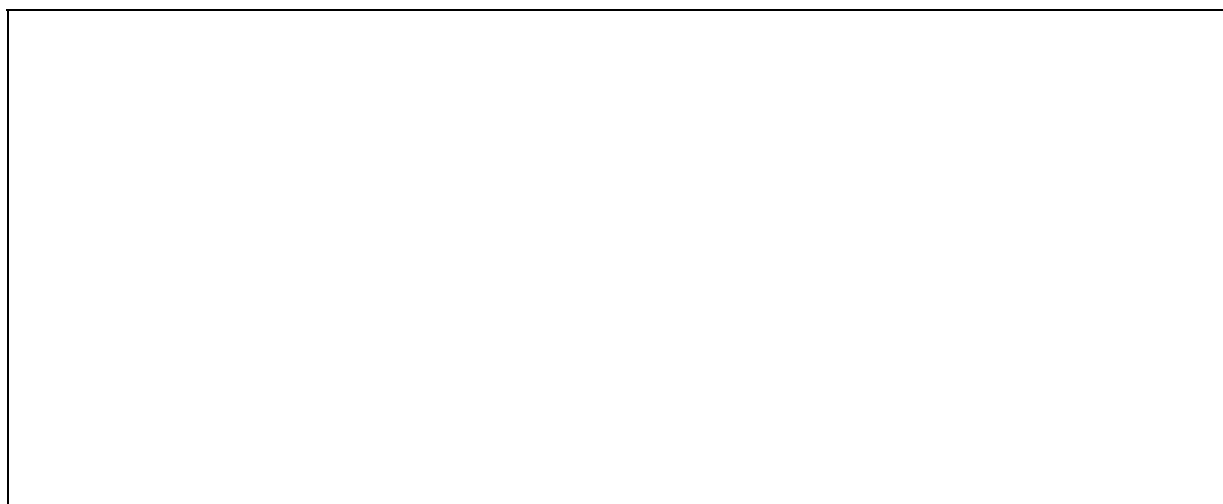


Abb. 2: Skizze des gesamten UHV-Systems, bestehend aus drei Epitaxieanlagen, einem STM-Rezipienten und dem UHV-Tunnel.

Als Probenhalter wird an allen drei Anlagen ein 1"-Standardprobenträger mit Bajonettverschluß verwendet. Der Transport der Proben aus den einzelnen Anlagen erfolgt durch ein Edelstahl-Rohr mit 100 mm freiem Durchmesser, in dem sich ein auf zwei Schienen laufender Wagen befindet. Der Wagen kann bis zu drei Proben gleichzeitig transportieren und wird durch magnetische Ankopplung von außen bedient. Die Übergabe der Proben zu den Wachs-

tumsanlagen und zur STM-Station erfolgt durch vertikal angebrachte Magnet-Dreh-Schiebedurchführungen. Der Transport der Proben erfolgt bei Drücken $< 10^{-9}$ mbar, um eine Bedeckung der Probenoberfläche mit Restgasmolekülen zu vermeiden. Das Vorvakuum wird mit Hilfe der Turbopumpen aller drei Wachstumsanlagen erreicht, im UHV-Tunnel wird der Enddruck mit einer 200 l/s Ionengetterpumpe erreicht. Da der 1" Substrathalter bei den beiden II-VI Anlagen und in der STM-Kammer in liegender, bei der IV-VI-MBE aber in stehender Stellung verwendet wird, ist zwischen der IV-VI-MBE und dem Anschlußflansch zum UHV-Tunnel noch eine Kreuzungskammer eingebaut, in der der Substrathalter mit Hilfe einer magnetischen Dreh-Schiebe-Durchführung um 90° gedreht wird. Ein Teil dieser Anlage ist in Abb.3 dargestellt.

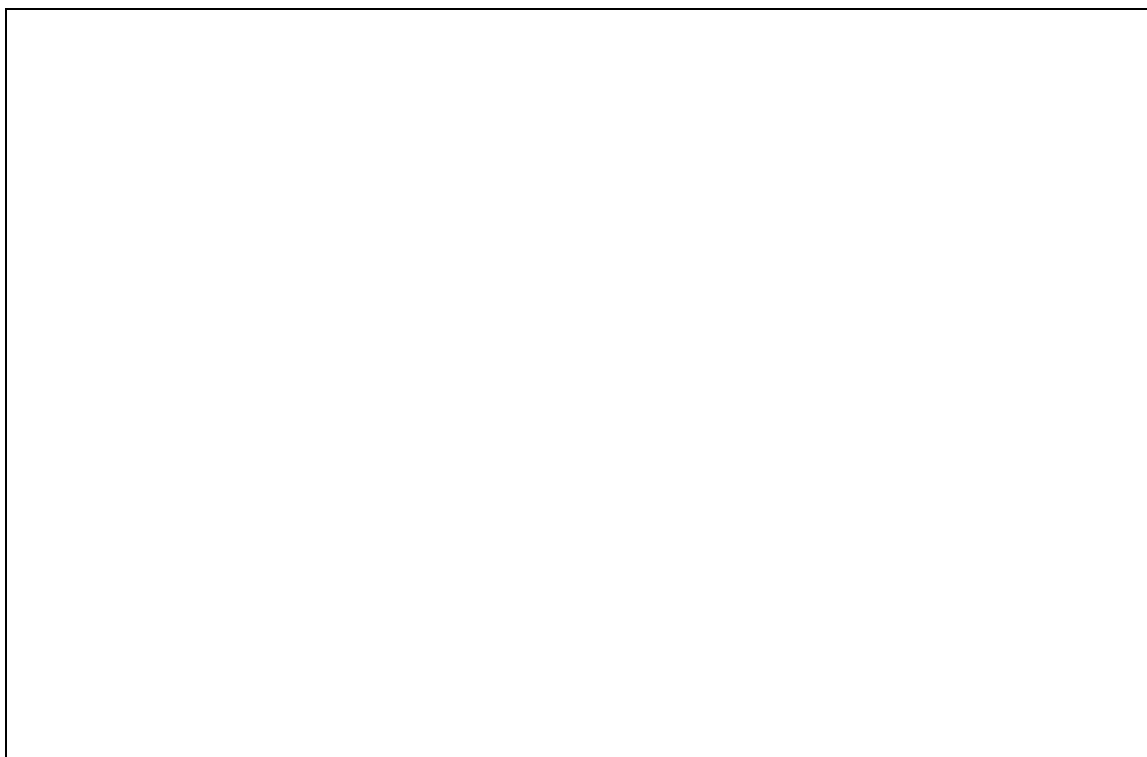


Abb. 3: Übergabestation an der IV-VI-MBE mit Kreuzungskammer, UHV-Tunnel und STM-Kammer. Zur Übergabe der Proben aus dem Tunnel in die IV-VI-MBE und zum STM sind drei Transferstäbe notwendig.

Aus der Kreuzungskammer wird die Probe in die eigentliche STM Kammer mit einer magnetischen Schiebedurchführung transportiert und dort von einem dreh- und vertikal verschiebbaren Manipulatorarm übernommen. Insgesamt können vier Proben, jeweils auf einem 1" Probenhalter montiert, in der STM Kammer auf einem Probenmagazin abgelegt werden. Mit dem gabelschlüsselartig geformten Manipulatorarm wird die Probe zusammen mit dem Triple-Helix-Probenhalter des STM's aus dem Magazin genommen und auf die drei Beine des Beetle STM's abgelegt. Die Grobannäherung der Probe erfolgt dann vollelektronisch, dieser Vorgang wird von außen mit einem Fernrohr überwacht. In Abb. 4 erkennt man das Probenmagazin sowie den Manipulator und das STM. Unter diesen Bedingungen konnte atomare Auflösung auf einer Graphitproben-Oberfläche erreicht werden.

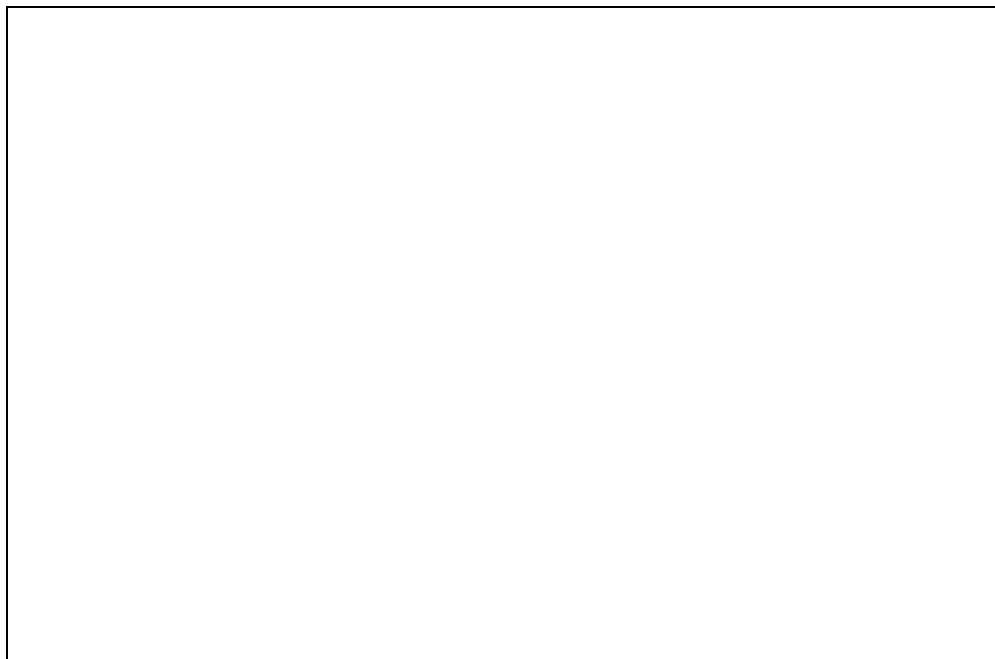


Abb. 4: Foto der UHV-STM-Kammer.

4. Geplante Untersuchungen

Mit der oben beschriebenen kombinierten RHEED-STM-Methode soll das Wachstum von IV-VI Verbindungshalbleitern (PbTe, PbSe) und auch von semimagnetischen Heterostrukturen und Übergittern ($\text{Pb}_{1-x}\text{Eu}_x\text{Te}$, $\text{Pb}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$, sowie von CdMnTe/CdTe, MnTe/CdTe, ZnSe/MnSe) untersucht werden. Die Untersuchungen an den II-VI Übergittern werden in Kooperation mit W. Faschinger und H. Sitter erfolgen.

Unter definierten Wachstumsbedingungen tritt bei IV-VI-Halbleitern zweidimensionales Wachstum auf [10] wobei dieser Wachstumsmodus durch Verfolgung der Intensitätsvariationen der RHEED-Beugungspunkte beobachtet wurde. Das oszillierende Signal wird gedämpft, wenn bereits vor der vollständigen Bedeckung der Oberfläche mit einer Monolage eine neue Monolage darüber zu wachsen beginnt und so die Oberfläche nach einigen Wachstumszyklen zunehmend rauher wird [11]. Das 2D-Wachstum bricht bei Si, GaAs und auch bei PbTe nach etwa 200 bis 500 Monolagen zusammen und geht dann in ein inselartiges Wachstum über. Es soll festgestellt werden, ob der Übergang vom 2D- zum Inselwachstum in den oben angeführten Halbleitern und Halbleiterheterostrukturen durch statistische Keimbildung auf der obersten Monolage bestimmt wird, oder ob null- und eindimensionale Oberflächendefekte als Anlagerungszentren bevorzugt werden.

Bei RHEED werden die Informationen aufgrund des Bezuges über das reziproke Gitter der Oberfläche über die untersuchte Probenoberfläche gemittelt. Es kann aus diesem Grund z. B. auf (111)-Oberflächen das Beugungsmuster einer die Oberfläche gleichmäßig bedeckenden (2x2)-Rekonstruktion nicht von jenem unterschieden werden, das bei einer Überlagerung der Beugungsbilder von drei mikroskopisch verteilten (2x1)-Domänen entsteht, die um je 120° gedreht sind. Das STM kann hier nicht nur Klärung über die Art der Rekonstruktion ergeben, sondern auch die Elementarzelle der rekonstruierten Oberfläche direkt dargestellt werden [12]. Bei PbTe und $\text{Pb}_{1-x}\text{Eu}_x\text{Te}$ wurden verschiedene Rekonstruktionen unter definierten Te_2 -Partialdrücken festgestellt [13]. Die Elementarzelle soll mit Hilfe des STM's bestimmt werden.

Mit Hilfe von RHEED Untersuchungen wurde vor kurzem festgestellt, daß für den Fall des pseudomorphen Wachstums einer Epitaxieschicht ein Wachstumsmodus in der Nähe der kritischen Schichtdicke auftreten kann, welcher zu der Bildung von kohärenten dreidimensionalen Inseln führt [13]. Wenn die gedehnte Epitaxieschicht eine bestimmte Dicke erreicht, kann diese 3D-inselähnliche Oberflächenmorphologie energetisch bevorzugter sein als die Dehnungsrelaxation durch den Einbau von Versetzungen. Ein Ziel dieses Vorhabens ist es, dieses kohärente Inselwachstum mit RHEED Aufnahmen und mit STM Untersuchungen zu studieren.

In weiterer Folge sollen diese Untersuchungen auch auf II-VI-Halbleiter und hier insbesondere auf CdTe/MnTe [14,15] und ZnSe/MnSe [16] ausgedehnt werden.

5. Zusammenfassung

Im Reinraum des Instituts für Halbleiterphysik der Johannes Kepler Universität Linz wurden drei Epitaxieanlagen und ein UHV-STM durch einen UHV-Tunnel verbunden. Das ermöglicht einen Probentransfer zwischen allen Epitaxieanlagen und dem UHV-STM, ohne daß die zu untersuchende Probenoberfläche durch Kontakt mit Laborluft verändert wird. Nach der STM-Charakterisierung können die Proben wieder in die jeweilige Wachstumskammer zurücktransferiert und dort der Epitaxieprozeß weitergeführt werden.

Literaturverzeichnis

- [1] G. Binning and H. Rohrer, Surf. Sci. 126, 236 (1983)
- [2] P. K. Hansma, J. Tersoff, J. Appl. Phys. 61, R1 (1987)
- [3] Y. Kuk, and P. J. Silverman, Rev. Sci. Instr. 60, 165 (1989)
- [4] J. E. Griffith, G. P. Kochansky, Ann. Rev. Mater. Sci. 20, 219 (1990)
- [5] H. W. M. Salemink, H. P. Meier, R. Ellialtioglu, J. W. Gerritsen, and P. R. M. Muralt, Appl. Phys. Lett. 54 (12), 1112 (1989)
- [6] I. Tanaka, T. Kato, S. Ohkouchi, and F. Osaka, J. Vac. Sci. Technol. A 8 (1), 567 (1990)
- [7] M. D. Pashley, J. Cryst. Growth 99, 473 (1990)
- [8] R. Butz, H. Wagner, K. Besocke, Thin Solid Films 183, 339 (1989)
- [9] B. G. Orr, C. W. Snyder, and M. Johnson, Rev. Sci. Instr. 62 (6), 1400 (1991)
- [10] G. Springholz, G. Bauer, Appl.Phys.Lett., in print
- [11] Reflection High Energy Diffraction and Reflection Electron Imaging of Surfaces, ed. by P. K. Larsen and P. J. Dobson, Nato ASI Series, Plenum Press New York
- [12] R. Stalder, N. Onda, H. Sirringhaus, H. v.Känel, and C.W.T. Bulle-Lieuwma
- [13] G.Springholz, G.Bauer, Phys.Rev.B, submitted.
- [14] W. Faschinger, F. Hauzenberger, P. Juza, H. Sitter, A. Pesek, H. Zajicek, K. Lischka, Mat. Sci. Eng., in print
- [15] W. Faschinger, F. Hauzenberger, P. Juza, A. Pesek, H. Sitter, J. Electron. Mater., submitted

-
- [16] K. Hingerl, W. Jantsch, D. A. As, J. Lilja, P. Juza, M. Toivonen, W. Rothmund, H. Sitter, M. Pessa, *J. Crystal Growth* 117, 341 (1992)