

## 3. Experimenteller Aufbau

Zur Untersuchung von Oberflächen und Wachstumsphänomenen bedarf es spezieller Experimentierbedingungen. Insbesondere die Reproduzierbarkeit der Messungen macht es notwendig, dass die verwendeten Substratoberflächen frei von Verunreinigungen präpariert werden. Das epitaktische Wachstum der verschiedenen Dünnschichtmaterialien erfordert ebenfalls hochreine Bedingungen, um Verunreinigung der Filme durch den Einbau von Fremdatomen zu verhindern. Möglich wird das durch Experimente im Ultrahochvakuum (UHV). Hier kann das Verhältnis von Aufdampftrate und Restgasdruck so gewählt werden, dass ein geringstmögliches Maß an Verunreinigungen in den Film eingebaut wird. Nach der Präparation können über einen Zeitraum von einigen Stunden magnetische Messungen und STM-Untersuchungen zur Morphologie der Filme durchgeführt werden, ohne dass die Oberfläche des Filmes durch Restgasatome zerstört wird.

### 3.1 Die UHV–Anlage

Mit der verwendeten Mehrkammer–UHV–Anlage ist es möglich, Substratoberflächen zu präparieren und Molekularstrahlaufdampfungen beliebiger Materialien vorzunehmen. Die Filmspannung wird *in vivo* mit einer Biegebalkenanordnung gemessen (ISM, engl. Intrinsic Stress Measurement), sowie *in situ* Beugungsexperimente niederenergetischer Elektronen (LEED, engl. Low Energy Electron Diffraction), Augerspektroskopie und Rastertunnelmikroskopie (STM, engl. Scanning Tunneling Microscopy) durchgeführt.

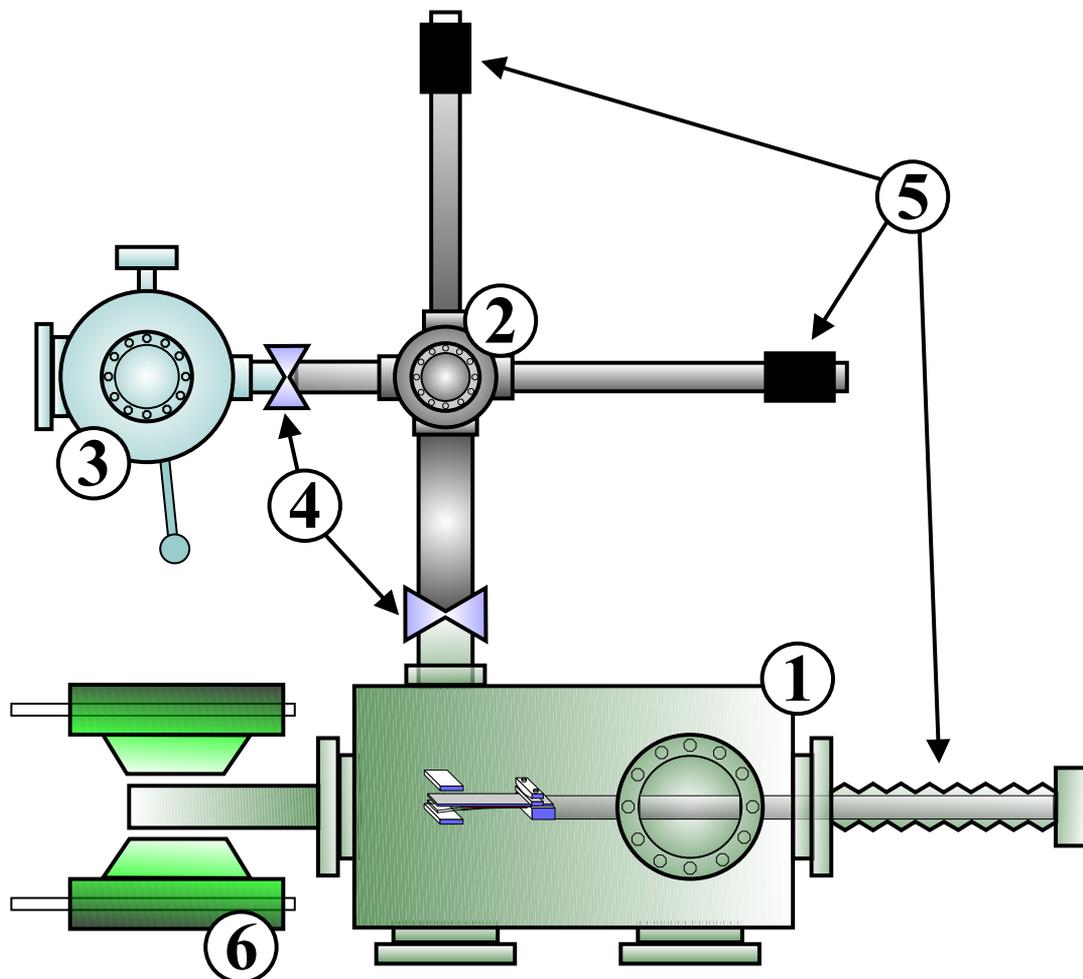
Außerdem ist die Vermessung der Magnetisierung, der magnetischen Anisotropie und der Magnetostriktion magnetischer Kristalle mit dem Biegebalkenmagnetometer möglich.

In **Abb. 3-1** ist eine schematische Draufsicht auf die Messapparatur gezeigt. Die UHV-Anlage besteht aus mehreren, voneinander abtrennbaren Kammern. Als wichtigste Bestandteile sind die Hauptkammer (1), die Transferkammer (2) und die Kammer für das Rastertunnelmikroskop (3) zu nennen. Alle drei Kammern sind untereinander über UHV-Schieber (4) zusammenschaltbar, damit der Probentransfer ohne das UHV zu brechen möglich wird. Die Rezipienten sind aber auch separat evakuierbar, was insbesondere deshalb notwendig ist, um die Transferkammer für das Aus- und Wiedereinschleusen der Proben zu belüften bzw. zu evakuieren und um die STM-Kammer nach erfolgreichem Probentransfer mechanisch vom Rest der Anlage durch Entfernen des Verbindungsrohres vollständig mechanisch zu entkoppeln, damit eine optimale Dämpfung mechanischer Schwingungen gewährleistet werden kann.

Für die magnetischen Messungen befindet sich an der Hauptkammer ein Titanrohr, das zwischen die Polschuhe eines beweglichen Elektromagneten (6) ragt, in das der Messkopf für die magnetischen Messungen eingefahren wird. Der Elektromagnet, der ein maximales Feld von 0,7 Tesla liefert, befindet sich auf einem Schienensystem, damit er bei den für UHV-Kammern notwendigen Ausheizprozeduren wegbewegt werden kann.

Die Hauptkammer wird durch ein dreistufiges Pumpensystem, bestehend aus Drehschieber-Vorpumpe, Öldiffusionspumpe sowie Titansublimationspumpe, evakuiert. Zusätzlich befindet sich an der Kammer eine  $LN_2$ -Kühlfalle, mit der eine Kontamination des Rezipienten durch rückwärtig kriechendes Diffusionspumpenöl verhindert wird. Der Basisdruck in der Hauptkammer ist  $p \leq 1 \times 10^{-10}$  mbar

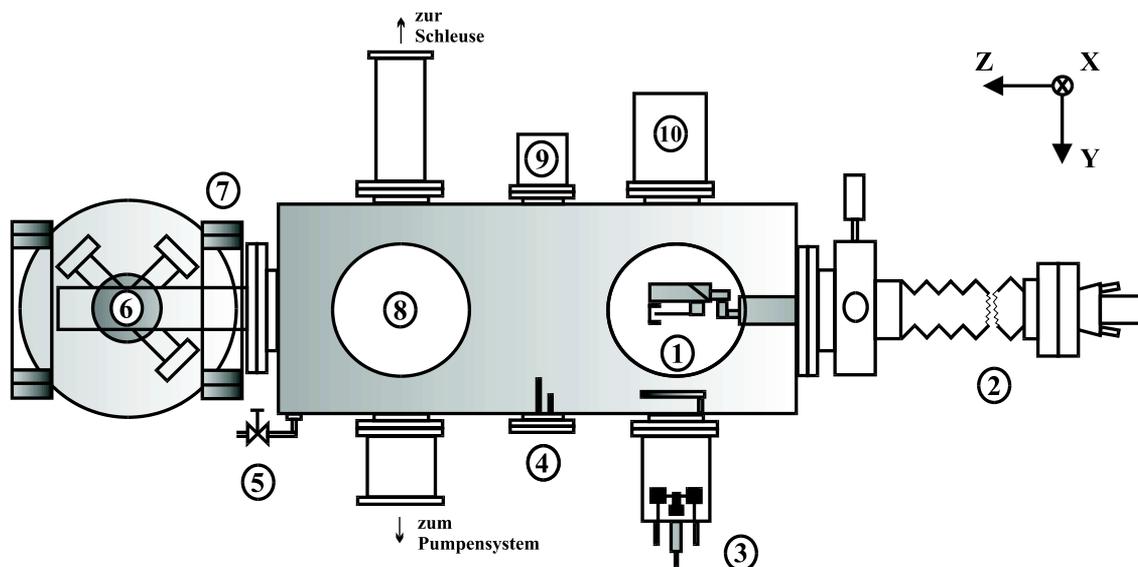
Die Transferkammer wird durch ein zweistufiges Pumpensystem, bestehend aus Drehschieber-Vorpumpe und Turbomolekularpumpe, evakuiert. Die STM-Kammer ist mit einer Ionen-Getterpumpe versehen, bedarf zum Erreichen des dafür notwendigen Arbeitsdruckes beim Erstevakuieren aber der Pumpleistung der Transferkammer. Der Basisdruck in der STM-Kammer ist ebenfalls  $p \leq 1 \times 10^{-10}$  mbar. Die Druckmessung in jeder Kammer erfolgt über Bayard-Alpert Ionisationsmessröhren.



**Abb. 3-1:** Schematische Darstellung der verwendeten Mehrkammer-UHV-Anlage (Draufsicht). (1) Hauptkammer, (2) Transferkammer, (3) STM-Kammer, (4) UHV-Absperrschieber, (5) UHV-Manipulatoren, (6) auf Schienen beweglicher Elektromagnet.

### Die Hauptkammer

Die Hauptkammer ist schematisch in **Abb. 3-2** gezeigt. Der Messkopf befindet sich hier in der Aufdamfposition (1) direkt über dem Molekularstrahlverdampfer (3). Ein differentiell gepumpter UHV-Manipulator mit fünf Freiheitsgraden beinhaltet den eigentlichen Biegebalkenmesskopf mit STM-Referenzsubstrat. Er ermöglicht rechnergesteuert die Rotation der Probe in Richtung des Auger-Elektronenspektrometers (Omicron CMA 100 [86]) (10), Translation in  $z$ -Richtung zur Probencharakterisierung mittels 4-Gitter-LEED-Optik (Omicron SPECTALEED) (8), zum magnetischen Messort (6) und zum



**Abb. 3-2:** Die Hauptkammer der UHV-Anlage, aus [82]. (1) Aufdampfposition, (2) Manipulator, (3) Molekularstrahlverdampfer, (4) Ionisationsmanometer, (5) Belüftungsventil, (6) magnetischer Messort, (7) Helmholtz-Spulenpaar, (8) LEED-Optik, (9) Quadrupolmassenspektrometer, (10) Auger-Elektronenspektrometer.

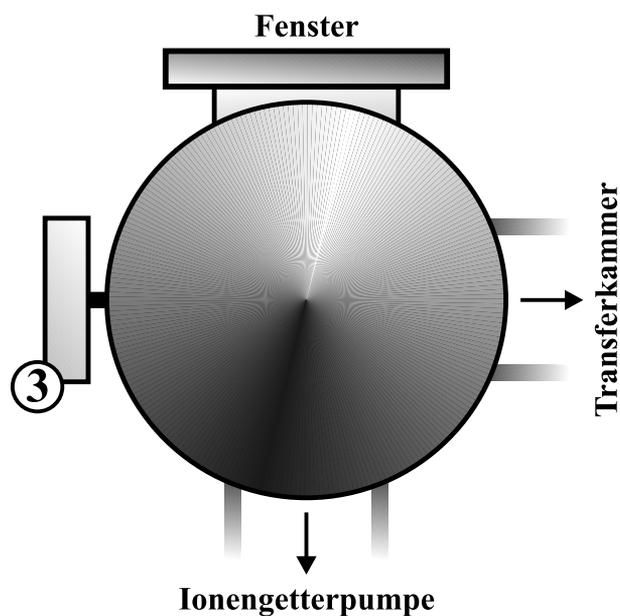
Proben transfer über die Schleusen kammer. Die notwendige  $x$ -, bzw.  $y$ -Positionierung erfolgt manuell mittels zweier Mikrometerstellschrauben. Über den Manipulator kann die Probe durch flüssigen Stickstoff abgekühlt werden.

Der wassergekühlte Molekularstrahlverdampfer (ausführliche Darstellung in [19]) ermöglicht die Evaporation von maximal zwei hochreinen Materialien gleichzeitig, wobei entweder über Elektronenstoß ein in einem Wolframigel befindliches Material verdampft (Fe, Cr), oder direkt z.B. ein Siliziumstab geheizt und dadurch verdampft wird. Die Schichtdicke wird mittels zweier Schwingquarz-Schichtdickenmessenrichtungen der Firma Intellemetrics (IL 820 [87]) bestimmt, damit bei Koverdampfung zweier Materialien beide nominellen Schichtdicken jeweils getrennt vermessen werden können. Die beiden Schwingquarze sind direkt neben dem Messkopf in zwei Kupferblöcken gehalten und über einen dritten Schwingquarz am Probenort geeicht worden. Die relative Messgenauigkeit beträgt  $\pm 10\%$ .

Die im Rahmen der Vermessung magnetischer Eigenschaften notwendige Magnetisierung der Filme am magnetischen Messort erfolgt durch einen wassergekühlten Elek-

tromagneten der Firma Bruker (ER 072WV-S [88]), der ein homogenes Magnetfeld von max. 0,7 T über die gesamte Probenlänge liefert. Das zusätzlich für die Substratauslenkung senkrecht dazu benötigte schwache, homogene Magnetfeld von ca. 10 mT wird dagegen mithilfe eines Helmholtz-ähnlichen Spulenpaares (7) erzeugt. Die Kalibrierung der Magnetfelder erfolgte über eine Hall-Sonde und wird in [81] erläutert.

Mit dieser Magnetfeldkonfiguration können alle in Abschnitt 2.4.2 beschriebenen Messungen durchgeführt werden. Die erforderlichen Bewegungen der Probe und deren Positionierung erfolgt mithilfe des Manipulators. Insbesondere die für die Vermessung der magnetischen Anisotropie notwendige Rotation des Magnetisierungsfeldes erfolgt hierbei über eine Rotation des Probenmesskopfes, da der Elektromagnet mit einem Gesamtgewicht von ca. 1000 kg dafür nicht bewegt werden kann.



**Abb. 3-3:** Die STM Kammer der UHV-Anlage. (1) Annäherungsmechanik, (2) STM-Scanner, (3) Handrad für Annäherung der Probe an die Tunnelspitze, (4) Ionisationsmanometer.

### Die STM-Kammer

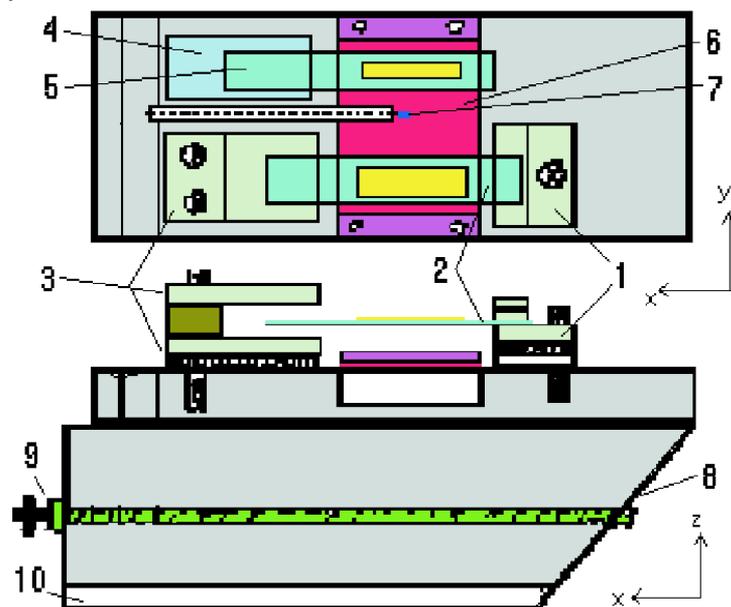
Zur strukturellen Untersuchung der Filme kann das STM-Substrat über die Transferkammer direkt in die STM-Kammer (**Abb. 3-3**) geschleust werden. Dabei wird das UHV nicht gebrochen, d.h. der Restgasdruck ist zu jeder Zeit  $\leq 1 \times 10^{-9}$  mbar. Der

Schleusvorgang dauert etwa 10 Minuten, danach wird die STM-Kammer zur optimalen Schwingungsdämpfung vom Rest der UHV-Anlage mechanisch entkoppelt, d.h. das Transferrohr wird entfernt. Der Druck in der STM-Kammer selbst ist dann stets besser als  $1 \times 10^{-10}$  mbar und erlaubt damit definierte Oberflächuntersuchungen über einige Stunden.

Das STM ist ein Eigenbau-Rastertunnelmikroskop [89], bei dem die Grobannäherung der Probe an die Spitze über eine Keilmechanik (1) erfolgt. Die Vermessung der Oberflächenmorphologie findet bei Raumtemperatur durch eine chemisch geätzte Wolframspitze statt, die an einen piezoelektrischen Scanner (für die drei Scanrichtungen  $x$ ,  $y$ ,  $z$ ) montiert ist (2).

## 3.2 Biegebalkenmessanordnung

Die zentrale Messanordnung, sowohl für die intrinsische Spannungsmessung während des Filmwachstums, als auch für die sich anschließende Biegebalkenmagnetometrie (CBM–Cantilever Beam Magnetometer), ist der Messkopf, in dem zwei separate Proben gehalten sind (**Abb. 3-4**). Das Biegebalkensubstrat (2) ist an einer Seite fest eingespannt (1) und ragt mit dem frei beweglichen Ende zwischen die zwei Metallplatten eines Kondensators (3). An der zweiten Probenhalterung (4) befindet sich das STM–Substrat (5), welches in alle Präparations- und Filmeptaxieschritte identisch miteinbezogen und anschließend für die strukturellen Untersuchungen in das STM transferiert wird. Die Heizung der Proben erfolgt durch Strahlung mithilfe einer Folie (Ta, Dicke  $2\ \mu\text{m}$ ) (6), durch die ein elektrischer Strom fließt (bis max. 10 A). Die Kühlung erfolgt durch flüssigen Stickstoff, der über den Manipulator zugeführt und dessen Kühlleistung mittels einer Wärmekontaktfläche (8) übertragen wird.



**Abb. 3-4:** Skizze des ISM–CBM–Messkopfes, aus [81]. (1) Biegebalkeneinspannung, (2) Biegebalken, (3) Plattenkondensator, (4) STM–Substrathalterung, (5) STM–Substrat, (6) Heizfolie, (7) Thermoelement, (8) Wärmekontaktfläche, (9) Arretierschraube, (10) Platte für elektrische Kontakte.

Die Temperatur wird mittels eines standardisierten Ni–NiCr–Thermoelementes (7) gemessen, das sich über der Heizfolie befindet. Der Aufbau wird von einem Tantalblech kompakt umschlossen, das als Ofen fungiert und ein Strahlungsgleichgewicht im Innern erzeugt. Insgesamt ergibt sich damit ein wirksamer Temperaturbereich von ca. 200 - 1300 K am Probenort.

Oberhalb der Substrate befindet sich eine Blende aus Tantal, die den Molekularstrahl des Verdampfers so auf die Substrate fokussiert, dass eine präzise Filmgeometrie gewährleistet ist. Das ist wichtig für die quantitative Auswertung der Messungen. Da der gesamte Messkopf transferierbar ist, müssen auch alle notwendigen elektrischen Zuleitungen reversibel kontaktiert werden. Dazu befinden sich 8 elektrische Kontaktplatten auf einer Bornitridplatte (10), die auf der Manipulatorgegenseite auf 8 Cu–Be–Federn gepresst werden. Das gewährleistet eine sichere elektrische Kontaktierung.

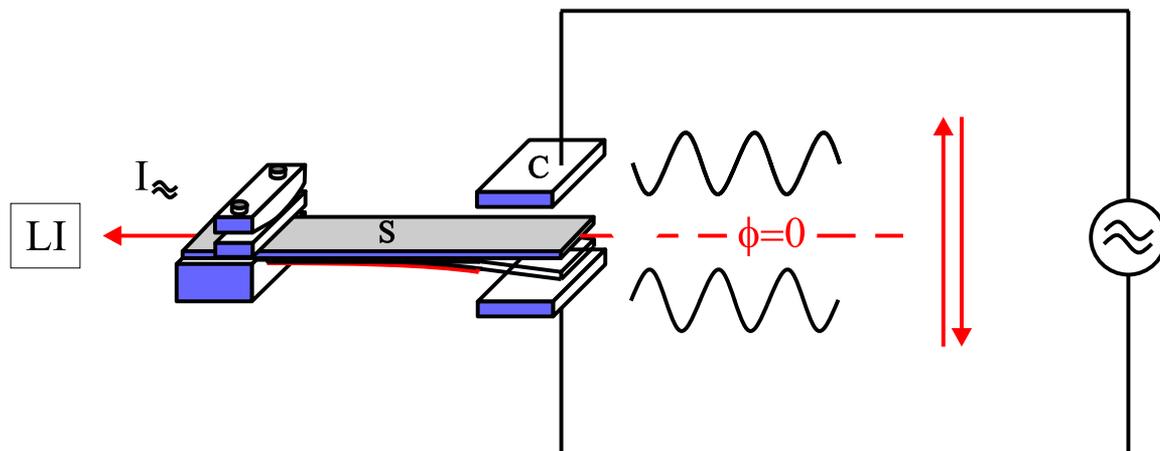
### Differentialkondensatormesselektronik

Die Position des Biegebalkens im Kondensator wird mittels einer Differentialkondensatoranordnung bestimmt (**Abb. 3-5**). Anschaulich wird dazu an die obere Platte eine positive, an die untere eine um 180° phasenverschobene negative Wechselspannung angelegt. In der Mitte des Kondensators ergibt sich ein potentialfreier Bereich, der mittels einer Abgleichbrücke auf die Höhe des Substrates "geschoben" werden kann. Kommt es zu einer Auslenkung des Substrates, wird ein Wechselstrom (Verschiebungsstrom) im Biegebalken induziert. Dieser wird verstärkt und phasenempfindlich als Messsignal ausgewertet.

Der Verschiebungsstrom im Biegebalken hängt von der Position zwischen den stationären Platten ab und berechnet sich in guter Näherung zu [14]:

$$I_E \propto \frac{\epsilon \cdot A \cdot U \cdot \omega \cdot \cos(\omega t)}{d^2} \cdot \Delta z \quad (3.1)$$

Hier ist  $\epsilon$  die Dielektrizitätskonstante des Vakuums,  $A$  die Kondensatorfläche,  $U$  die Spannung mit der Frequenz  $\omega$  an den Kondensatorplatten,  $d$  der Plattenabstand und  $\Delta z$  ist die Auslenkung des Biegebalkens von der Position  $\Phi = 0$  des elektrischen Feldes.

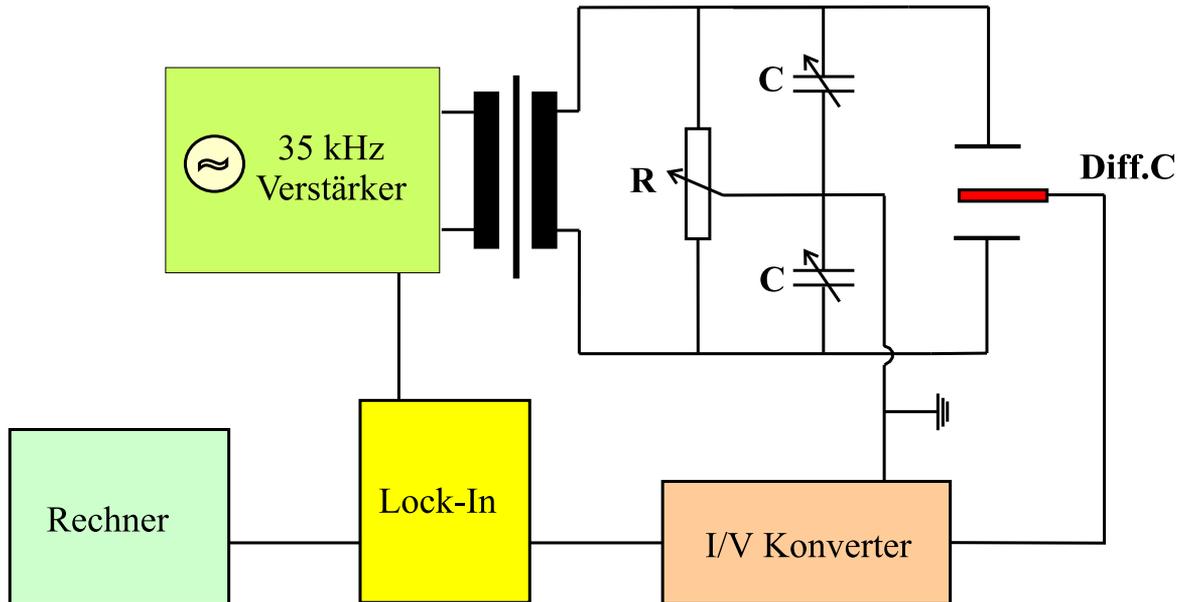


**Abb. 3-5:** Funktionsweise des Differentialkondensators. Die an die Kondensatorplatten angelegte Wechselspannung kann so "geschoben" werden, dass sich auf der Höhe des Biegebalkenssubstrates im Kondensator ein potentialfreier Bereich ( $\Phi = 0$ ) befindet. Der Verschiebungsstrom im Balken ist dann gleich Null, und jede kleinste Auslenkung führt zu einem Signalstrom  $I$ .

Das Messsignal ist direkt proportional zur Kondensatorspannung und zur verwendeten Frequenz.

An dieser Stelle soll näher auf die im Rahmen der Arbeit neuentwickelte Messelektronik eingegangen werden. Ausgangspunkt war eine einfache Differentialkondensatorelektronik, die nach dem erfolgreichen Umbau der gesamten Anlage durch J. Walz [82] dringend einer Verbesserung hinsichtlich des Signal-Rausch-Verhältnisses bedurfte, da ab diesem Zeitpunkt magnetische Messungen für Filmdicken im Monolagenbereich geplant waren. Außerdem kam es infolge des Umbaus der UHV-Anlage zu einer Verkürzung der Biegebalkensubstrate von 35 mm auf 25 mm, was einen deutlichen Verlust an Messempfindlichkeit bedeutet, da die Empfindlichkeit der Biegebalkenanordnung in etwa mit der 2. Potenz der Länge der verwendeten Substrate ansteigt.

Wie in **Abb. 3-6** zu erkennen, wird die Wechselspannung des Generators zunächst verstärkt und über einen Transformator potentialfrei in die Abgleichbrücke eingespeist. Letztere funktioniert im Prinzip wie eine Wheatstone'sche Messbrücke, wobei hier amplituden- (R) und zusätzlich phasenrichtig (C) abgeglichen werden kann. Dadurch lässt sich der Potentialnullpunkt (Masse) exakt auf Höhe des im Differentialkondensator befindlichen Biegebalkens "schieben", also das Messsignal zu Null abgleichen. Jede



**Abb. 3-6:** Schaltplan der Biegebalkenmesselektronik. Mit der Abgleichbrücke kann die Amplitude ( $R$ ) und Phase ( $C$ ) der Differentialkondensatorspannung so verändert werden, dass der Verschiebungsstrom im Differentialkondensator ( $\text{Diff.C}$ ) Null wird.

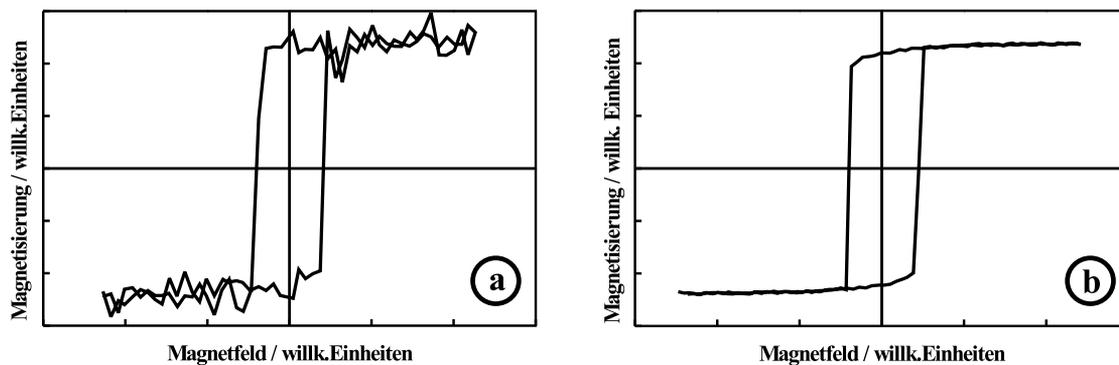
kleinste Auslenkung des Balkens führt zu einem Verschiebungsstrom, der durch einen Strom–Spannungs–Wandler konvertiert und um den Faktor  $10^6$  verstärkt wird. Das Signal gelangt weiter an den Lock–In–Verstärker (EG&G Parc 2051 [90]). Das dort aufbereitete Signal kann vom Messrechner verarbeitet werden.

Die bis zum Beginn dieser Arbeit verwendete Messelektronik für den Differentialkondensator ist unsystematisch, ohne Impedanzanpassung und mit schlechter Abschirmung aufgebaut worden. Beispielsweise wurde mit einem einfachen Eisenkerntrafo gearbeitet, der maximal 3 kHz übertragen konnte. Als Signalquelle wurde der Sinusgenerator des Lock–In–Verstärkers genutzt, der eine Ausgangsspannung von maximal  $2 \hat{V}$  bei  $600 \Omega$  Impedanz zur Verfügung stellte. Eine Impedanzanpassung zwischen der Quelle und dem Trafo (und damit verlustfreie Leistungsübertragung) gab es nicht, weshalb die an den Kondensatorplatten anliegende Spannung letztlich nur ca.  $10 \hat{V}$  betrug.

In intensiver Zusammenarbeit mit der hauseigenen Elektronikwerkstatt erfolgte der Neubau der Abgleichereinheit mit einem qualitativ hochwertigen Signalgenerator, der außer der Grundfrequenz keine weiteren Fourierkomponenten enthält und lediglich ein Referenz–TTL–Signal an den Lock–In ausgibt. Das Generatorsignal gelangt weiter an

einen Leistungsverstärker, an dessen niederohmigem Ausgang ein impedanzangepasster Ferritkern–Trafo angeschlossen ist. Die Abgleichbrücke kann damit verlustfrei bei einer hohen Frequenz (35 kHz) betrieben werden, die nur durch die Nichtlinearität des I–U–Konverters und des Lock–In begrenzt wird. Außerdem sind hochpräzise, extrem temperaturstabile Hochspannungs–Glimmerkondensatoren eingebaut worden. Damit ist es möglich, die Abgleichbrücke bei einer Spannung von  $300 \hat{V}$  zu betreiben.

In der Summe führten diese Umbaumaßnahmen zu einer Erhöhung der Messempfindlichkeit, die in **Abb. 3-7** an Hand der Magnetisierungshysterese eines 37 nm Fe–Films demonstriert ist. Hierbei wurde die Hysterese einmal mit der alten (a) und anschließend mit der neu aufgebauten (b) Elektronik gemessen. Zu erkennen ist die deutliche Verbesserung des Signal–Rausch–Verhältnisses.



**Abb. 3-7:** Magnetisierungshysterese eines 37 nm Fe–Filmes: (a) alte und (b) neue Messelektronik.

### 3.3 Versuchsdurchführung und Probenpräparation

Alle Experimente wurden in der UHV-Anlage bei einem Basisdruck  $\leq 1 \times 10^{-10}$  mbar durchgeführt. Die Qualität der Substratpräparation wurde mittels LEED kontrolliert. Vor Beginn der Filmdeposition bedurfte es einer Thermostatisierung des Messkopfes auf die gewünschte Wachstumstemperatur. Das Messsignal des Biegebalkens reagiert sehr empfindlich auf kleinste mechanische Veränderungen durch einen Temperaturgang (Drift), so dass hier stets eine Beruhigung des statischen Messsignals abgewartet werden musste.

Für die Molekularstrahlaufdampfung wurden die Verdampfermaterialien aus einem selbstgebauten, wassergekühlten Elektronenstrahlverdampfer evaporiert [19]; Fe und Cr direkt aus einem Wolframtiegel, Ge aus einem Bornitridtiegel im Wolframtiegel und Si direkt von einem eingespannten Siliziumstab. Die Aufdampfrate lag für alle Materialien bei ca.  $(0,008 \pm 0,002)$  nm/s bei einem Restgasdruck von  $p \leq 2 \times 10^{-9}$  mbar.

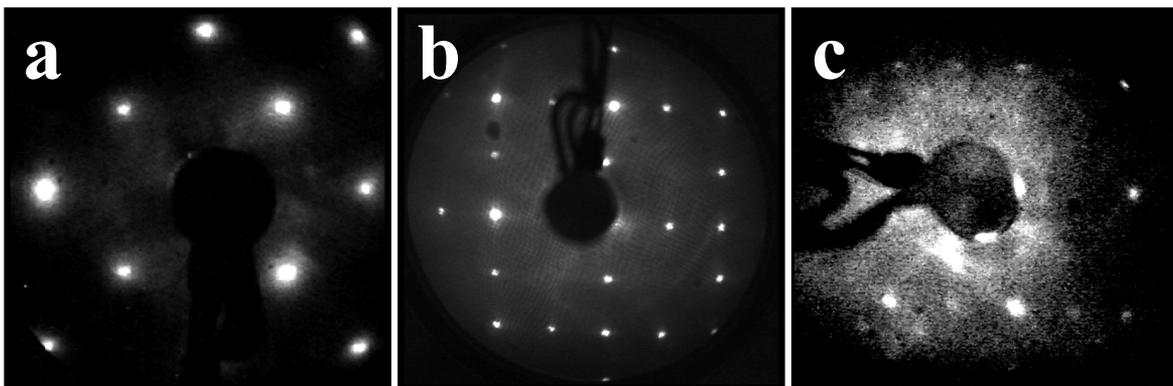
Nach der Filmepitaxie wurde der Messkopf für die magnetischen Messungen am magnetischen Messort positioniert und mit dem hochempfindlichen Biegebalkenmagnetometer Magnetisierung, magnetische Anisotropie und magnetoelastische Kopplung vermessen. Für STM-Untersuchungen der Filmmorphologie konnte schließlich das STM-Substrat über die Schleusenkammer in die STM-Kammer transferiert werden. Der Transfer dauerte 10 Minuten bei einem Druck von  $p \leq 1 \times 10^{-9}$  mbar.

Die verschiedenen verwendeten Substrate bedürfen unterschiedlicher Präparationsmethoden, um dem zu wachsenden Filmmaterial im UHV eine wohldefinierte und atomar flache Oberfläche anzubieten. Als Magnesiumoxidsubstrate wurden kommerzielle MgO(001)-Kristalle der Firma CrysTec [91] verwendet. Die Abmessungen betragen  $25 \times 5 \times 0,15$  mm<sup>3</sup> für die Biegebalken und  $10 \times 5 \times 0,15$  mm<sup>3</sup> für die STM-Proben. Die Substrate wurden zunächst für ca. 10 Stunden in einem Quarzglasrohr unter Sauerstoffatmosphäre bei 1300 K getempert, um die Oberfläche mit Sauerstoff anzureichern und zu rekristallisieren. Anschließend wurde auf die Rückseite des Biegebalkensubstrates in einer Hochvakuum-Sputteranlage eine ca. 100 Å dicke Pt-Messelektrode aufgetragen. Auf die Vorderseite des STM-Substrates wurde eine kurze Pt-Elektrode zur elektrischen

Kontaktierung des im STM zu untersuchenden Filmes aufgebracht. Anschließend sind die Proben zügig ins UHV transferiert und bei ca. 600 K 10 Minuten ausgegast worden. Im LEED konnte danach ein wohlgeordnetes Beugungsbild der  $(1 \times 1)$  MgO(001)–Oberfläche mit scharfen Reflexen beobachtet werden (**Abb. 3-8a**).

Für die Siliziumsubstrate wurden kommerzielle, n–dotierte Wafer ( $\rho \leq 4 \Omega\text{m}$ ) der Firma Wacker Chemitronic [92] verwendet, die ebenfalls von der Firma CrysteTec auf die geforderten Abmaße zugeschnitten und poliert worden sind. Die Präparation erfolgte hier im UHV, wobei die Proben und der Probenhalter zunächst bei 800 K für mehrere Stunden ausgasen waren. Anschließend wurde der Ofen am Messkopf für etwa 10 min auf 1300 K hochgeheizt, um die Si–Oxidschicht abzuspalten. Im Anschluss daran wurden auch hier stets Beugungsbilder mit scharfen LEED–Reflexen der  $(1 \times 2)$ –Überstruktur der Si(001)–Oberfläche auf beiden Substraten beobachtet (**Abb. 3-8b**).

Die GaAs-Substrate wurden in enger Zusammenarbeit mit dem Paul–Drude–Institut [93] vorbereitet. Dazu sind zunächst kommerzielle, undotierte GaAs–Wafer in einer dort vorhandenen hochreinen MBE–Anlage mit einer dünnen As–Schicht bedeckt worden. Anschließend wurden die Substrate mit den o.a. Abmessungen von Hand zugeschnitten und wegen ihrer nicht vorhandenen elektrischen Leitfähigkeit ebenfalls mit Pt–Elektroden versehen. Danach erfolgte zügig der Transfer ins UHV. Zur Präparation musste die As–Deckschicht bei ca. 750 K abgespalten werden. Dazu wurde der Ofen zunächst auf 600 K geheizt und später auf 750 K hochgefahren. Unter Beachtung des Restgasdruckes



**Abb. 3-8:** Typische LEED–Aufnahmen der verwendeten Substrate nach der Präparation. (a) MgO(001) bei 142 eV, (b) Si(001) bei 55 eV, (c) GaAs(001) bei 123 eV.

( $p \leq 5 \times 10^{-9}$  mbar) konnte nach wenigen Minuten abgekühlt und im LEED routinemäßig die Spots der GaAs(001)-Oberfläche beobachtet werden (**Abb. 3-8c**). Entsprechend einer Anleitung zur Präparation Ga-reicher Oberflächen wurden einige Substrate danach bei 800 K getempert [59].