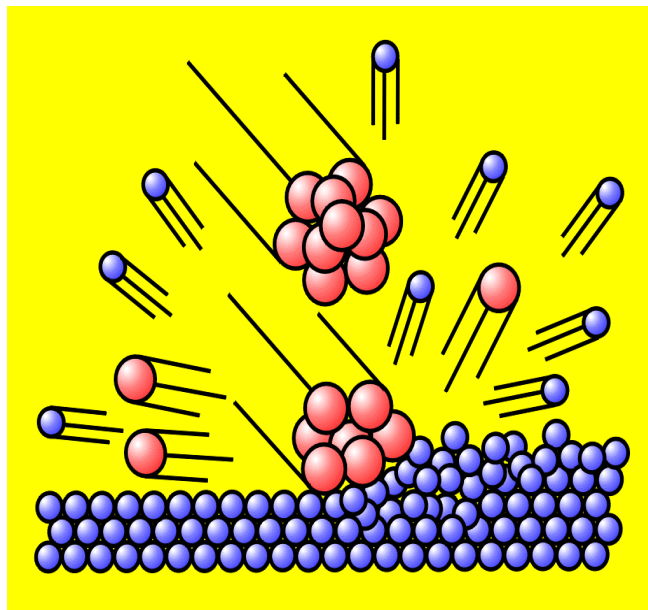


Clustersputtern an optischen Oberflächen



Dissertation
von
Eva Oettinger

Universität Konstanz
Mathematisch-Naturwissenschaftliche Sektion
Fachbereich Physik

Titelbild: Logo des Clusterspatterprojekts – „Cluster sputtern eine Oberfläche“
Entwurf und Design: Davor Stolicic, 1997

Copyright © 1997 AG Ganteför, Universität Konstanz

Clustersputtern an optischen Oberflächen

Dissertation
zur Erlangung des akademischen Grades
des Doktors der Naturwissenschaften
(Dr. rer. nat.)
an der Universität Konstanz
im Fachbereich Physik

vorgelegt von

Eva Oettinger

Tag der mündlichen Prüfung: 19. Juli 2001

Referent: Prof. Dr. Gerd Ganteför
Referent: Prof. Dr. Paul Leiderer

Konstanz im Juli 2001

Inhaltsverzeichnis

1	Motivation für das Clustersputtern an optischen Oberflächen	7
1.1	Was ist Clustersputtern ?	7
1.2	Anwendungsrelevanz von Clustern	8
1.3	Clusterionenstrahlen als Präzisionswerkzeug	10
1.4	Clustersputtern im Fokus der Optikindustrie	13
1.5	Zielsetzung der vorliegenden Arbeit	15
2	Optische Oberflächen	16
2.1	Lichtstreuung und Mikrorauhigkeit	17
2.1.1	Lichtstreutheorien	17
2.1.2	Funktional-Integral-Beschreibung rauher Oberflächen	20
2.1.3	Leistungsdichtespektrum (Power Spectral Density Spektrum)	21
2.2	Röntgenspiegel für die SXPL-Technologie	29
2.3	Messung von Mikrorauhigkeit	33
3	Forschungsstand – Clustersputtern	36
3.1	Clustersputter-Apparaturen	37
3.2	Sputteryield – Physikalisches Sputtern	39
3.2.1	Sputterexperimente mit CO_2^+ und Ar_N^+ Clusterionen an verschiedenen Targetmaterialien	39
3.2.2	Energieabhängigkeit der Sputteryield	42
3.2.3	Dosisabhängigkeit der Sputteryield	43
3.2.4	Sputteryield unter Variation des Einschußwinkels θ	43
3.3	Glättungseffekt – Physikalisches Sputtern	45
3.3.1	Glättungseffekt für verschiedene Targetmaterialien	45
3.3.2	Energieabhängigkeit der Mikrorauhigkeit	46
3.3.3	Dosisabhängigkeit der Mikrorauhigkeit	47
3.3.4	Mikrorauhigkeit unter Variation des Einschußwinkels θ	49
3.4	Reaktives Sputtern mit $(\text{SF}_6)_N^+$ Clusterionen	50
3.5	Winkelverteilung gesputterter Targetteilchen: Lateral Sputtering	52
3.6	Beschreibungsmodelle und Simulationen zum Clustersputterprozeß	54
3.6.1	Anschauliche Beschreibung	54
3.6.2	Simulationsmethoden	56

INHALTSVERZEICHNIS

4	Experimenteller Aufbau	62
4.1	Clustererzeugung	62
4.1.1	Wie bildet sich ein Düsenstrahl aus ?	62
4.1.2	Clusterkondensation	65
4.1.3	Skalierungsgesetz nach Hagena	68
4.2	Apparaturdesign	72
4.2.1	Vakuumsystem	73
4.2.2	Clusterionenquelle – Düsendesign – Clusterionisation	75
4.2.3	Ionenoptik – Massenfilterung mit Sektormagnet	78
4.2.4	Sputterkammer	82
5	Analysewerkzeuge	83
5.1	Interferometrie	83
5.1.1	Funktionsweise eines Fizeau-Interferometers	83
5.1.2	Bestimmung der Sputteryield	86
5.2	Atomkraftmikroskopie (AFM)	88
5.2.1	Prinzipielle Funktionsweise eines Atomkraftmikroskops	89
5.2.2	Physikalische Konzepte der Kraftmikroskopie	90
5.2.3	Messung im Tapping-Mode	92
5.2.4	Bestimmung von RMS-Wert und PSD-Spektrum	96
5.3	Photoelektronenspektroskopie (XPS)	98
6	Ergebnisse und Diskussion	100
6.1	Glättung auf Mikrometer-Skala	100
6.2	Glättung auf Nanometer-Skala	101
6.3	Glättung auf Sub-Nanometer-Skala	103
6.3.1	Sputtern mit $(\text{CO}_2)_\text{N}^+$ an Si(100)-Wafern	103
6.3.2	Diskussion	106
6.4	Systematische Untersuchungen an polierten und oxidierten Si(100)-Wafern	108
6.4.1	$(\text{CO}_2)_\text{N}^+$ -Sputtern unter Variation von Clustergröße N	109
6.4.2	Reaktives Sputtern mit Kohlenwasserstoffen Aufrauh-Effekte	110
7	Zusammenfassung & Ausblick	115
	Literaturverzeichnis	118
	Danksagung	123

1 Motivation für das Clustersputtern an optischen Oberflächen

Dieses einleitende Kapitel soll erläutern, warum es interessant ist, Clustersputter-Experimente an optischen Oberflächen durchzuführen. Dazu muß zunächst erklärt werden, was Cluster sind und was man unter Clustersputtern versteht. Anschließend wird ganz allgemein über die Anwendungsrelevanz von Clustern und Clusterionenstrahlen referiert und dabei im Speziellen auf deren Anwendung im Bereich der Oberflächenbearbeitung eingegangen. Zum Schluß dieses Kapitels ist schließlich das Interesse der Optikindustrie am Clustersputtern dargestellt, da die vorliegende Arbeit im Rahmen eines von der Optikindustrie[⊗] finanziell unterstützten Projekts durchgeführt wurde.

1.1 Was ist Clustersputtern ?

Ein **Cluster** ist ein Teilchen aus N Monomeren. Unter dem Begriff des Monomers subsumiert man hier sowohl Atome als auch Moleküle, wobei es sich um verschiedene oder gleiche Monomersorten handeln kann. Die Zahl N kann von 3 bis 100000 reichen. Dabei unterscheidet man die folgenden Größenklassen [Reck1995]:

- **Mikrocluster** ($N = 3 \dots 12$). Für diese kleinsten Cluster sind Konzepte und Methoden der Molekülphysik noch brauchbar.
- **Kleine Cluster** ($N = 13 \dots 100$). Molekulare Beschreibungskonzepte verlieren hier ihre Brauchbarkeit. Andererseits kann man aber auch noch keinerlei festkörperphysikalischen Konzepte anwenden. Mit jedem weiter angelagerten Monomer können sich die Eigenschaften dieser kleinen Cluster vollständig ändern [Müll2001].
- **Große Cluster** ($N = 100 \dots 1000$). In diesem Größenbereich ist ein gradueller Übergang zu den Eigenschaften des Festkörpers beobachtbar.
- **Kleine Teilchen bzw. Mikrokristalle** ($N \geq 1000$). Einige, allerdings noch nicht alle, Festkörpereigenschaften haben sich entwickelt.

Im Rahmen dieser Arbeit wird mit großen Clustern gearbeitet. Dabei ist ihre Masse von Interesse bzw. im Falle von einfach geladenen Clusterionen ihr großes Masse-zu-Ladungs-

[⊗] Das Clustersputterprojekt der AG Prof. Dr. G. Ganteför an der Universität Konstanz wurde von der Firma Carl Zeiss (Oberkochen), unter Vorgabe der Aufgabenstellung, finanziell gefördert.

verhältnis. Aufgrund dieser Eigenschaft sind Aufladungseffekte beim Bestrahlen von elektrisch nicht-leitenden Targets mit Clusterionen vernachlässigbar, was bei Atomionen vergleichsweise problematisch ist. Außerdem ist der Massefluß bei Clusterstrahlen höher als bei Atomstrahlen, was für einige Anwendungen im Bereich der Beschichtung von Oberflächen wichtig sein kann. Neben den verschiedenen Größenklassen gibt es bei Clustern natürlich auch unterschiedliche Stoffklassen. So kann man z.B. Edelgascluster und Metallcluster unterscheiden. Bei Edelgasclustern sind die Edelgasatome über die Van-der-Waals-Wechselwirkung nur schwach gebunden. Als Metallcluster bezeichnet man Cluster aus Atomen, die im Festkörperverband metallische Eigenschaften zeigen. Diese zeigen aber als Cluster bezüglich ihrer elektronischen Struktur nicht unbedingt metallische Eigenschaften.

Was ist nun unter **Clustersputtern** zu verstehen? Die vorliegende Arbeit befaßt sich mit Oberflächen, insbesondere polierten und an Luft oxidierten Si(100)-Wafern, die mit Van-der-Waals-Clustern aus Kohlendioxidmolekülen bzw. Argonatomen bestrahlt werden. Die Energie der Cluster ist derart gewählt, daß an den bestrahlten Targets ein sog. Sputterprozeß stattfindet. Unter einem Sputterprozeß versteht man zunächst ganz allgemein den Materialabtrag an der Oberfläche eines Festkörpers, der auftritt, wenn man den Festkörper mit energiereichen Teilchen beschießt. Handelt es sich bei diesen Teilchen um Cluster bzw. Clusterionen, dann spricht man vom Clustersputtern im Unterschied zum Atomspattern, bei dem mit Atomionen gearbeitet wird. Mit dem Begriff der Sputteryield ist die Materialabtragsrate gemeint.

Da in der vorliegenden Arbeit Experimente zum rein physikalischen Clustersputterprozeß durchgeführt werden sollten, wurde ganz bewußt mit Ar_N^+ bzw. $(\text{CO}_2)_N^+$ Clusterionen gearbeitet. Bei diesen beiden Clustersorten sind chemische Reaktionen zwischen den Clusterionen und dem bestrahlten Target auszuschließen, denn Argon ist ein Edelgas und CO_2 -Moleküle besitzen eine vergleichsweise hohe Bindungsenergie, so daß im Bereich der hier auftretenden Energien keine Abspaltung einzelner Kohlenstoff- oder Sauerstoffmoleküle auftreten sollte. Man studiert den physikalischen Sputterprozeß unbeeinflusst von chemischen Effekten. Schließlich wird im Bereich des Atomionensputterns meist Argon verwendet, so daß die Verwendung von Ar_N^+ Clusterionen einen direkter Vergleich zwischen Atom- und Clustersputtern erlaubt.

1.2 Anwendungsrelevanz von Clustern

Cluster bieten ein starkes Anwendungspotential im Bereich moderner Technologien, wobei hier die Präzisions-Oberflächenbearbeitung mittels Clusterionenstrahlen ausgeklammert wird und eigens in Kap.1.3 extra abgehandelt. In den folgenden Bereichen also haben Cluster Anwendungsrelevanz:

- **Neue Materialien.** Man sucht als Materialbausteine Cluster, die chemisch stabil sind und im Kontakt miteinander nicht verschmelzen. Ein C_{60} -Buckyball z.B. ist genau so ein geeigneter Baustein – aus ihm läßt sich z.B. Fullerit herstellen. Solche neuen Er-

scheinungsformen der Materie können ganz außergewöhnliche Eigenschaften besitzen [Krot1985][Krät1990]. Kohlenstoff-Nanotubes wären z.B. aufgrund ihrer Architektur im makroskopischen Maßstab eine wahre Freude für jeden Bauingenieur – Materialien aus einem „Geflecht“ von Nanotubes könnten sehr reißfest sein [Dres2001].

- **Neue Farben.** Die Veränderung der elektronischen Struktur mit der Clustergröße äußert sich z. B. darin, daß die Farbe von Halbleiter-Metallpartikeln allein durch Veränderung der Größe nahezu beliebig eingestellt werden kann. In Abb.1-1 ist die Fluoreszenz mehrerer kolloidaler CdTe-Proben unterschiedlicher Teilchengröße zu sehen. Von grün bis rot ist hier die Farbe allein über die Partikelgröße einstellbar [Roga1999][Roga2000][Gao2000]. In den vergangenen Jahren wurde eine Vielzahl von Halbleiter-Materialien in Form von Nanopartikeln synthetisiert. Gegenwärtig wird im Rahmen zahlreicher Kooperationen versucht, diese neuartigen Fluoreszenzeigenschaften zum Markieren in biologischen Systemen, zum Bau von Leuchtdioden, zur Entwicklung von Lasern und optischen Verstärkern im Telekommunikationsbereich einzusetzen.
- **Oberflächenbeschichtung.** Man kann ganz einfach den hohen Massefluß in Clusterstrahlen im Vergleich zu Atomstrahlen dazu nutzen, Oberflächen zu beschichten. Derart hergestellte Schichten können Besonderheiten zeigen:
 - die Eigenschaften solcher Beschichtungen unterscheiden sich eventuell erheblich von aufgedampften Coatings etwa in ihrer hohen mechanischen Belast- und Polierbarkeit oder ihrer Härte [Habe1996][Qian1998].
 - die Beschichtung von elektrisch isolierenden Materialien wie Teflon, Papier oder Keramiken wird möglich, da Aufladungseffekte bei Clusterstrahlverfahren vernachlässigbar sind [Habe1996].



Abb.1-1: Fluoreszenz mehrerer kolloidaler CdTe-Proben unterschiedlicher Teilchengröße. Von grün bis rot ist hier die Farbe allein über die Partikelgröße einstellbar [Well2001].

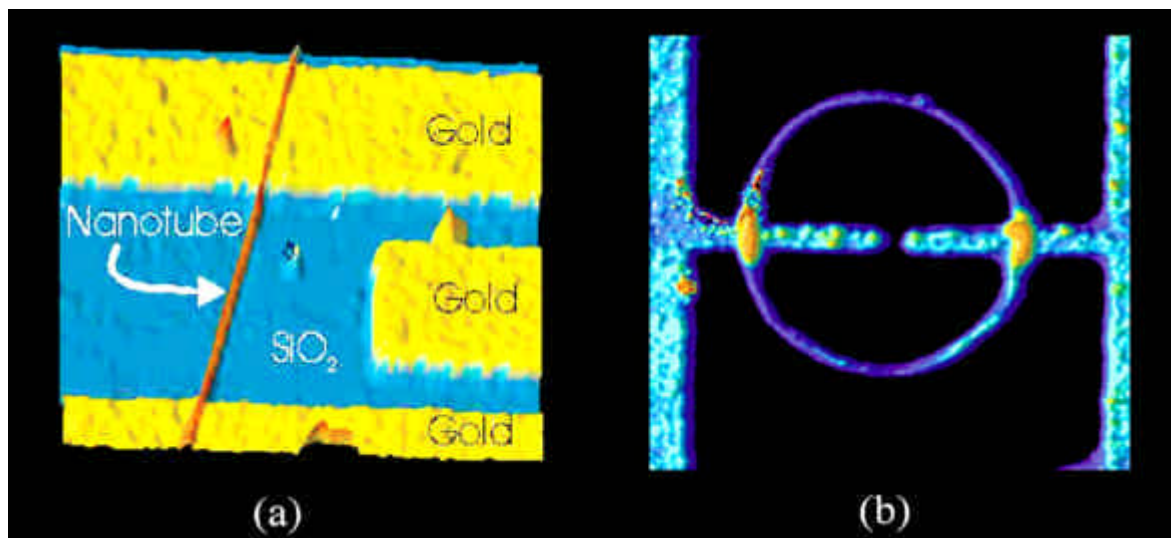


Abb.1-2: Zwei elektronische Bauelemente mit Nanotubes: (a) Feldeffekt-Transistor [IBM2001a] (b) Ringelektrode [IBM2001b].

- **Elektronische Bauelemente.** Bei Clustern kann man über die Größe gerade die elektronischen Eigenschaften gezielt einstellen. Mit der immer weiter fortschreitenden Integrationsdichte bei Schaltkreisen, ist der Bau von elektronischen Bauelementen im Nanomaßstab mit Clustern denkbar. Zwei Beispiele sind in Abb.1-2 zu sehen, nämlich ein Nanotube-Feldeffekt-Transistor und eine Nanotube-Ringelektrode, an Massenproduktion ist hier allerdings bisher noch nicht zu denken [IBM2001a][IBM2001b].
- **Dotierung dünner Schichten.** Speziell im Bereich der CMOS-Fabrikation werden enorme Anstrengungen unternommen, Methoden zur Ionenimplantation bei sehr geringen Energien zu entwickeln. Man möchte dünne Schichten dotieren. Auch hier ist wieder der hohe Massefluß und das große Masse-zu-Ladungsverhältnis bei Clusterionen von Vorteil. So ist es mit Clusterionenstrahlen bereits gelungen, Source und Drain bei einem kleinst-dimensionierten MOSFET zu dotieren [Take1997][Yama1999].

1.3 Clusterionenstrahlen als Präzisionswerkzeug

In diesem Abschnitt soll das Potential von Clusterionenstrahlen als Präzisionswerkzeug zur Oberflächenbearbeitung diskutiert werden. In Abhängigkeit von der kinetischen Energie pro Clustermonomer, aber auch zusätzlich in Abhängigkeit von der Clustermasse, kann man die Prozesse, die beim Beschuß einer Oberfläche mit Clusterionen ablaufen, klassifizieren. Man kann mit Clustern Oberflächen reinigen oder auf denselben Krater erzeugen. Man kann man genauso gut Clustermaterial auf der Oberfläche deponieren, von derselben Material abtragen und zugleich glätten oder schließlich dünne Schichten dotieren. Welcher Prozeß bei welchen Bedingungen abläuft, ist in Diagramm Abb.1-3 dargestellt – die Übergänge zwischen den unterschiedlichen Regimes sind fließend.

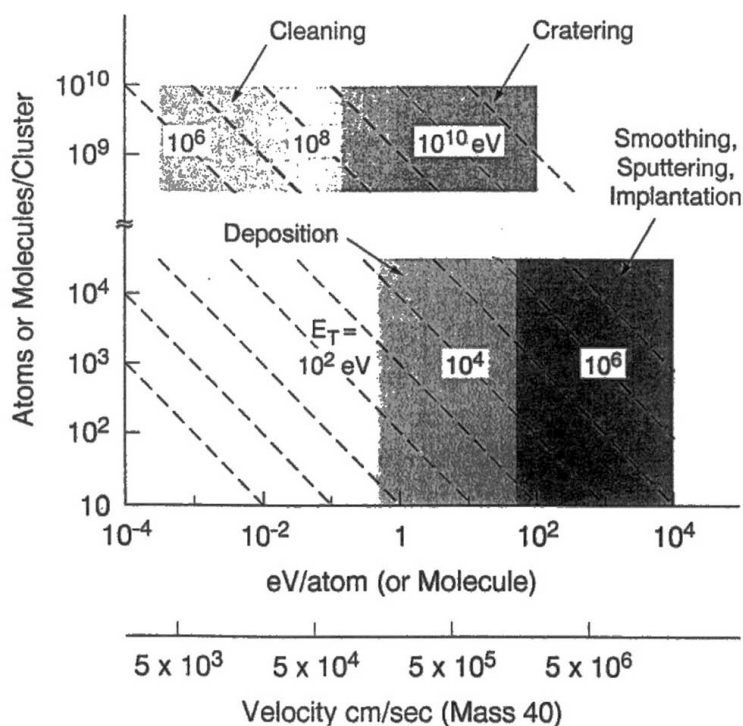


Abb.1-3: Übersicht über die verschiedenen Prozesse beim Clusterionenbeschuss von Oberflächen. Nach oben ist die Clustergröße angegeben - unterbrochen, um sehr große Aerosol-Cluster genauso wie viel kleinere Cluster zu berücksichtigen. Die diagonalen gestrichelten Linien deuten die Gesamt-Clusterenergie an. Die Grenzen zwischen den Bereichen sind natürlich in Wirklichkeit fließend [Brow1995].

Mit Clusterionenstrahlen kann man im Bereich von riesigen Clustern mit $N = 10^8 \dots 10^{10}$ und Energien im Bereich von 10^{-3} eV pro Clustermonomer Oberflächen reinigen, wie man es auch mit Atomionen zur Säuberung von Substraten macht. Bei Energien von 10 eV pro Clustermonomer erzeugen solche riesigen Cluster dann einfach Krater auf der beschossenen Oberfläche. Wenn man nun mit kleineren Clustern bis $N = 10^5$ arbeitet, deponiert man im Bereich von wenigen eV pro Clustermonomer das Clustermaterial auf der Targetoberfläche. Mit fließendem Übergang erreicht man bei 5...10 eV pro Clustermonomer den Bereich, in dem die Clusterionen Material abtragen und eine Glättung der bearbeiteten Oberfläche auftreten kann. In genau diesem Clustersputter-Regime wird im Rahmen der vorliegenden Arbeit experimentiert. Bei Energien von mehr 50 eV pro Clustermonomer beginnt man schließlich, Clustermaterial in die obersten Schichten des Targets zu implantieren.

Im Wesentlichen sind es zwei spezielle Effekte, die das Clustersputtern für die Anwendung im Bereich der Präzisions-Oberflächenbearbeitung so interessant machen: eine vergleichsweise hohe Sputteryield und der nachweisbare Glättungseffekt an gesputterten Oberflächen. Die hohe Sputteryield beim Clustersputtern eröffnet einen neuen Weg zur Präzisionsformgebung. Bisher z.B. erhalten mechanisch vorbearbeitete optische Linsen „ihren letzten Schliff“ mittels Atomionenbestrahlung. Nach der interferometrischen Analyse von Form-

ungenauigkeiten, werden Präzisionskorrekturen mit Atomionenstrahlen vorgenommen: man sputtert die Unebenheiten weg. Eine enorme Rationalisierung würde es nun bedeuten, wenn man die mechanische Formgebung, das mechanische Polieren und schließlich die Atomionenpräzisionsbearbeitung einsparen und alle drei Schritte mit dem Clustersputtern erledigen könnte. Außerdem ergäbe sich auf diese Weise eine Möglichkeit, beliebige Oberflächenformen herzustellen, was bisher nicht möglich ist. Der Glättungseffekt schließlich läßt das Clustersputtern als Präzisionspolierverfahren geeignet erscheinen. Der Nachweis der Glättung ist bei unterschiedlichsten Materialien gelungen (siehe Kap.3). Zur Veranschaulichung dieses Glättungseffektes sind in Abb.1-4 polykristalline Siliziumoberflächen vor und nach dem Sputtern mit Atom- bzw. Clusterionen im Vergleich abgebildet. Der mittlere R_a -Rauheitswert wird einen ganzen Größenordnungsbereich kleiner, wenn man statt mit Atomionen mit Clusterionen sputtert.

Zu Oberflächen einer mittleren Rauigkeit unterhalb von 0.300 nm gibt es allerdings kaum Untersuchungen und genau hier setzt die vorliegende Arbeit an: es soll herausgefunden werden, ob das Clustersputtern ein geeignetes Präzisionspolierverfahren auf Sub-Nanometerskala darstellt – ein Bereich, in dem es noch einigen Forschungsbedarf gibt.

Neben der Präzisionsformgebung und Polierung optischer Komponenten ist auch eine Nanostrukturierung von Oberflächen mittels Clusterionensputtern denkbar. So hat D. Stoljæ mit Kolloid-Masken experimentiert [Stol2000]. In Abb.1-5 ist ein Ergebnis gezeigt. Hier wurde eine 250nm-Kolloidmaske auf einer Siliziumoxidoberfläche aufgebracht und diese dann mit $(\text{CO}_2)^+_{5000}$ -Clusterionen einer kinetischen Energie von 6 eV pro Clustermonomer gesputtert. Die Kolloidmaske erlaubt den Materialabtrag nur in den unmaskierten Kolloid-Zwischenräumen. Dabei entsteht eine Nanostruktur aus quasi „gestanzten“ Dreiecken mit runden Seiten. Gemäß neuer Simulationen [Yama2000] soll sogar unmaskiert alleine mittels des Clustersputterprozesses bei Oberflächen mit schlechter Diffusion von Oberflächenatomen eine periodische Nanostrukturierung im Bereich von 10...20 nm möglich sein, also die Erzeugung von Quantendots. Dies ist eine interessante Vorhersage im Bereich von selbstorganisierten Nanostrukturierungsprozessen (Kap.3).

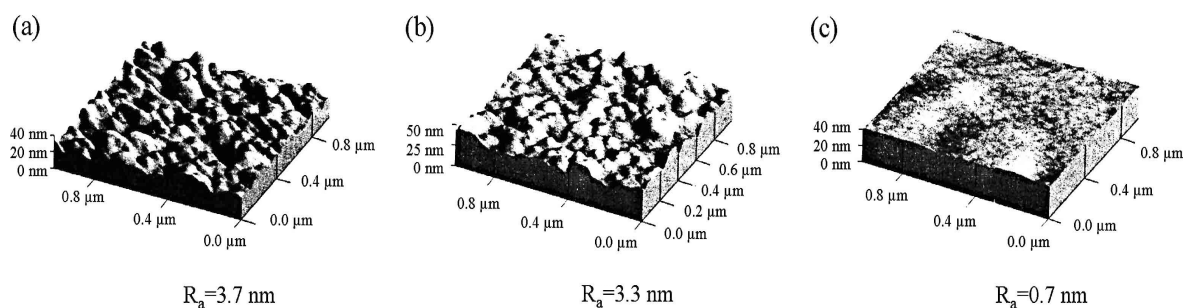


Abb.1-4: AFM-Bilder von polykristallinen Siliziumoberflächen [Yamag1995]: (a) unbehandelt (b) mit CO_2^+ Monomerionen gesputtert und (c) mit $(\text{CO}_2^+)_{N \geq 50}$ Clusterionen gesputtert. In (a) und (b) wurde jeweils mit 10 keV und $5 \cdot 10^{15}$ Ionen / cm^2 gesputtert.

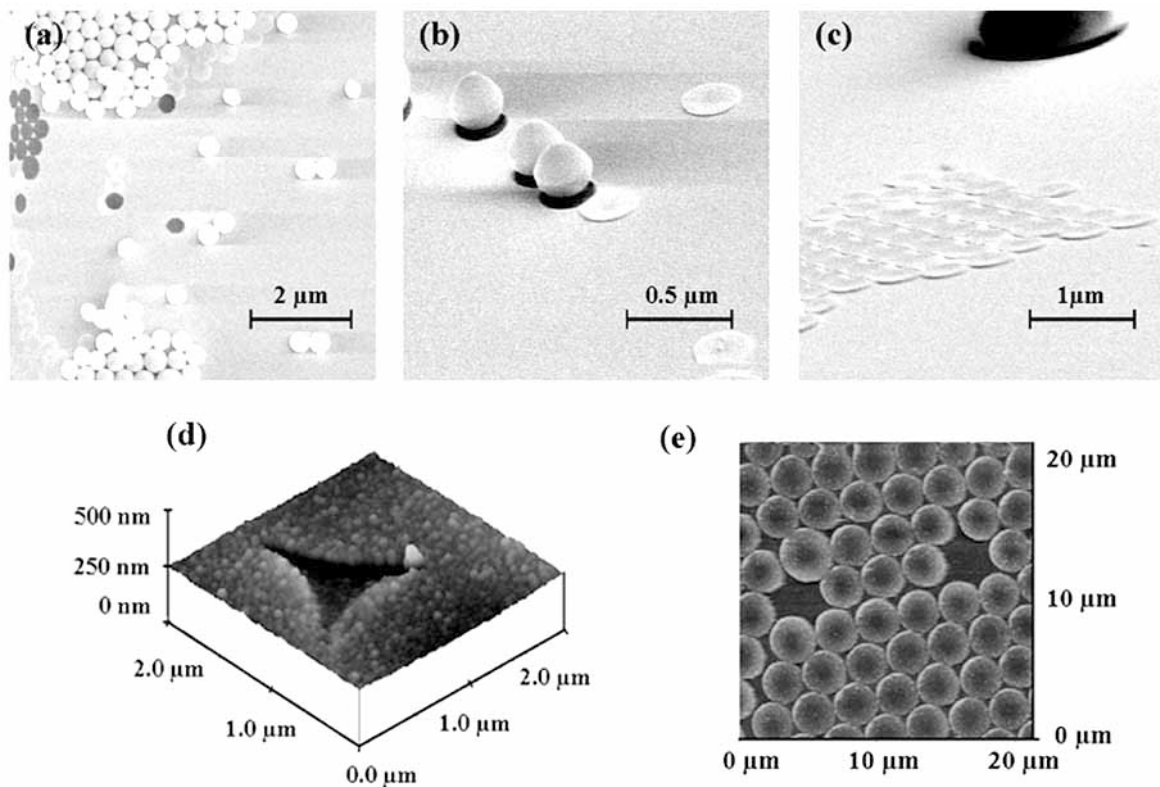


Abb.1-5: Eine 250 nm-Kolloidmaske auf einer Siliziumoxidoberfläche nach dem Sputtern mit $(\text{CO}_2)^+_{5000}$ -Clusterionen einer kinetischen Energie von 6 eV pro Clustermonomer. Zwischen den Kolloiden wurde deutlich Material abgetragen. Die gesputterten Kolloide sehen wie „Eier“ aus [Stol2000]. Zu sehen sind hier Elektronenmikroskop-Aufnahmen (SEM) und Atomkraftmikroskop-Bilder (AFM):

- (a) gesputterte Kolloidmaske nach bereits teilweiser Entfernung der Kolloide. (SEM)
- (b) drei gesputterte „Kolloid-Eier“, sowie ungesputterte (weil kolloidmaskierte) Plateaubereichen, die aus der gesputterten Oberfläche herausragen. (SEM)
- (c) nanostrukturierter Bereich aus „stehengebliebenen“ Plateaus. (SEM)
- (d) zwischen den Kolloiden „herausgestanzte“ Dreiecksvertiefung. (AFM)
- (e) strukturierter Bereich aus „stehengebliebenen“ Plateaus. (AFM)

1.4 Clustersputtern im Fokus der Optikindustrie

Die vorliegende Arbeit wurde im Rahmen eines Projektes durchgeführt, das von der Optikindustrie, namentlich der Firma Carl Zeiss in Oberkochen, über drei Jahre hinweg finanziell gefördert wurde. Begründet ist dieses Interesse der Optikindustrie am Clustersputtern in der Entwicklung optischer Systeme für die Halbleitertechnologie – dabei geht es im Kern um die Optikkomponenten für Waferstepper. Das Interesse an neuen Präzisionswerkzeugen für die Optikproduktion ist gewaltig, wird aber erst nachvollziehbar, wenn man die Entwicklung in der Chipindustrie betrachtet und die Konzepte für zukünftige Technologien

berücksichtigt. Deshalb soll hier die notwendige Hintergrundinformation geliefert werden [Zeis2001].

In Abb.1-6 ist die bisherige Entwicklung in der Chipindustrie gezeigt und die Entwicklung der nächsten Jahre extrapoliert. Während mit immer höherer Innovationsgeschwindigkeit neue, noch hochauflösendere Optiksyste­me für die Chipherstellung entwickelt werden, ist weltweit die Entwicklung der nächsten Technologie-Generation zur Übertragung immer kleinerer Maskenstrukturen auf Wafer voll im Gange. Ziel der Weiterentwicklungen ist es, mit immer kürzerer Wellenlänge noch kleinere Strukturen zu erzeugen. Spiegelsysteme für die zukünftige Halbleiterstrukturierungstechnologie (Photolithographie) sind zu entwickeln. Die größten Chancen auf eine Realisierung werden derzeit einer Technologie eingeräumt, die als EUVL (Extreme Ultra Violet Lithography) bzw. als SXPL (Soft X-Ray Projection Lithography) bezeichnet wird [Zeis2001][Wind1994]. Ultrapräzise Spiegelsysteme zur Abbildung von Masken mit Röntgenlicht ($\lambda = 13 \text{ nm}$) sind bei dieser Technologie entscheidende Komponenten. Weltweit wird an der Herstellung solcher Systeme gearbeitet. Noch bis vor kurzem galt dabei insbesondere die Anforderung an die Formgenauigkeit der einzelnen Spiegel als praktisch unerfüllbar, und stellte damit die Akzeptanz der EUVL-Technologie grundsätzlich in Frage. Die Formgenauigkeit jeder einzelnen Spiegelfläche ist von großer Bedeutung für die Abbildungsqualität des Systems. Die zulässigen mittleren Abweichungen von der Sollform betragen nur 0.25 nm , was in etwa dem Durchmesser von zwei einzelnen Atomen entspricht. Zusätzlich sollte die Mikrorauhigkeit solcher Spiegel gemäß [Wind1994] im Bereich von höchstens 1 \AA liegen. Es müssen also unbedingt geeignete Polier- und Formgebungstechniken gefunden werden.

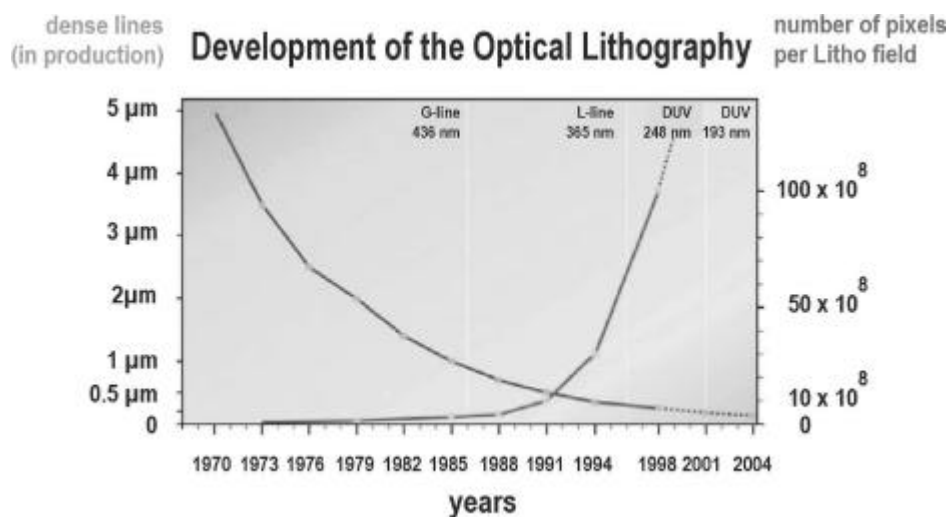


Abb.1-6: Hier wird die bisherige Entwicklung in der Chipindustrie gezeigt und die Entwicklung der nächsten Jahre extrapoliert. Die wachsende Integrationsdichte auf den Chips ist über die Liniendichte (*dense lines*) auf einem Chip und das Auflösungsvermögen der Optik über die Pixelzahl pro Lithographiefeld dargestellt. Zwischen 1970 und 2004 wurden vier Technologie-Generationen entwickelt und nach der verwendeten Lichtwellenlänge klassifiziert. Derzeit ist die 193 nm-Technologie die Modernste. Als Technologie der Zukunft wird die EUVL für 13 nm-Röntgenlicht favorisiert [Zeis2001b].

Im Bereich der Polier- und Formgebungstechniken werden Ionenätztechniken bzw. das Sputtern mit Clusterionen als zukunftssträchtige Techniken angesehen. Im Bezug auf die Formgebung ist es das Ziel der Optikindustrie, Asphären für den kleinsten Lichtwellenlängenbereich herzustellen. Das ist mit den traditionellen Verfahren nicht möglich, da bei diesen die Werkstücke während des Bearbeitungsprozesses kreisförmig bewegt werden, was zwangsläufig zu sphärischen Formen führt. Im Hinblick auf die Entwicklung eines Präzisions-Materialabtragsverfahrens wurde am Institut für Oberflächenmodifizierung IOM in Leipzig die bisher im Bereich der Präzisionsendbearbeitung eingesetzte Atomionensputtertechnik weiterentwickelt. Mit chemisch reaktiven Ionenstrahlen wurden im Bezug auf den Materialabtrag große Fortschritte erzielt und wohl inzwischen patentiert [Boeh1999].

Was die extremen Anforderungen an die Mikrorauigkeit der Oberfläche von zukünftigen Röntgenspiegeln betrifft [Wind1994], kommt man mit der eben angesprochenen Ionenstrahlätztechnik vermutlich langfristig nicht weiter. Das läßt sich mit der Art chemischer Sputterprozesse erklären. Hier kann dann das Sputtern mit Clusterionen ansetzen. Auch mit dem physikalischen, sprich: nicht-reaktiven Clustersputtern kann man sehr hohe Materialabtragsraten erreichen, die allerdings nicht ausreichend hoch sind, um dieses Verfahren zur Asphärenherstellung zu verwenden. Zur „zerstörungsfreien“ Glättung strukturierter Oberflächen wäre eine geringere Sputterrate sogar von Nutzen! Wichtig ist in diesem Zusammenhang nur, daß die Glättung auf einer Längenskala unterhalb der Strukturdimension abläuft, um deren Konturen möglichst präzise zu erhalten.

1.5 Zielsetzung der vorliegenden Arbeit

Es wurde bereits festgestellt, daß es zu Oberflächen einer mittleren Rauigkeit (RMS) unterhalb von 0.2 nm kaum Untersuchungen gibt. Die Anforderungen an die Oberflächen zukünftiger Spiegeloptik im Rahmen der EUVL-Technologie liegen aber genau in diesem Sub-Nanometerbereich.

Hier setzt die vorliegende Arbeit an: es soll herausgefunden werden, ob das Clustersputtern ein geeignetes Präzisionspolierverfahren auf der Sub-Nanometerskala darstellt, d.h. ob es möglich ist, mit Clusterionenstrahlen die Oberflächen der Spiegeloptik für die EUVL-Technologie bis zu mittleren Rauigkeiten von 1 Å zu glätten. Dabei geht es im Wesentlichen um Clustersputter-Experimente an Si(100)Wafer-Oberflächen, die poliert und oxidiert mit einer mittleren Rauigkeit (RMS) von 0.23 ± 0.03 nm ein Modellsystem für die zukünftige Spiegeloptik darstellen. Die Entwicklung der Mikrorauigkeit und die Materialabtragsrate sind in Abhängigkeit von den Sputterparametern Clustergröße, Sputterenergie, Sputterwinkel und Sputterdosis zu untersuchen.

Schließlich gibt es viele Simulationen zum Clustersputterprozeß, die in guter Übereinstimmung mit Experimenten sind. Trotzdem ist die Richtigkeit des aktuellen Modells experimentell nicht direkt bestätigt. So gilt es neben anwendungsorientierter Forschung weiterhin Grundlagenforschung zur Klärung des Clustersputterprozesses zu betreiben.

2 Optische Oberflächen

Im vorigen Kapitel wurde das Interesse der Industrie an Hochqualitätsoptik begründet. Demnach gibt es den Trend, bei der Projektionslithographie im Rahmen der Chipherstellung zu immer kürzeren Lichtwellenlängen zu gehen und so das Auflösungsvermögen dieses Abbildungsverfahrens zu verbessern. Es ist geplant, Licht bis hinunter in den weichen Röntgenbereich zu verwenden – Windt et al. arbeiten mit $\lambda = 14 \text{ nm}$ [Wind1994]. In diesem Wellenlängenbereich aber kann man praktisch keine Brechungsinsen verwenden, weshalb sehr erfolgreich an der Entwicklung von Röntgenlinsen in Form von sog. Zonenplatten gearbeitet wird, die anstelle von Lichtbrechung Lichtbeugung nutzen [Schm2001]. Für die EUVL- bzw. SXPL-Technologie ist allerdings der Einsatz von reflektierenden Abbildungssystemen vorgesehen, was die Entwicklung geeigneter Röntgenspiegel erfordert. Während es für den flachen Lichteinfall bereits Röntgenspiegel gibt, sollen für Waferstepper Röntgenspiegel hergestellt werden, die bei fast senkrechten Lichteinfall hinreichend reflektieren und abbilden. Mit dem Vorstoß in den Röntgenwellenbereich muß die Lichtstreuung an Strukturen atomarer Ausdehnung berücksichtigt werden. Die Mikrorauigkeit der Abbildungsoptik beginnt, eine wichtige Rolle zu spielen. Für reflektierende optische Oberflächen wächst der totale Streuquerschnitt für Licht einer Wellenlänge λ näherungsweise mit $1/\lambda^2$. Das bedeutet, daß die diffuse Streuung des eingestrahnten Lichts mit der Verkürzung der Lichtwellenlänge zunimmt. Erhöhte Intensitätsverluste in Richtung des Reflexionswinkels treten auf und damit verschlechtert sich der Bildkontrast.

Im diesem Kapitel wird die Lichtstreuung an optischen Oberflächen behandelt. Skalar- und Vektor-Streutheorien werden in ihren Ansätzen erklärt [Elso1978] [Elso1979] und die Idee der Funktional-Integral-Beschreibung rauher Oberflächen wiedergegeben, die sich durch die Universalität ihres Ansatzes auszeichnet [Gall1991]. Anschließend wird die Charakterisierung einer optischen Oberfläche ausgehend von ihrem Leistungsdichte- bzw. PSD-Spektrum (Power Spectral Density) vorgestellt. Im Rahmen dieser Beschreibung sind dann konventionelle und fraktale Oberflächen zu unterscheiden [Chur1989][Chur1991] [Chur1995]. Als für diese Arbeit relevantes Anwendungsbeispiel wird schließlich das Design von Spiegeln für weiches Röntgenlicht diskutiert [Wind1994].

Zum Schluß dieses Kapitels werden verschiedene Methoden zur Mikrorauigkeitsanalyse vorgestellt: die differentielle Interferenz-Kontrast-Mikroskopie (DICM) [Noma1955], die Röntgenlichtstreuung [deKo1979] und die Atomkraftmikroskopie (Atomic Force Microscopy) als vergleichsweise unaufwendigste und im Rahmen dieser Arbeit verwendete Analysemethode im μm^2 -Bereich. Letztere wird hier mit Verweis auf Kap.5.2 nicht detailliert beschrieben.

2.1 Lichtstreuung und Mikrorauhigkeit

Jede noch so polierte Oberfläche zeigt eine Mikrorauhigkeit. Die Abweichung von einer ideal glatten Oberfläche besteht aus unregelmäßigen Strukturen, die je nach ihrer vertikalen und lateralen Ausdehnung und Verteilung das Ausmaß und die Art der Oberflächenrauigkeit festlegen. Es ist nicht trivial, ein geeignetes Maß zur Charakterisierung von Rauigkeit zu finden. Legt man eine Nullebene fest und definiert man die mittlere quadratische Abweichung δ der realen Oberfläche von dieser Idealfäche als Maß für die Rauigkeit, so geht die Strukturinformation über die Oberfläche verloren. In Abb.2-1 in Abschnitt 2.1.3 ist das am Beispiel zweier periodisch strukturierter Oberflächen demonstriert. Sinnvoll erscheint es, eine spektrale Darstellung zur Charakterisierung vorzunehmen.

Bei optischen Oberflächen nun hängen die optischen Eigenschaften u.a. von der Rauigkeit und der Art der Oberflächenstrukturierung ab. Wesentlich ist dabei, wie groß die laterale und die vertikale Ausdehnung der Rauigkeitsstrukturen im Vergleich zur verwendeten Lichtwellenlänge ist. Das Licht wird an den Rauigkeitsstrukturen gestreut und die Lichtintensität, der Bildkontrast und das Auflösungsvermögen der Abbildungsoptik nehmen wachsender Oberflächenrauigkeit ab. Im folgenden Abschnitt werden unterschiedliche Beschreibungsansätze für die Lichtstreuung in Verbindung mit der Mikrorauhigkeit optischer Oberflächen vorgestellt.

2.1.1 Lichtstreutheorien

Im infraroten Lichtwellenlängenbereich, also zu großen Wellenlängen hin, tritt im Fall von gut polierten optischen Oberflächen kaum Lichtstreuung an Mikrorauhigkeiten auf. Licht wird hier höchstens an Kratzern, Staub- oder anderen Partikeln gestreut. Allerdings sollten solche groben, mit dem bloßen Auge erkennbaren Kratzer und Oberflächendefekte bei gut polierten Oberflächen nicht auftreten - falls doch, dann ist die Lichtstreuung mit Hilfe der geometrischen Optik zu beschreiben und in erster Näherung unabhängig von der Lichtwellenlänge. Im sichtbaren und ultravioletten Lichtwellenlängenbereich, also zu kleineren Wellenlängen hin, tritt Lichtstreuung an den Mikrorauhigkeiten der streuenden optischen Oberfläche auf. Diese stammen von der Polierprozedur der optischen Oberfläche. Um zu entscheiden, in welcher Form die Lichtstreuung an einer optischen Oberfläche am besten beschrieben wird, vergleicht man die Lichtwellenlänge λ mit der Größenordnung der Mikrorauhigkeiten:

Wellenlänge λ » Größe der Mikrorauhigkeitsstrukturen. Für diesen Fall kann man die Lichtstreuung mit Beugungstheorie beschreiben. Betrachtet man die Intensität des gestreuten Lichts, integriert über den gesamten Winkelbereich im Halbraum oberhalb der Streufläche, meist als TIS (Total Integrated Scattering) bezeichnet, dann hängt diese in erster Näherung von der Höhe der Mikrorauhigkeiten ab. Die winkelaufgelöste Intensität des gestreuten Lichts allerdings hängt nicht alleine von der Höhenfluktuation der Mikrorauhig-

keiten ab, sondern auch von ihrer lateralen Strukturierung.

Wellenlänge I Größe der Mikrorauhigkeitsstrukturen. Für diesen Fall kann man die Lichtstreuung mit Hilfe der Mie-Streutheorie beschreiben. Diese ist allerdings zu kompliziert, um sie bei optischen Oberflächen mit statistisch verteilten Rauigkeitsstrukturen sinnvoll anwenden zu können, da sich die Ableitung optischer Konstanten als äußerst aufwendig erweist. Handelt es sich um periodische Oberflächenstrukturen, dann kann man schließlich zur gewöhnlichen Beugungstheorie zurückkehren.

Grundsätzlich unterscheidet man Skalar- und Vektor-Streutheorien, die die Lichtstreuung an optischen Oberflächen beschreiben. Das generelle theoretische Problem der Wechselwirkung zwischen Licht und rauen Oberflächen liegt dabei in der Schwierigkeit, eine exakte Lösung für die Wellenfunktion des gestreuten Lichts zu finden. In fast allen theoretischen Modellen werden die Extremfälle „sehr glatt“ bzw. „sehr rau“ diskutiert. Nur Gitterstrukturen werden bisher in einem mittleren Rauigkeitsbereich behandelt. Im Gegensatz zu einer statistischen Rauigkeitsstruktur kann man bei einem Gitter die Symmetrieeigenschaften und Periodizitäten zur Vereinfachung der Rechnung ausnutzen.

Skalartheorien [Beck1963][Elso1979][Welf1977] sind sehr nützlich, wenn man TIS-Betrachtungen anstellt (Total Integrated Scattering). Mit TIS wird genau der Anteil des insgesamt an einer optischen Oberfläche reflektierten Lichts bezeichnet, der diffus an den Mikrorauhigkeiten in beliebige Raumrichtungen gestreut wird und damit in Richtung des geometrischen Reflexionswinkels verloren geht. Wenn nun z.B. die eingestrahlte Lichtwellenlänge wesentlich größer als die mittlere Ausdehnung der Rauigkeitsstrukturen der Oberfläche ist, ist eine solche integrierte Betrachtung sinnvoll. Ein typischer Ansatz für eine skalare Streutheorie sieht wie folgt aus:

Sei $Z(x,y)$ eine Höhenfunktion, die die Topographie einer der Oberfläche beschreibt. Die Mikrorauhigkeit manifestiert sich in einer Höhenfluktuation um die mittlere Höhe \bar{Z} . Man nimmt nun an, daß diese Höhenfluktuationen eine statistische Gauß-Verteilung haben und definiert als skalare Größe, die ein Maß für diese Rauigkeit sein soll, die Standardabweichung δ der Gauß-Verteilung. Weiter setzt man im Rahmen der skalaren Lichtbeugungstheorie als Wellenfunktion des gestreuten Lichts das **Fresnel-Kirchhoff'sche Beugungsintegral** an. Integriert man nun über die Intensitäten des in die verschiedenen Raumrichtungen gestreuten Lichts, kann man die TIS-Intensität wie folgt abschätzen [Elso1979]:

$$\text{TIS} \equiv 1 - R/R_0 = 1 - e^{- (4\pi\delta/\lambda)^2} \approx (4\pi\delta/\lambda)^2 \quad (2-1)$$

Hierbei steht die Variable R für den Anteil des Lichtes, der in Richtung des geometrischen Reflexionswinkels gestreut wird. Mit R_0 ist die insgesamt gestreute Lichtintensität bezeichnet und mit λ die Wellenlänge. Genähert wird in Gl.(2-1) durch den Abbruch der Taylorentwicklung. Die Tatsache, daß die Rauigkeit als skalare Größe δ in diese Streutheorie eingeht, ordnet diese Beschreibung den Skalartheorien zu. Die Beziehung zwischen TIS und Rauigkeit δ bzw. Lichtwellenlänge λ in Gl.(2-1) liefert für reale optische Oberflächen, wobei polierte und diamantbeschichtete Metalloberflächen eingeschlossen sind, im nahen Ultraviolett, im Sichtbaren und im nahen Infrarot gute Vorhersagen. Aus TIS-Mes-

sungen konnten außerdem für poliertes Glas Mikrorauhigkeitswerte in guter Übereinstimmung mit entsprechenden interferometrischen Rauigkeitsanalysen bestimmt werden. Will man Aussagen über die Winkelverteilung von gestreutem Licht machen, liefern Skalartheorien allerdings weniger erfolgreiche Vorhersagen. Der Grund ist einfach: die Winkelverteilung des Streulichts hängt nicht allein von der Höhenfluktuation der Mikrorauhigkeiten ab, sondern ebenso von der lateralen Ausdehnung der Strukturen und ihrer Steilheit. Die Struktur der Mikrorauhigkeiten sollte in Form einer Autokorrelationsfunktion berücksichtigt werden. Die Autokorrelationsfunktion $\langle Z(\vec{r}), Z(\vec{r} + \vec{\Delta}) \rangle$ ist ein Maß dafür, wie stark die Höhenfunktion am Ort $\vec{r} + \vec{\Delta}$ von der Höhenfunktion am Ort \vec{r} abhängt. Für eine periodische Oberflächenstruktur bildet sie die Periodizität ab. Im Falle von stochastischen Oberflächenstrukturen kann sie Gauß-, Exponential- oder lineare Form haben.

Vektorstreutheorien haben im Vergleich zu den skalaren Streutheorien vor allem den Vorteil, daß korrektere Aussagen über die Winkelverteilung des Streulichts möglich sind. Der Grund dafür ist, daß im Rahmen von Vektorstreutheorien Polarisierungseigenschaften des einfallenden und des gestreuten Lichts ebenso berücksichtigt werden können wie die statistischen Eigenschaften von rauhen Streuoberflächen. In zwei prinzipiell verschiedene Ansätze für Vektorstreutheorien soll hier ein kleiner Einblick gegeben werden. Die einen Ansätze versuchen, das sog. **Stratton-Chu-Silver-Integral** näherungsweise zu lösen, während bei den anderen Ansätzen die Rauigkeit bezogen auf eine ideal glatte Oberfläche störungstheoretisch - als **Small Perturbation Method** bezeichnet - behandelt wird.

Das Stratton-Chu-Silver-Integral ist das vektorielle Äquivalent zum skalaren Fresnel-Kirchhoff'schen Integral. Im Prinzip kann man mit diesem Integral exakte Antworten zur Lichtstreuung in alle Richtungen geben. Praktisch läßt es sich aber für die Wellenfunktion des gestreuten Lichts nur unter nähernden Annahmen lösen. Die verschiedenen Streutheorien unterscheiden sich nur in ihren verschiedenen Näherungsmethoden [Holz1978][Lead1971]. Bei der Small Perturbation Method [Elso1979] wird nun Störungsrechnung betrieben und die Oberflächenrauigkeit als Störung einer perfekt glatten Oberfläche betrachtet. Da man bei Störungsrechnungen sinnvollerweise von kleinen Störungen ausgeht, wird mit dieser Streutheorie zunächst nur der Extremfall einer „sehr glatten“ Oberfläche erfaßt und das heißt für das Verhältnis zwischen der mittleren Rauigkeit δ und der Wellenlänge λ : $(\delta/\lambda) \ll 1$. Man berechnet die Streuwellenfunktion für eine perfekt glatte Oberfläche. Das auf die Streuoberfläche einfallende Licht teilt sich in einen transmittierten und einen reflektierten Intensitätsanteil (in Richtung des geometrischen Reflexionswinkels ohne diffuse Streuung). In einem zweiten Schritt wird dann die Oberflächenrauigkeit als Störung berücksichtigt. Störungstheoretisch heißt das, daß die perfekt glatte Oberfläche als 0. Ordnungsterm in (δ/λ) und Streueffekte, die Absorption an Rauigkeitsstrukturen sowie die Verluste durch die Anregung von Oberflächenplasmonen als Korrekturterm 1. Ordnung in (δ/λ) auftreten. Man erhält als Ergebnis dieser Störungsrechnung die pro Raumwinkel gestreute Lichtleistung $dP/d\Omega$, die proportional zu dem in Kap.2.1.2 diskutierten 2-dimensionalen Leistungsdichtespektrum (2D Power Spectral Density Spektrum) der Streuoberfläche ist. Mit der sog. **Tangent plane approximation** [Sung1978] wird auch der Fall einer „sehr rauhen“ Streuoberfläche erfaßt, also $(\delta/\lambda) \gg 1$. Ausgangspunkt ist die näherungsweise

Beschreibung der rauhen Oberfläche durch ein Ensemble ebener Facetten, die gegenüber der horizontalen Ebene gekippt sind. Der Normalenvektor jeder einzelnen Facette ist direkt mit der mittleren Steigung in dem von der Facette ersetzten Oberflächenbereich korreliert. Die statistische Verteilung von mittleren Steigungen ergibt dann die Verteilung der Normalenvektoren. Man nimmt nun für die Lichtstreuung an, daß jede Facette einzeln und unabhängig von den anderen das Licht streut. Schließlich wird die Facettengröße ($h \times h$) derart gewählt, daß $\lambda \ll h$ gilt. So ist es schließlich möglich, den Fall einer rauhen Oberfläche mit der small perturbation method zu behandeln, indem man die Streuung an den perfekt glatten Facettenoberfläche einzeln betrachtet und die Ergebnisse für das Facetten-Ensemble superponiert.

2.1.2 Funktional-Integral-Beschreibung rauher Oberflächen

Ohne jeglichen Zusammenhang mit Lichtstreutheorien kann man im Rahmen der statistischen Physik zur Beschreibung einer rauhen Oberfläche von einer großkanonischen Gesamtheit möglicher Oberflächentopographien ausgehen. Dies sog. Funktional-Integral-Beschreibung rauher Oberflächen [Gall1991] stellt ein Analogon zur Ginzburg-Landau-Theorie [Nolt1994] dar. Aus diesem Beschreibungsansatz kann man eine Autokorrelationsfunktion der Oberfläche ableiten und ebenso ein Leistungsdichtespektrum, womit wieder die Brücke zu den Lichtstreutheorien geschlagen ist.

Die grundlegende Idee der Funktional-Integral-Beschreibung rauher Oberflächen ist, daß die Wahrscheinlichkeit P für eine spezielle Topographie bzw. eine bestimmte Höhenfunktion $Z(x,y)$ von $Z(x,y)$ selber abhängt. Die Wahrscheinlichkeit P ist also ein Funktional der Höhenfunktion $Z(x,y)$. Jede mögliche Topographie tritt mit einer bestimmten Wahrscheinlichkeit auf. Man rechnet nicht mit einer Funktion von einfachen Variablen aus dem reellen Zahlenraum \mathbb{R} , sondern mit einem Funktional von Funktionen aus dem Funktionenraum F der möglichen Topographien $Z(x,y)$. Das Wahrscheinlichkeitsfunktional $P[Z]$ wird nun als Exponentialfunktion mit Argument $S[Z]$ im Exponenten angesetzt, wobei S selber ein Funktional von $Z(x,y)$ ist. Anschließend entwickelt $S[Z]$ nach Taylor als unendliche Summe einfacher Integrale in Termen von $dx dy$ und $Z(x,y)$. So wird es möglich, Mittelwerte für $Z(x,y)$ und die zugehörigen Autokorrelationsfunktionen bzw. Leistungsdichtespektren zu bestimmen.

Dieser Beschreibungsansatz ist in Analogie zur Ginzburg-Landau-Theorie als die Suche nach dem thermodynamischen Gleichgewichtszustand der Höhenfunktion $Z(x,y)$ zu verstehen. Die Höhenfunktion $Z(x,y)$ wird als Ordnungsparameter des Systems behandelt, für den im Gleichgewichtszustand das relevante thermodynamische Potential des Systems minimal wird. Der Gleichgewichtszustand des Ordnungsparameters ist in unserem Fall die mittlere Höhe \bar{Z} und die Rauigkeit besteht aus den Fluktuationen um diese. Da gerade bei optischen Oberflächen die Höhenfluktuationen klein sind, kann man die Theorie von Ginzburg-Landau ohne Einschränkung anwenden, weil diese u.a. nur für kleine Fluktuationen des Ordnungsparameters gegenüber dem Mittelwert gültig ist. Abschließend muß als Besonderheit des Funktional-Integral-Ansatzes gewertet werden, daß einerseits die Stan-

dard-Beschreibung rauher Oberflächen in Form einer mittleren Rauigkeit δ , einer Autokorrelationsfunktion mit Korrelationslänge und eines Leistungsdichtespektrums im quadratischen Term der Reihenentwicklung von $S[Z]$ beinhaltet ist, daß aber andererseits anormale Skaleneffekte bei extrem glatten Oberflächen, die man als fraktales Verhalten bezeichnen würde, automatisch in den Termen höherer Ordnung berücksichtigt sind. Wie die nächsten Abschnitte zeigen, werden die sog. konventionellen und fraktalen Oberflächen im Rahmen anderer Beschreibungen über verschiedene Formen des Leistungsdichtespektrums getrennt angesetzt.

2.1.3 Leistungsdichtespektrum (Power Spectral Density Spektrum)

Die Vektorstreutheorien zur Lichtstreuung an rauhen Oberflächen zeigen, daß sich die optischen Eigenschaften einer Oberfläche stets als Funktionen des sog. 2-dimensionalen Leistungsdichtespektrums beschreiben lassen. Deshalb macht es Sinn, die Charakterisierung einer optischen Oberfläche im Wesentlichen auf die Bestimmung des 2-dimensionalen Leistungsdichtespektrums (Power Spectral Density Spektrum) zu beschränken, da sich aus diesem alle wichtigen optischen Parameter ableiten lassen, so zum Beispiel der sog. Streufaktor, der die Streuintensität in Richtung des Reflexionswinkels angibt.

Das Leistungsdichtespektrum ergibt sich aus der Topographie der Oberfläche, wenn man diese vom Ortsraum in den Impulsraum abbildet, in dem sich die Lichtstreuung als Impulsübertrag zwischen stoßenden Teilchen gut formulieren läßt. Mathematisch ergibt sich das Leistungsdichtespektrum als quadrierte schnelle Fouriertransformierte der Oberfläche. Bevor nun die mathematische Form dieser PSD-Funktion diskutiert wird, soll hier anschaulich erklärt werden, was mit einem solchen PSD-Spektrum eigentlich beschrieben wird.

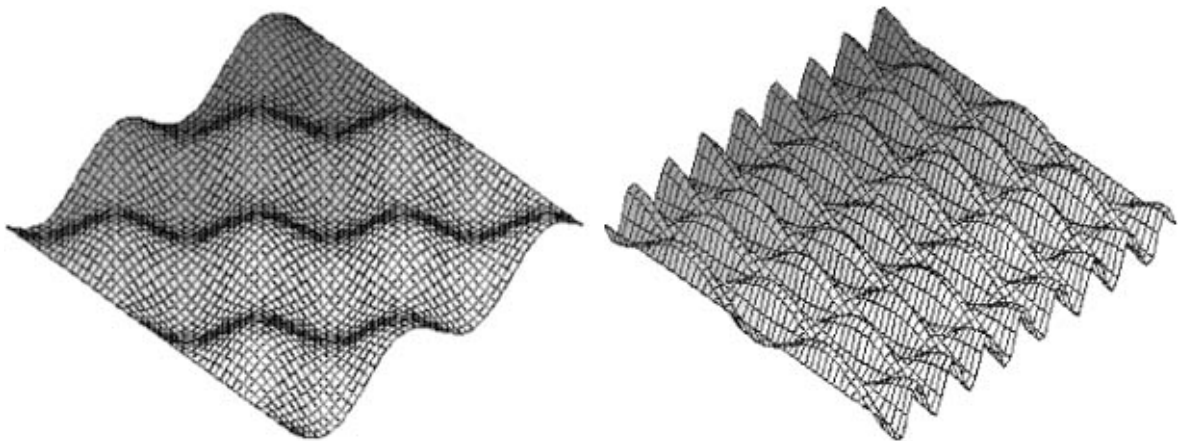


Abb.2-1: Zwei Oberflächen mit identischem Rauigkeitswert (statistische Standardabweichung der Höhenfunktion $H(x,y)$ von der mittleren Höhe \bar{H}), aber unterschiedlicher Oberflächenstruktur auf gleicher Grundfläche [Gerh2000].

In Abb.2-1 sind zwei Oberflächen mit identischem Rauigkeitswert δ abgebildet, wobei δ die statistische Standardabweichung der Höhenfunktion $Z(x,y)$ von der mittleren Höhe \bar{Z} ist. Gemäß ihrem Rauigkeitswert δ unterscheiden sich diese beiden Oberflächen also nicht, was aber offensichtlich nicht zutrifft. Der skalare Parameter δ beschreibt also die Rauigkeitsstruktur dieser beiden Oberflächen unzureichend. Vielmehr liegt der wesentliche Unterschied beider Flächen in der Periodizität ihrer Struktur. So ist es sinnvoll, die Struktur einer Rauigkeit in der Form einer 2-dimensionalen Fourieranalyse zu beschreiben und verschiedene Oberfläche nicht nur hinsichtlich ihrer mittleren Rauigkeit δ , sondern auch über das zweidimensionale Leistungsdichtespektrum (2D-PSD-Spektrum) zu vergleichen.

Als einfaches Beispiel für ein PSD-Spektrum zu einer Oberflächenstruktur ist in Abb.2-2 eine idealisierte Oberfläche mit Sinuswellen einer Periode $\lambda = 63 \text{ nm}$ abgebildet. Das entsprechende PSD-Spektrum zeigt erwartungsgemäß bei etwa 63 nm eine Spektrallinie.

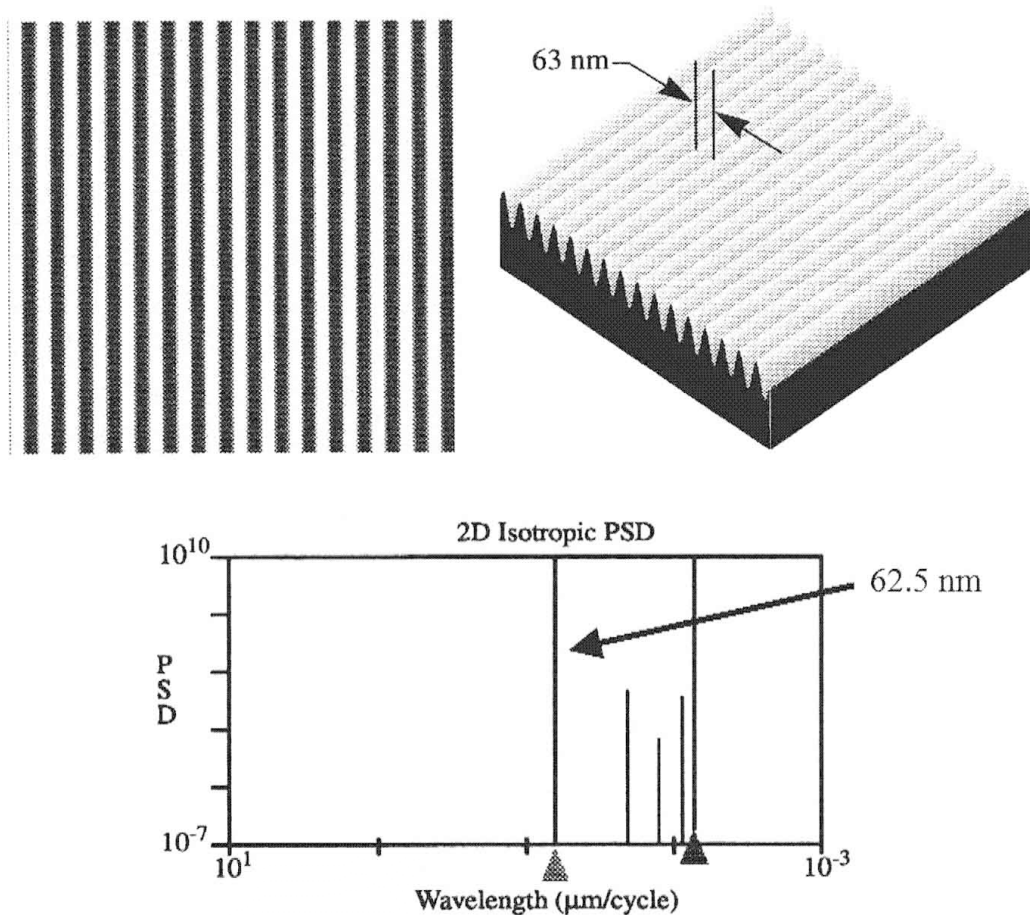


Abb.2-2: AFM-Bilder und PSD-Spektrum einer idealisierten Oberfläche mit Sinuswellen einer Periode $\lambda = 63 \text{ nm}$. Entsprechend ist im 2D-PSD-Spektrum bei etwa 63 nm eine Spektrallinie zu finden. Die weiteren Spektrallinien, auf deren eine der Cursor zeigt, erscheinen im vorliegenden Fall virtuell und sind auswertetechnisch bedingt [Digi1997].

Als reales Beispiel für ein 2D-PSD-Spektrum und seine Interpretation ist in Abb.2-3 eine epitaktisch gewachsene Galliumarsenidschicht abgebildet. Sie zeigt eine Terrassenform, wobei die Terrassen jeweils eine Atomlage dick sind und alle in etwa die gleiche Breite haben. Auf diese Weise ergibt sich eine periodische Struktur mit der Stufenbreite als Periode. Im PSD-Spektrum erwartet und findet man deshalb auch bei der entsprechenden Wellenlänge eine besonders hohe Spektrallinie.

Wenn eine Oberfläche rein stochastisch ist, zeigt das PSD-Spektrum keine besonderen Spektrallinien. Im folgenden wird die mathematische Form von Leistungsdichtespektralen diskutiert und die Unterscheidung zwischen konventionellen und fraktalen Oberflächen getroffen. Um die Verbindung zwischen Mikrorauigkeit und Lichtstreuung herzustellen, kann schließlich die pro Raumrichtung gestreute Lichtintensität als direkt proportional zum Leistungsdichtespektrum formuliert werden.

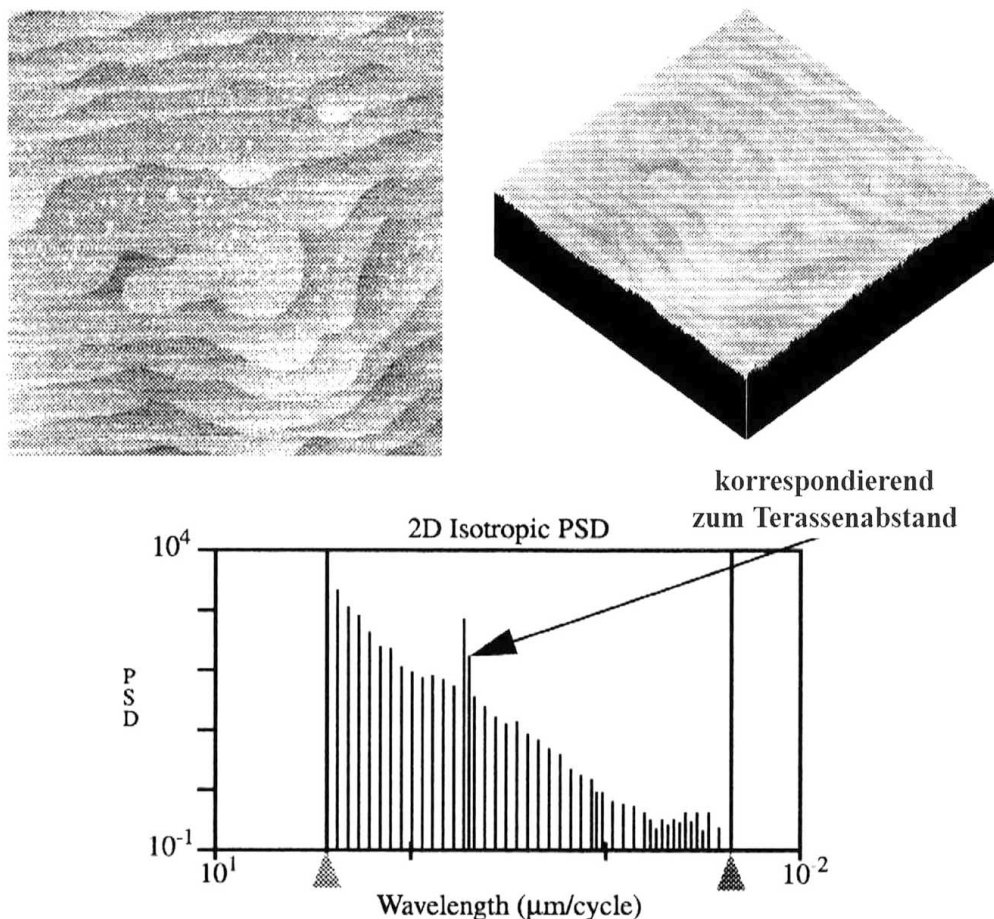


Abb.2-3: Beispiel einer epitaktisch gewachsene Galliumarsenidschicht, die Terrassenform zeigt. Jede Terasse ist eine Atomlage dick und die Terrassenstufen haben in etwa die gleiche Breite, d.h. es ergibt sich eine quasi-periodische Struktur mit der Stufenbreite als Periode. Deshalb ist im PSD-Spektrum bei der entsprechenden Wellenlänge eine herausragende Spektrallinie zu erkennen [Digi1997].

Man definiert rein mathematisch für ein kontinuierliches Oberflächenprofil $Z(\vec{r})$ mit $\vec{r} = (x, y)$ das 2-dimensionale Leistungsdichtespektrum $S_2(f)$ wie folgt [Chur1991]:

$$S_2(f) = \lim_{A \rightarrow \infty} \left\langle \left| \frac{1}{A} \int_A e^{i2\pi \vec{f} \cdot \vec{r}} \cdot Z(\vec{r}) \cdot d\vec{r} \right|^2 \right\rangle \quad (2-2)$$

Die Variable $\vec{f} = (f_x, f_y)$ steht für die Oberflächenortsfrequenzen (surface spatial frequency), f ist gleich dem Betrag von \vec{f} , also $f = |\vec{f}|$, und A stellt die Bezugsfläche dar.

Grundsätzlich unterscheidet man anhand des PSD-Spektrums konventionelle und fraktale Oberflächen. Der Begriff der „fraktalen“ Oberfläche ist anschaulich in üblicher Weise zu verstehen, d.h. daß sich dieselben Rauigkeitstrukturen auf immer kleinerer Längenskala wiederholen. Wenn man also lateral die Längenskala um einen Faktor 10 reduziert, dann hat das auch eine Reduktion der vertikalen Skala um einen Faktor 10 zur Folge. Daraus ergibt sich, daß der mittlere Rauigkeitswert δ mit der Größe der Bezugsfläche skaliert. Das alles bedeutet schließlich das PSD-Spektrum exponentielle Form hat, also bei doppeltlogarithmischer Austragung Geradenform hat. Zur besseren Anschauung sind in Abb.2-4 die typischen Formen eines konventionellen und eines fraktalen PSD-Spektrums vergleichend dargestellt.

Im Falle von konventionellen Oberflächen charakterisieren der mittlere Rauigkeitswert δ und die Korrelationslänge σ die Rauigkeitsstruktur recht gut. Für eine fraktale Oberfläche aber haben diese Parameter kaum Aussagekraft, weil sie mit der Bezugsfläche skalieren. So beschreibt man fraktale Rauigkeit anhand des spektralen Index n bzw. der fraktalen Dimension D und eines Parameters K . Alle drei Parameter lassen sich direkt aus dem PSD-Spektrum bestimmen.

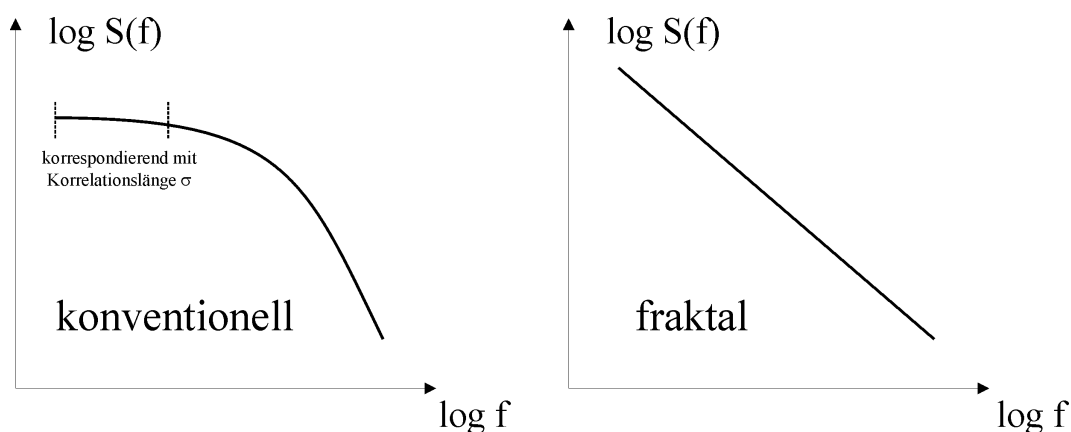


Abb.2-4: Man klassifiziert Oberflächen als konventionell bzw. fraktal. Diese Unterscheidung wird anhand der Form des PSD-Spektrums vorgenommen. Bei doppelt-logarithmischer Auftragung ergeben sich die beiden hier skizzierten typischen PSD-Spektren $S(f)$. Sehr glatte Oberflächen sind eher fraktal als konventionell [Chur1989].

Experimentell erhält man kein kontinuierliches, sondern ein diskretes PSD-Spektrum, das bei E.L.Church und P.Z.Takacs [Chur1991] als sog. Periodogramm bezeichnet wird.

Bei N Meßpunkten im Abstand D kann das PSD-Spektrum für diskrete Wellenlängen λ_m bzw. diskrete Ortsfrequenzen f_m folgender Form berechnet werden:

$$f_m = \frac{m}{N \cdot D} \quad \text{für } m = 1 \dots \frac{N}{2} \quad (2-3)$$

Die Grenzfrequenzen, die das Periodogramm nach unten und oben beschränken, resultieren aus der Auflösung D des Bildes und der Größe $A=L^2$ des analysierten Flächenbereichs in Form der Seitenlänge $L = (N-1) \cdot D$ und schreiben sich als:

$$f_{\min} = \frac{1}{N \cdot D} \quad \text{und} \quad f_{\max} = \frac{1}{2 \cdot D} \quad (2-4)$$

In Abb.2-5 sind im Vergleich das diskrete, das experimentell ermittelte Periodogramm und schließlich ein kontinuierliches, „wirkliches“ PSD-Spektrum abgebildet. Ziel der Auswertung eines Periodograms ist es nun, dieses mit einer geeigneten Kurve anzufitten, die u.a. eine Extraktion optischer Parameter zuläßt. Überlegungen zu geeigneten Fitfunktionen, die physikalisch Sinn machen, sind im folgenden wiedergegeben – vor allem beziehend auf Veröffentlichungen von E.L.Church und P.Z.Takacs.

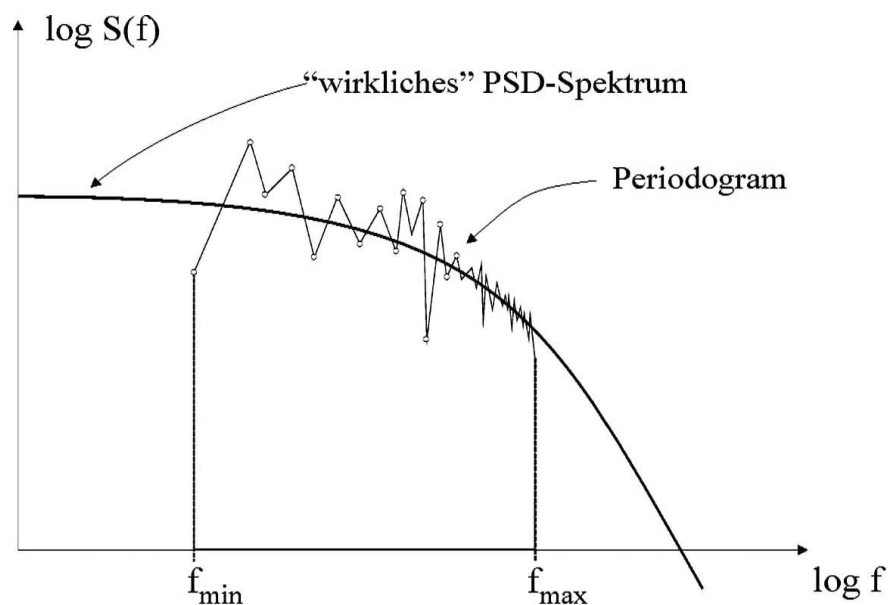


Abb.2-5: Diese Skizze zeigt ein experimentell ermitteltes Periodogramm im Vergleich zum „wirklichen“ PSD-Spektrum. Ziel einer Auswertung ist es, einen geeigneten Fit zu finden im Sinne des „wirklichen“ Spektrums, der die Extraktion optischer Parameter ermöglicht [Chur1991].

Konventionelle Oberflächen. Das Hauptproblem bei der Auswertung eines Periodogramms besteht im Auffinden einer Fitfunktion an das Periodogram. Welche Funktionen beschreiben das 2-dimensionale PSD-Spektrum einer konventionellen optischen (polierten) Oberfläche? E.L.Church und P.Z.Takacs [Chur1991] schlagen vor:

$$S_2(f) = \frac{A^*}{[1 + (B \cdot f)^2]^{(C+1)/2}} \quad \text{mit} \quad A^* = \frac{1}{2\sqrt{\pi}} \cdot \frac{\Gamma(\frac{C+1}{2})}{\Gamma(\frac{C}{2})} \cdot A \cdot B \quad (2-5)$$

Die Fitparameter sind A, B und C. Man nennt dieses Modell aus offensichtlichen Gründen das ABC-Modell. Folgende Überlegungen stecken hinter diesem Ansatz.

- Die PSD-Spektren polierter Oberflächen sollten glatte Funktionen in f sein. Die Beschränkung auf die Anpassung dreier Funktionsparameter erscheint im Vergleich zu $\frac{1}{2} N$ Parametern beim Periodogram sinnvoll.
- Bei den PSD-Spektren ist von inversen Potenzgesetzen bzw. fraktalem Charakter auszugehen, denn das Polieren der zu charakterisierenden optischen Oberfläche sollte zu keiner charakteristischen periodischen Strukturierung führen. Das heißt, daß das Spektrum mathematisch als Potenzgesetz faßbar ist. Der hier beschriebene Ansatz berücksichtigt dies dadurch, daß $S_2(f)$ proportional zu $f^{-(C+1)}$ ist.
- Prinzipiell ist der Frequenzbereich des Spektrums zu großen und kleinen Ortsfrequenzen hin beschränkt. Nach oben hin im atomaren Größenordnungsbereich, in dem die Topographie nicht mehr als glatte Funktion beschreibbar ist, und nach unten hin durch die Größe der vermessenen Fläche. Einige Oberflächen zeigen allerdings Spektren, die im Bereich der niedrigen Ortsfrequenzen schon oberhalb der unteren Grenzfrequenz abflachen und quasi in einen Plateaubereich übergehen. Das wird im vorliegenden Ansatz durch den Parameter B berücksichtigt, wobei $B / 2\pi$ der Korrelationslänge entspricht. In Abb.2-4 ist diese Korrelationslänge mit σ bezeichnet und stellt sich für den Fall einer konventionellen Oberfläche als Breite des Plateaubereichs dar.
- Um die möglichen Formen für PSD-Funktionen weiter zu beschränken, nimmt man in Definition (2-5) eine möglichst einfache Form an, die als Abel-Transformierte analytisch weiterbehandelt werden kann. Weiter wurde darauf geachtet, daß sich $S_2(f)$ für Spezialfälle in wohl bekannte Funktionen verwandelt. So ergibt sich z.B für $B = 0$ das Spektrum von „weißem Rauschen“ oder für B die rein fraktale Form eines direkten Potenzgesetzes. Setzt man $C = 2$, dann liegt eine Lorentz-Form bzw. dementsprechend eine exponentielle Korrelationsfunktion vor. Läßt man schließlich C gehen, dann ergibt sich eine Gauß-Form.
- Die Definition von $S_2(f)$ gemäß (2-5) korrespondiert mit einer einfachen analytischen Korrelationsfunktion $G(\tau)$, die gemäß [Chur1991] wie folgt aussieht:

$$G(\tau) = \sqrt{2\pi} \cdot \frac{A}{B} \cdot \frac{2^{-C/2}}{\Gamma(\frac{C}{2})} \cdot \left(2\pi \cdot \frac{\tau}{B}\right)^{\frac{C-1}{2}} \cdot K_{\frac{C-1}{2}} \left[2\pi \frac{\tau}{B}\right] \quad (2-6)$$

Hierbei ist k eine modifizierte sphärische Bessel-Funktion der 3. Art, die im Falle von $C = 2, 4, 6, \dots$ eine einfache algebraische Form bekommt. Für $C > 1$ kann man dann das Quadrat des RMS-Werts δ^2 wie folgt schreiben:

$$\delta^2 = \frac{2\pi}{C-1} \cdot \frac{A^*}{B^2} \quad (2-7)$$

- Schließlich gibt es die Möglichkeit im Falle komplizierterer PSD-Spektren für $S_2(f)$ eine Linearkombinationen von Termen wie (2-5) ansetzen.

Zum Abschluß dieser Charakterisierung konventioneller Oberflächen sind hier noch für den RMS-Wert δ und die Korrelationslänge σ Definitionen in Abhängigkeit vom 2-dimensionalen PSD-Spektrum $S_2(f)$ angegeben [Wind1994][Chur1991]:

$$\delta^2 = 4 \cdot \int_0^\infty df_x \int_0^\infty df_y \cdot S_2(f) \quad (2-8)$$

$$\sigma = \frac{8}{\delta^4} \cdot \int_0^\infty df_x \int_0^\infty df_y \cdot S_2(f) \quad (2-9)$$

Diese Größen δ und σ sind die intrinsischen Parameter konventioneller Oberflächen.

Fraktale Oberflächen. Das PSD-Spektrum vieler polierter optischer Oberflächen, zum Beispiel unbeschichteter Gläser, stellt sich bei doppeltlogarithmischer Auftragung über mehrere Größenordnungen in der Ortsfrequenz näherungsweise als Gerade dar (Abb.2-4). Dieses quasilineare Verhalten läßt sich wie folgt schreiben[Chur1989]:

$$S_2(f) = \frac{K}{f^n} \quad (2-10)$$

K ist hier einfach eine Konstante und n der spektrale Index. Gemäß den Definitionen (2-8) und (2-9) divergieren sowohl der RMS-Wert δ als auch die Korrelationslänge σ im Falle einer fraktalen Oberfläche. Es ist also sinnvoll, anstelle von δ und σ die Konstante K und den spektralen Index n als intrinsische Parameter zur Charakterisierung fraktaler Oberflächen anzugeben. Experimentell kann man natürlich immer einen RMS-Wert δ extrahieren. Dieser ist allerdings bei fraktalen Oberflächen abhängig von der Meßmethode. Auf jeden Fall ist es hier notwendig, den analysierten Frequenzbereich $[f_{\min}, f_{\max}]$ anzugeben bzw. den gescannten Flächenbereich. Mit dem spektralen Index n läßt sich zusätzlich noch eine sog. fraktale Dimension D definieren [Deum1996]:

$$D = \frac{8-n}{2} \quad (2-11)$$

Allgemein ist eine glatte Oberfläche kompakter als eine raue Oberfläche. Je kompakter aber eine Oberfläche ist, umso größer ist ihre fraktale Dimension D . Für eine sehr glatte Siliziumoberfläche trifft das im Vergleich zu einer polierten Glasoberfläche zu. In Abb.2-6 sind fraktale 2-dimensionale PSD-Spektren von einem sehr glatten Siliziumsubstrat und einer polierten Glasoberfläche im Vergleich abgebildet. Der Siliziumoberfläche kann hier eine fraktale Dimension von $D = 2.8$ zugeordnet werden, während sich für die polierte Glasoberfläche etwa $D = 2.4$ ergibt. Die Glasoberfläche hat also eine kleinere fraktale Dimension als die superglatte Siliziumoberfläche. Die vorgestellte Definition der fraktalen Dimension D als Extrakt des PSD-Spektrums erscheint hiermit sinnvoll.

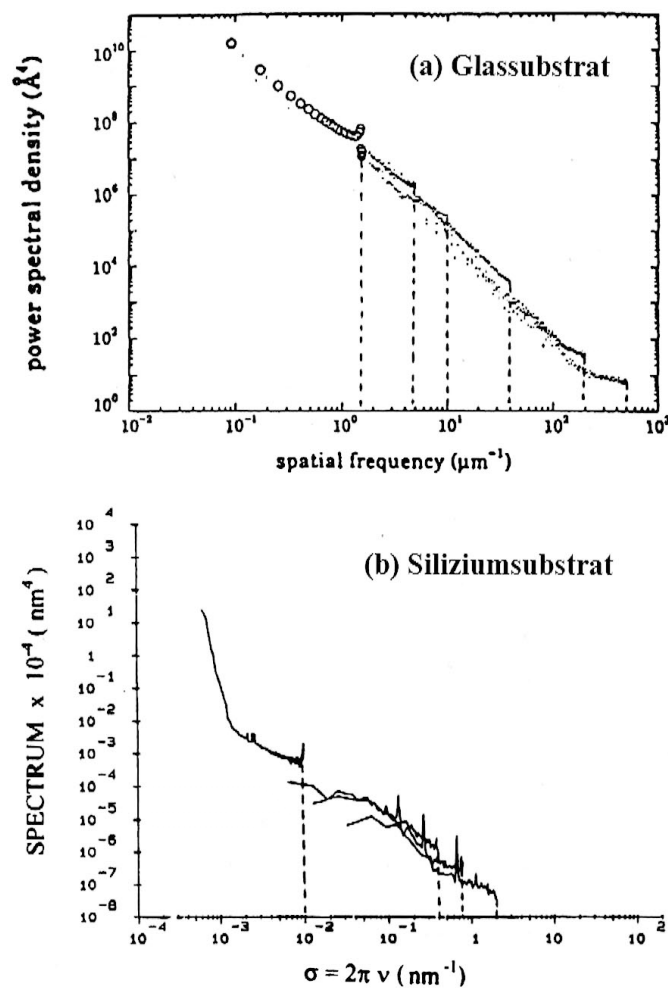


Abb.2-6: 2D-PSD-Spektren (a) eines polierten Glassubstrats und (b) eines superglatten Siliziumsubstrats. Die Rauigkeit, normiert auf die Fläche von $(1 \times 1) \mu\text{m}^2$, liegt für das Glassubstrat im Bereich von 1 nm und für das Siliziumsubstrat bei etwa 0.1 nm. Beide Spektren setzen sich aus Ergebnissen von AFM-Messungen und Lichtstreuexperimenten zusammen. Sie bestätigen die Kompatibilität beider Meßmethoden zur Mikrorauigkeit auf unterschiedlichen lateralen Längenskalen. Die fraktale Dimension D der Glasoberfläche liegt bei $D = 2.4$, die des Siliziumsubstrats bei $D = 2.8$ [Deum1996].

Gemäß [Chur1995] kann man schließlich die gestreute Lichtintensität pro Raumrichtung $dI/d\Omega$ in Abhängigkeit vom 2-dimensionalen PSD-Spektrum wie folgt schreiben:

$$\frac{dI}{d\Omega} \approx \frac{16\pi}{\lambda^4} \cdot I_0 \cdot R \cdot F_{\text{Strehl}} \cdot S_2(f) \quad (2-12)$$

Hier ist R die Reflektivität der optischen Oberfläche und $F_{\text{Strehl}} = \exp[-(4\pi\sigma/\lambda)^2]$ der Strehlfaktor mit Korrelationslänge σ , der die Streuintensität in Richtung des Reflexionswinkels angibt. Mit I_0 ist die insgesamt eingestrahlte Lichtintensität der Wellenlänge λ bzw. Ortsfrequenz $f = (\sin\theta/\lambda)$ für den Streuwinkel θ berücksichtigt. Der Gültigkeitsbereich der Näherungsformel in (2-12) beschränkt sich auf sehr kleine Streuwinkel θ und außerdem wird in dieser Beschreibung die Streuung rotationssymmetrisch angesetzt.

2.2 Röntgenspiegel für die SXPL-Technologie

In Kapitel 1.4 dieser Arbeit als auch in den einleitenden Worten zu Kapitel 2 wurde bereits auf die Zukunftsrelevanz der Projektionslithographie mit weichem Röntgenlicht (SXPL bzw. EUVL-Technologie) hingewiesen. Sie wird für die Massenproduktion integrierter Schaltkreise mit 0.1 μm -Design favorisiert. Das hier benötigte optische System wird sich vollständig aus reflektierender Optik zusammensetzen. Man wird Multischicht-Röntgenspiegel benötigen, die bei fast senkrechtem Lichteinfall gute Reflektivität zeigen, weil es derzeit für diesen Zweck noch keine geeigneten Brechungsinsen oder reflektierende Monobeschichtungen für Röntgenlicht gibt.

Es stellt sich natürlich die Frage, welche Qualität solche Multischicht-Röntgenspiegel besitzen müssen. Mit Sicherheit spielen die Mikrorauigkeiten der Schichtoberflächen eine entscheidende Rolle. Diese können die Reflektivität des Spiegels und damit die Lichtintensität reduzieren. Das wiederum verringert den Waferdurchsatz bei der SXPL, da die Belichtungszeit pro Wafer mit sinkender Reflektivität erhöht werden muß. Die Effizienz einer Lithographieoptik skaliert näherungsweise mit R^m , wobei R die Reflektivität und m die Anzahl reflektierender Optiken berücksichtigt. Normalerweise hat eine kommerzielle SXPL-Optik 7 Spiegel. Für einen Intensitätsverlust pro Spiegel von 10 % ist der Waferdurchsatz damit schon um 52 % reduziert.

So ist es entscheidend zu untersuchen, inwieweit die Mikrorauigkeit die Reflektivität im Bereich des weichen Röntgenlichts beeinflusst und wie glatt die Multischichten werden müssen, um eine sehr gute Reflektivität zu sichern. D.L.Windt et al.[⊗] haben systematische Untersuchungen zur Abhängigkeit der Reflektivität von der Mikrorauigkeit an verschiedenen Multischichtsystemen durchgeführt [Wind1994]. Die wesentlichen Ergebnisse die-

[⊗] D.L.Windt bietet inzwischen unter <http://cletus.phys.columbia.edu/~windt/idl/> Software-Pakete zur Simulation der optischen Eigenschaften von Multischicht-Systemen und zur Auswertung von AFM-Bildern und von WYKO-TOPO-3D-Aufnahmen an.

ser Forschung werden aufgrund des direkten Zusammenhangs mit der Zielsetzung der vorliegenden Arbeit hier in kurzer Form wiedergegeben.

Es werden drei Substrate **A**, **B** und **C** mit unterschiedlicher Mikrorauhigkeit auf die gleiche Art mit 40 Mo/Si-Doppelschichten multibeschichtet. Jede Doppelschicht besteht aus etwa 40 Å amorphem Silizium und 33 Å polykristallinem Molybdän, d.h. eine einzelne Mo/Si-Doppelschicht hat eine Dicke von etwa 73 Å. Für diese Schichtdicke von etwa 7 nm ergibt sich ein Reflexionspeak bei $\lambda/2 = 7$ nm, wodurch sich diese Multischicht für die Reflexion von Licht mit $\lambda = 14$ nm eignet. In Abb.2-7 sieht man, daß sich die Reflektivität im Bereich von $\lambda = 14$ nm, d.h. die Intensität des Reflexionspeaks, offensichtlich für die drei Proben **A**, **B** und **C** unterscheidet. Mit einer Lichtwellenlänge von $\lambda = 14$ nm wird gemäß den Ausführungen in [Wind1994] deshalb experimentiert, weil dies der für die SXPL bzw. EUVL-Technologie vorgesehene Wellenlängenbereich ist, in dem es entsprechende kommerzielle Röntgenquellen gibt.

Inwieweit unterscheiden sich nun die Oberflächen von **A**, **B** und **C**, so daß sich diese unterschiedliche Reflektivität R bei $\lambda = 14$ nm ergibt? Alle drei Proben werden deshalb mit verschiedenen auf mehreren Längenskalen bzgl. ihrer Mikrorauhigkeit untersucht. Im Wellenlängenbereich bis $\lambda = 2$ µm wird mit einem AFM und von da bis zu $\lambda = 438$ µm mit optischen Profilometern der Bauart WYKO TOPO-3D die Proben topographie vermessen. In Abb.2-8 sind die entsprechenden Bilder zu sehen, aus denen PSD-Spektren für den gesamten Ortsfrequenzbereich $f \in [0.001\mu\text{m}^{-1} \dots 100\mu\text{m}^{-1}]$ extrahiert werden, wie in Abb.2-9 zu sehen ist.

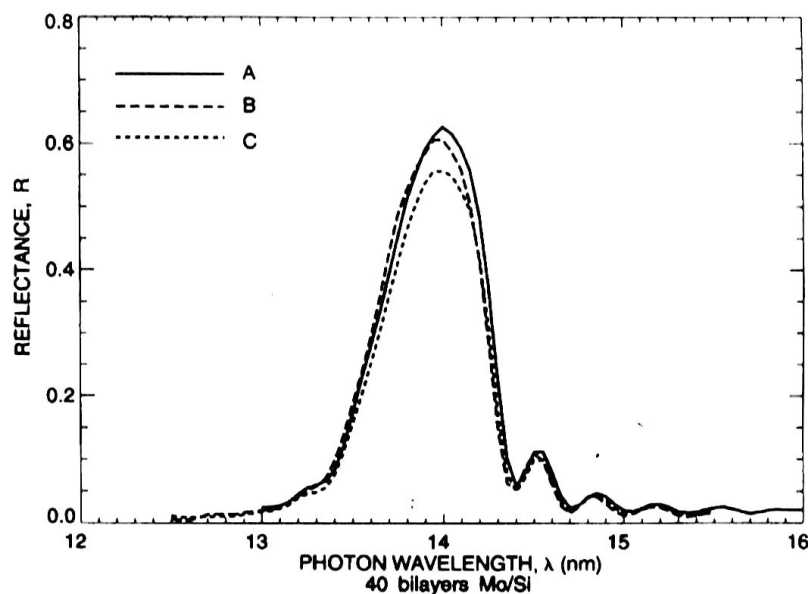


Abb.2-7: Reflexionspeaks der Proben **A**, **B** und **C** bei fast senkrechtem Lichteinfall. Die unterschiedliche Reflektivität rührt von den unterschiedlichen Mikrorauhigkeiten der Substrate her, auf denen die Mo/Si-Doppelschichten aufgebracht werden. [Wind1994].

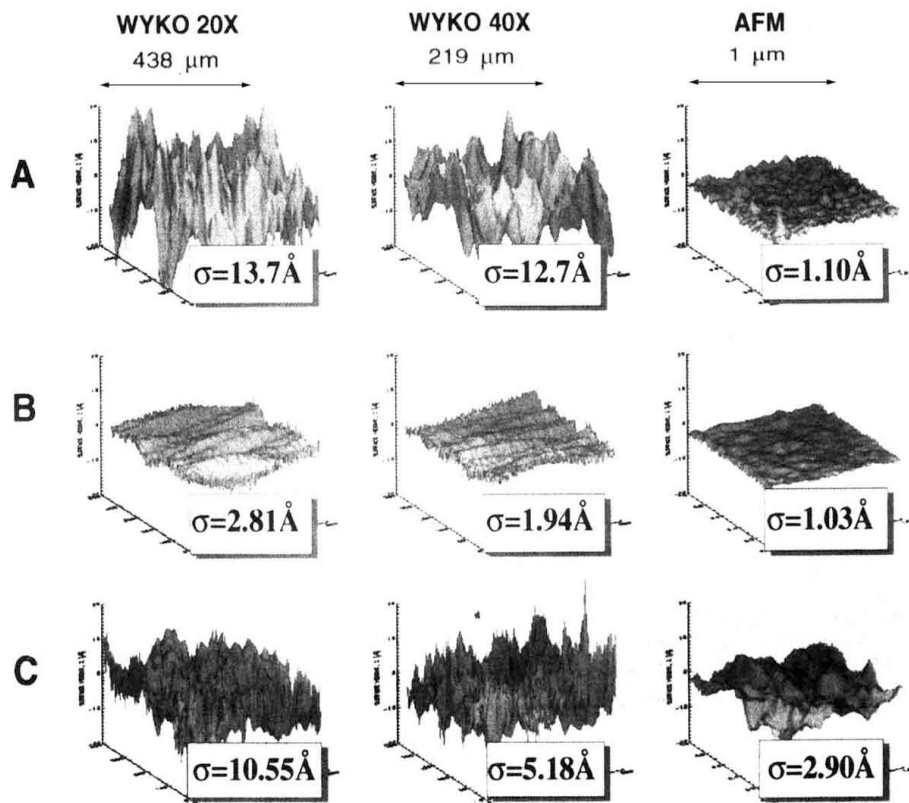


Abb.2-8: Topographien der Substrate **A**, **B**, **C** auf drei verschiedenen Längenskalen [Wind1994].

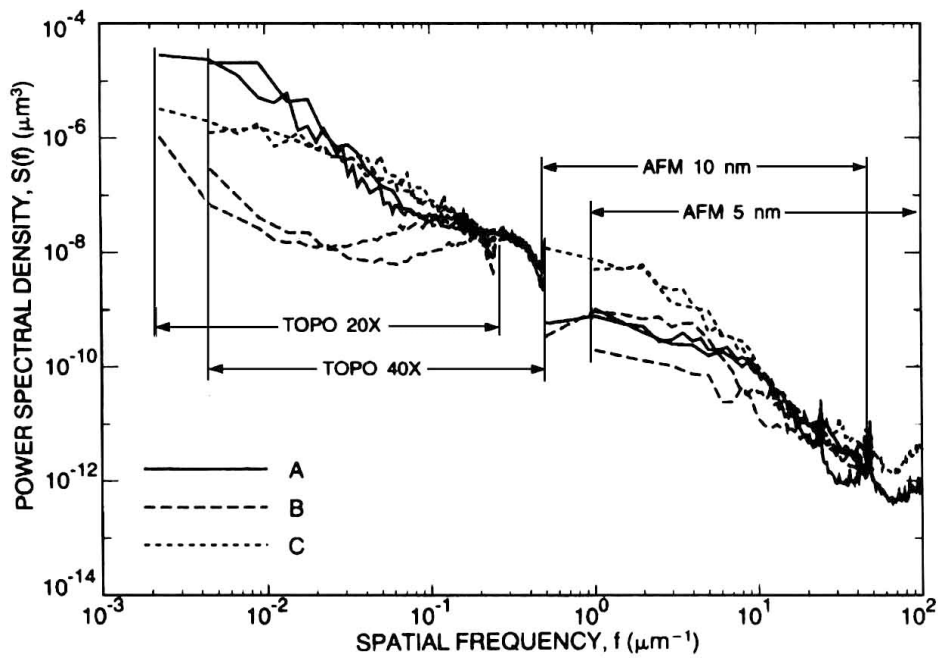


Abb.2-9: 1D-PSD-Spektren für die Proben **A**, **B**, **C** [Wind1994].

In Tab.2-1 sind die RMS-Werte aufgelistet, die aus den jeweiligen Topographie-Aufnahmen bestimmt werden können. Da es sich aber um optische und daher sehr glatte Oberflächen handelt, beschreiben eigentlich die fraktalen Parameter K und n die Mikrorauigkeit der Oberfläche adäquat. Wie für fraktale Oberflächen bereits ausgeführt wurde, skaliert deshalb der RMS-Wert mit der Größe des Scanbereichs. Außerdem ist für alle drei Proben die gemessene Reflektivität angegeben.

Sample	AFM RMS Roughness (Å)		TOPO RMS Roughness (Å)		Soft X-Ray Reflectance	Ergänzung: Fraktale Parameter	
	5 nm– 1 µm	10 nm– 2 µm	1– 219 µm	2– 438 µm		Konstante K [µm ³⁻ⁿ]	Spektraler Index n
A	1.10	1.06	12.73	13.73	62.5 ± 1.0%	1.3×10 ⁻⁹	1.74
B	1.03	1.02	1.94	2.81	60.8 ± 1.0%	1.1×10 ⁻⁹	1.66
C	2.90	2.49	5.18	10.55	56.0 ± 0.9%	1.3×10 ⁻⁹	1.74

Tab.2-1: Auflistung der aus den Topographie-Bildern extrahierten RMS-Werte. Sie sind jeweils im Bezug auf die ausgewertete Fläche angegeben. Da es sich um optische und daher sehr glatte Oberflächen handelt, beschreiben eigentlich die fraktalen Parameter K und n die Oberfläche adäquat und nicht der RMS-Wert. Deshalb sind diese beiden Größen ergänzend zur Tabelle aus [Windt1994] aufgeführt. So erklärt sich auch die starke Abhängigkeit der RMS-Werte von der Größe des Scanbereichs. Außerdem ist für alle drei Proben **A**, **B** und **C** die gemessene Reflektivität angegeben.

Die Experimente von Windt et al. führen zusammenfassend zu den folgenden Ergebnissen:

- Die Reflektivität eines Multischicht-Spiegels für weiches Röntgenlicht hängt im wesentlichen von der Oberflächenbeschaffenheit des Substrats ab, auf dem die Multischichten aufgewachsen werden. Dabei ist eine wichtige Feststellung, daß für die Reflektivität im Bereich des weichen Röntgenlichts nur die Mikrorauigkeit in einem begrenzten Bereich der Ortsfrequenz relevant zu sein scheint, nämlich für Ortsfrequenzen $f \in [1\mu\text{m}^{-1} \dots 100\mu\text{m}^{-1}]$. Hier sollte der integrierte RMS-Wert nicht größer als 1 Å sein.
- Die höchste Reflektivität für weiches Röntgenlicht ($\lambda = 14 \text{ nm}$) zeigen die Proben **A** mit 62.5 % und **B** mit 60.8 %, was hier nicht als signifikant verschieden gewertet wird. Im Vergleich dazu liegt die Reflektivität von Probe **C** nur bei 56.0 %. Dieses Ergebnis bestätigt die eben gemachte Aussage über die Korrelation zwischen Mikrorauigkeit und Reflektivität. Wie Tab.2-1 zu entnehmen ist, zeigt gerade Probe **A** im Wellenlängenbereich $[1\mu\text{m} \dots 219\mu\text{m}]$ die größte Rauigkeit mit fast 13 Å, während Probe **B** hier bei 3 Å und Probe **C** bei etwa 5 Å liegt. Für die größeren Wellenlängen $\lambda > 1\mu\text{m}$ bzw. die kleineren Ortsfrequenzen $f < 1\mu\text{m}^{-1}$ fehlt also jegliche Korrelation zur Reflektivität für Röntgenlicht. D.h. aber auch, daß ein optisches Profilometer im Ortsfrequenzbereich $[0.001\mu\text{m}^{-1} \dots 0.5\mu\text{m}^{-1}]$ kein geeignetes Instrument zur Qualitätskontrolle für diese Röntgenspiegel ist.

- Es genügt die Oberflächenbeschaffenheit des Substrats zu bestimmen, um die Reflektivität des später auf diesem aufzuwachsenden Multischicht-Reflektors vorauszusagen, da sich die Rauigkeitsstruktur der Substratoberfläche auf die Topographie des Multischichtsystems überträgt.

Zusammenfassend und wichtig im Hinblick auf Multischicht-Röntgenspiegel für die zukünftige SXPL- bzw. EUVL-Technologie ist festzuhalten, daß zur Erreichung einer hohen Reflektivität für eine Lichtwellenlänge von 14 nm der integrierte RMS-Wert im Bereich von Ortsfrequenzen $f \in [1\mu\text{m}^{-1} \dots 100\mu\text{m}^{-1}]$ nicht größer als 1 \AA sein sollte. Es gilt also, die Qualität der Substrate für solche Multischichtsysteme hinsichtlich ihrer Mikrorauhigkeit zu optimieren – die Mikrorauhigkeiten der Multischichten passen sich entsprechend an. Erstaunlich und in [Wind1994] nicht erklärt ist die Beobachtung, daß der Bereich von Ortsfrequenzen $f < 1\mu\text{m}^{-1}$ vollständig unkorreliert mit der Reflektivität für $\lambda = 14 \text{ nm}$ zu sein scheint, d.h. daß Ortswellenlängen $\lambda > 1\mu\text{m}$ in diesem Zusammenhang nicht von Interesse sind. Es genügt also und ist zugleich aber auch notwendig, mögliche Substrate mittels des AFM in einem Scanbereich ($1\mu\text{m} \times 1\mu\text{m}$) zu analysieren.

2.3 Messung von Mikrorauhigkeit

In diesem Unterkapitel werden verschiedene Methoden zur Mikrorauigkeitsanalyse bei optischen Oberflächen beschrieben werden. Die Wahl fällt in diesem Zusammenhang auf genau die Methoden, die geeignet sind, sehr glatte Oberflächen zu analysieren. Zwei der drei Methoden, die im folgenden kurz dargestellt werden, sind optische Methoden: zunächst die differentielle Interferenz-Kontrast-Mikroskopie (DICM) und anschließend die Röntgenlichtstreuung [deKo1979]. Zum Schluß ist die Atomkraftmikroskopie (AFM = Atomic Force Microscopy) aufzuführen, die als Analysemethode auf einer Flächenskala von einigen μm^2 von großem Interesse ist und im Rahmen der vorliegenden Dissertation angewendet wurde (Kap.5.2).

Differential Interference Contrast Microscopy (DICM). Die Vorteile dieses Analyse-Instruments bestehen aus drei Eigenschaften: einem großen lateralen Auflösungsvermögen bis zu wenigen Ångström, einer einfachen Handhabung und damit keinem langwierigen Meßverfahren und schließlich der Verwendbarkeit für beschichtete und unbeschichtete Oberflächen. Diese Eigenschaften ermöglichen es, die Beschaffenheit einer optischen Oberfläche während des Polierverfahrens zu monitoren. Man eicht über Röntgenlichtstreuung die DICM-Aufnahmen bezüglich der abgebildeten Rauigkeit bzw. des abgebildeten Kontrastes, der ein Maß für die Rauigkeit darstellt. In der Optik-Fertigung greift man bei der Qualitätskontrolle gerne auf die DICM zurück. Das Meßprinzip und die technische Realisierung der DICM ist ausführlich bei [Noma1955] beschrieben. Wichtig zu erwähnen ist, daß die DICM nicht auf die Höhe der Mikrorauigkeitsstrukturen, sondern auf deren Steilheit sensitiv ist.

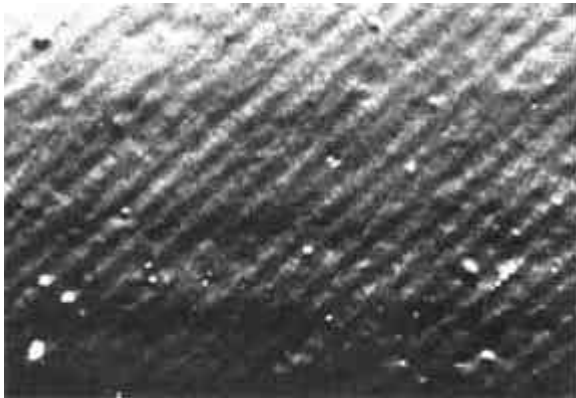


Abb.2-10:

DICM-Aufnahme Oberfläche mit periodischer Wellenstruktur (Periode: $50\mu\text{m}$) und einer Rauigkeit von $\text{RMS} = 4.7 \text{ \AA}$. Die Aufnahme wurde mit einem 4-fach vergrößernden Objektiv gemacht [deKo1979].

Röntgen-Lichtstreuung. Die Qualität von Röntgenoptik läßt sich naheliegenderweise mit Röntgenlichtstreuung direkt testen. Man kann ohne jegliche theoretische Annahmen die optischen Eigenschaften in dem Wellenlängenbereich testen, in dem die Optik eingesetzt werden soll. Die Röntgenlichtstreuung ist allerdings relativ aufwendig. Um Astronomie-Optik zu testen, muß die Röntgenstreuung für extrem flache Einfallswinkel im Vakuum durchgeführt werden. In jedem Fall ist Röntgenlichtstreuung zu aufwendig, um als Kontrollwerkzeug während eines Polierverfahrens im Bereich der Optikfertigung kaum verwendet werden zu können.

Man kann mittels der Lichtstreuthorien, die im vorigen Unterkapitel diskutiert wurden, aus den Daten der Röntgenlichtstreuung Aussagen über die Mikrorauigkeit der untersuchten Oberfläche extrahieren, die z.B. mit Atomkraftmikroskopie verifiziert werden können..

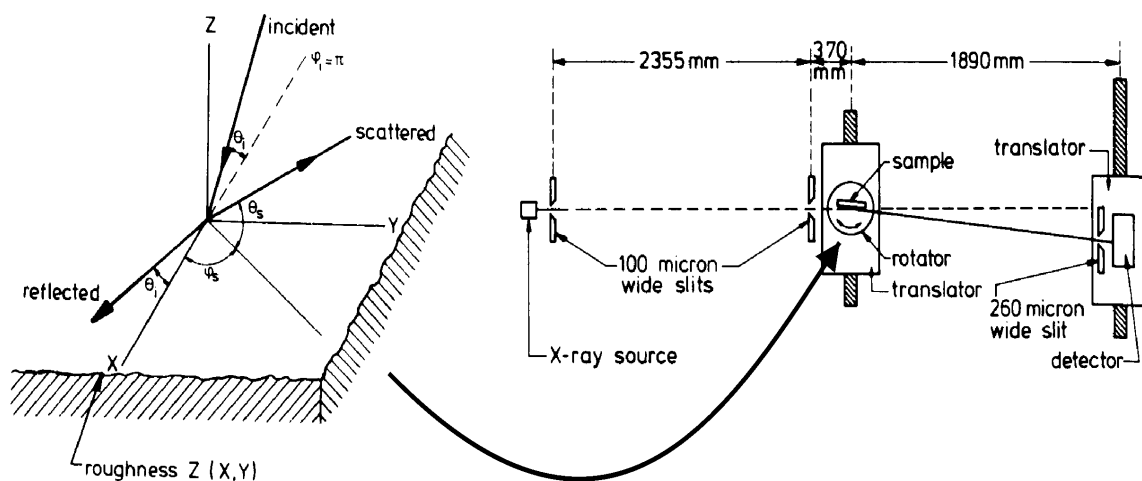


Abb.2-11: Prinzip der Röntgenstreuung. Röntgenlicht wird unter dem Einfallswinkel θ_i eingestrahlt und das unter verschiedenen Streuwinkeln θ_s gestreute Lichtsignal wird analysiert [deKo1979].

Atomkraftmikroskopie (Atomic Force Microscopy). Mit diesem Derivat der Rastersondenmikroskopie läßt sich recht unaufwendig die Oberflächenrauigkeit vielfältigster Proben, insbesondere elektrischer Isolatoren, auf einer Flächenskala von einigen μm^2 ermitteln. Die Atomkraftmikroskopie wurde im Rahmen der vorliegenden Arbeit zur Bestimmung der Mikrorauhigkeit von Proben verwendet. Die Funktionsweise eines AFM ist daher im Rahmen von Kapitel 5.2 im Detail behandelt, weshalb hier auf weitere Ausführungen verzichtet wird.

3 Forschungsstand – Clustersputtern

Noch 1995 stellen W.L.Brown und M.Sosnowski in ihrem Paper zu „*Cluster-solid interaction experiments*“ [Brow1995] fest, daß es zwar eine große Zahl experimenteller Ergebnisse zur Wechselwirkung zwischen Cluster und Festkörper gibt, aber die eigentlich systematische Forschung noch anstünde. Auch die Glättung von Oberflächen und erst recht eine kurzfristige industrielle Nutzung des Clustersputterns wird in Zweifel gezogen. Große Entwicklungsarbeit wird gefordert, wie dieses Zitat aus [Brow1995] zeigt:

„... With the possible exception of wafer cleaning with aerosols, the technological application of cluster bombardment of solids is still years in the future. While the non-linear effects of cluster size and energy in sputtering (and surface smoothing ?) are technically and scientifically interesting, the development of cluster sources and systems to utilize these effects will require extensive development...“

Schon 1986 wurden gezielt erste Clustersputterexperimente am Brookhaven National Laboratory, USA, von Friedman et al. durchgeführt [Matt1986] [Beuh1986]. Eine sehr hohe Sputterausbeute im Vergleich mit Atomionen wurde festgestellt und erste Überlegungen zur Oberflächenstrukturierung mittels Clusterionenstrahlen angestellt. Am Kernforschungszentrum in Karlsruhe wurde 1988 damit begonnen, das Clustersputtern hinsichtlich der Strukturierung und des Reparierens von Lithographiemasken und damit anwendungsbezogen zu untersuchen. Ergebnisse dieser Untersuchungen von W.Henkes, R.Klingelhöfer und B.Krevet [Henk1989] [Henk1995] sind in Kap.3.2 wiedergegeben.

Die einzige Gruppe, die bisher auf dem Gebiet der Clusterionenstrahlexperimente systematisch und insbesondere auch anwendungsbezogen über die letzten Jahre hinweg gearbeitet, ist die Gruppe von I.Yamada am Kyoto University Ion Beam Engineering Experimental Laboratory in Japan. Seit Ende der 1980-er Jahre wurden hier mehrere Apparaturen aufgebaut und entwickelt, um sowohl im Bereich des Clustersputterns, als auch der Dünn-schichtherstellung und -dotierung intensiv zu forschen. So gibt es auch im Bereich theoretischer Beschreibungsmodelle und Simulationen eine große Zahl an Veröffentlichungen im Verlauf des letzten Jahrzehnts. Veröffentlichungen der Gruppe I.Yamada sind hier ab 1995 berücksichtigt – zu dem Zeitpunkt, zu dem wohl der eigentliche Clusterionenstrahl-Boom begann, gerade mit Blick auf das Zitat aus [Brow1995]. Man kann die Entwicklung und die Fortschritte bis heute gut verfolgen. Mit drei Papern in NIM B aus den Jahren 1999 [Inse1999] und 2000 [Toyo2000b][Yama2000] scheint gerade der Glättungs-

effekt aufgrund eines neuen Simulationsmodells endlich verstehbar. Diese neue Beschreibung ist kompatibel mit einem mesoskopischen Beschreibungsmodell der Gruppe H.Haberland in Freiburg [Mose2000], die damit die Entstehung sehr glatter dünner Schichten mittels Clusterstrahlen erklären und auf die Anwendbarkeit des Modells im Hinblick auf den Glättungseffekt beim Clustersputtern verweisen.

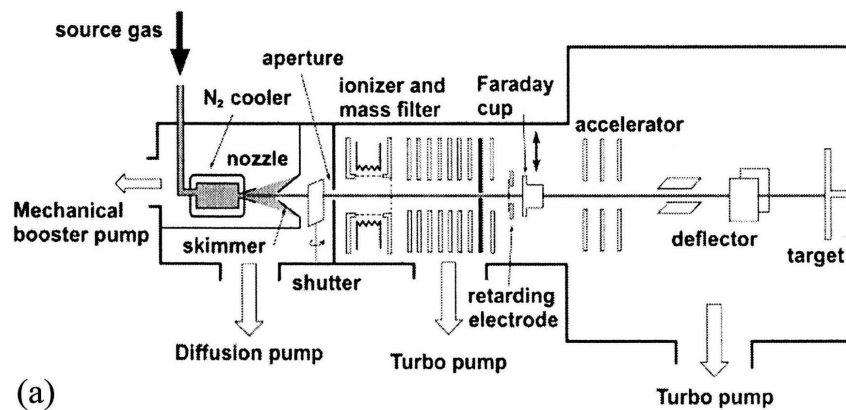
Auf der Basis der Ergebnisse und der experimentellen Erfahrung der Gruppe von I.Yamada wurde schließlich bei der Epion Corporation in Billerica, Massachusetts in USA, die GCIB-Technologie (Gas Cluster Ion Beams) entwickelt. Die Firma wurde 1984 als Labor zur Entwicklung von Laser- und Ionenstrahl-Techniken für Materialbearbeitung gegründet. In Zusammenarbeit mit der Epion Corporation gibt es einige Veröffentlichungen zur Glättung von Metallfilmen [Fenn2000b], Infrarot-Optik-Oberflächen [DiFi2000] und polykristallinen Siliziumtargets [Toyo2000a].

Trotz solcher recht umfangreichen Arbeiten zum Clustersputtern gibt es natürlich wichtige offene Fragen bzw. weiterhin Forschungsbedarf. Wie bereits angesprochen gibt es zu Oberflächen im Rauigkeitsbereich unterhalb 0.2 nm kaum systematische Untersuchungen, was im weiteren als Glättung auf Sub-Nanometerskala bezeichnet werden soll. Es wird meist nur über erfolgreiche einzelne Glättungserfolge berichtet. Zu polierten Siliziumoxidoberflächen, die ja im Interesse dieser Arbeit stehen, konnten insbesondere keinerlei systematische Ergebnisse recherchiert werden, so daß entsprechende Experimente sicher lohnend sind. Die Frage nach der Eignung des Clustersputterns als Poliermethode für optische Komponenten der EUVL- oder SXPL-Technologie wird durch Veröffentlichungen wie [DiFi2000], wo man sich mit der Glättung von Nickel- und Beryllium-Infrarot-Spiegeln beschäftigt, nicht beantwortet. Denn da wird auf einer Rauigkeitsskala zwischen 10 nm und 0.3 nm gearbeitet. So ist diese Frage also offen. Schließlich gibt es viele Simulationen zum Clustersputterprozeß, die in guter Übereinstimmung mit Experimenten sind. Trotzdem ist die Richtigkeit des aktuellen Modells nicht experimentell bestätigt. Es gilt, neben anwendungsorientierter Forschung Grundlagenforschung zur Klärung des Clustersputterprozesses zu betreiben. Dabei wird es nicht genügen, die Effekte des Clustersputterns wie Glättung, hohe Sputteryield und Kraterbildung zu studieren. Vielmehr ist es notwendig, thermodynamische Parameter wie Druck und Temperatur während des Clustersputterprozesses zu analysieren und anstelle einer doch stark mechanischen Betrachtungsweise thermodynamische Betrachtungsweisen mehr ins Spiel zu bringen – dazu sind im Ausblick Überlegungen angestellt (siehe Kap.7).

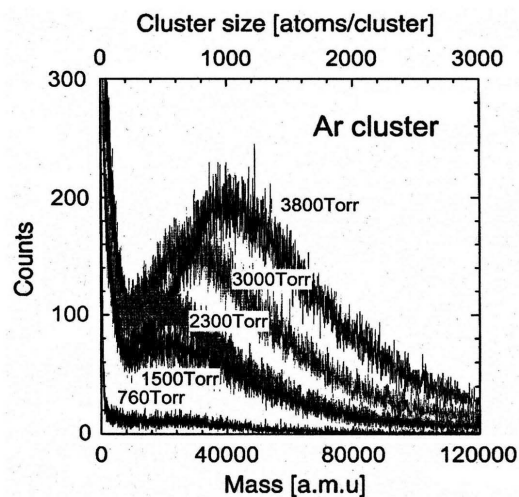
3.1 Clustersputter-Apparaturen

Die experimentellen Aufbauten zum Clustersputtern sind im Wesentlichen vom „*Bautyp Yamada*“ (siehe Abb.3-1(a)). Es handelt sich um UHV-Apparaturen. Ein kollimierter Strahl aus neutralen Gasclustern wird mittels Überschall-Düsenstrahlexpansion erzeugt. Dabei drückt man das Gas mit mehrfachem Atmosphärendruck durch eine kleine Düsen

(typischerweise eine sog. Lavaldüse mit 100 μm Öffnungsdurchmesser) ins Vakuum. Die hohe Kollisionsrate unter den Gasteilchen während dieser adiabatischen Expansion (siehe Kap.4.1) in und kurz hinter der Düse erlauben den Abtransport von Kondensationswärme, so daß prinzipiell eine Bildung von Clustern möglich wird. Real wird allerdings nur ein kleiner Bruchteil der Teilchen im Gasstrom Cluster bilden. Mit einem Skimmer (siehe Kap.4.2) wird der Großteil der Gasteilchen, die sich nicht zu Clustern formieren, eliminiert. Der stabile Clusterstrahlbereich wird herausgeschält und über mehrere differentielle Pumpstufen in den UHV-Bereich der Apparatur überführt (siehe Kap.4.2). Die Apparatur erlaubt Experimente mit Ar_N , $(\text{O}_2)_N$, $(\text{CO}_2)_N$, $(\text{SF}_6)_N$, $(\text{N}_2)_N$ etc. bei $N = 2 \dots 10^4$, wobei man stets eine breite Massenverteilung von Clustern erzeugt, deren Schwerpunkt von Expansionsparametern wie z.B. den Drücken vor und hinter der Düse, der Düsenspannung und dem Düsendurchmesser abhängt. In Abb.3-1 (b) sind typische Massenspektren von Argonclustern abgebildet.



(a)



(b)

Abb.3-1: (a) Skizze der 30keV-Clustersputtermaschine der Gruppe I.Yamada [Yama1999].
(b) Typische Massenspektren für Argoncluster (mit einer time-of-flight (TOF) Methode aufgenommen) [Yama2000].

Die zunächst neutralen Cluster werden hinter dem ersten Skimmer mittels Elektronenstoß ionisiert. Für Argoncluster einer mittleren Größe $\bar{N} \approx 1000$ werden Ionenströme bis $100 \mu\text{A}$ erreicht [Yama2000]. Sowohl die Clustergröße als auch die Strahlintensität wachsen mit dem Druck vor der Düse. Die Massenseparation bzw. die Ausblendung vom Monomerionen ist mit einer Gegenfeldmethode realisiert. Im Überschalldüsenstrahl haben sowohl die großen als auch die kleinen Clusterionen etwa die gleiche Strömungsgeschwindigkeit und damit die großen Cluster große kinetische Energie und die kleinen geringe kinetische Energie. Mit hintereinandergeschalteten elektrostatischen Feldrängen auf geeigneten Potentialen wird nun ein Gegenfeld bzw. ein Potentialberg erzeugt, den die Ionen überwinden müssen. In Abhängigkeit von der Höhe des Potentialbergs werden Clusterionen unterhalb einer bestimmten Schwellenenergie bzw. Masse ausgebremst werden. Diese Methode ist im Vergleich zu dem alternativ verwendeten E×B-Massenfilter sehr einfach und für Clustersputter-Experimente vollständig hinreichend, da es hier lediglich um die Ausblendung der Monomerionen geht.

3.2 Sputteryield – Physikalisches Sputtern

In den nun folgenden Unterkapiteln sind rein phänomenologisch die Ergebnisse zur Sputteryield bzw. Materialabtragsrate in Abhängigkeit von verschiedenen Sputterparametern wiedergegeben. Die Interpretation bzw. Begründung für die beschriebenen Zusammenhänge wird in Kap.3.6 im Rahmen der Modellbeschreibung des Clustersputterprozesses geliefert. Die Begrifflichkeit „Physikalisches Sputtern“ ist zur bewußten Unterscheidung vom chemisch reaktiven Sputtern mit Clusterionen aus SF_6 (Kap.3.4) gewählt.

3.2.1 Sputterexperimente mit CO_2^+ und Ar_N^+ Clusterionen an verschiedenen Targetmaterialien

Die meisten Veröffentlichungen zur Sputterrate gibt es für das Clustersputtern mit Kohlendioxid- und Argonclusterionen. Die Kohlendioxidcluster wurden zunächst deshalb verwendet, weil für CO_2 hohe Clusterstrahlintensitäten erreicht werden können. Das Sputtern mit Argonclustern wird allerdings inzwischen bevorzugt angewandt, da Argon im Gegensatz zu CO_2 inert ist und auch hier relativ hohe Ionenstromintensitäten erreicht werden. Überblicksartig werden hier Sputteryield-Ergebnisse für verschiedene Targetmaterialien vorgestellt.

Die älteste hier vorgestellte Veröffentlichung stammt von W.Henkes und R.Klingelhöfer aus dem Jahr 1989 [Henk1989]. Sie haben zwei sich überkreuzende Tantaldrähte mit $(\text{CO}_2)_{1000}^+$ Clusterionenstrahlen einer Energie von 150keV pro Clusterion bombardiert und einen erheblichen Materialabtrag festgestellt (Abb.3-2). Aus dem Jahr 1995 gibt es dann eine Publikation von W.Henkes und B.Krevet mit systematischen Sputteryield-Studien zu unterschiedlichen Materialien [Henk1995]. Die Abtragsrate wird hier für $(\text{CO}_2)_{1000}^+$ Clus-

terionen einer Energie von 155keV pro Clusterion für 10 verschiedenen Targetmaterialien angegeben – zum einen als Abtragsrate in [$\mu\text{m}/\text{h}$], zum anderen relativ zur geringsten Abtragsrate bei Wolfram (Tab.3-1).

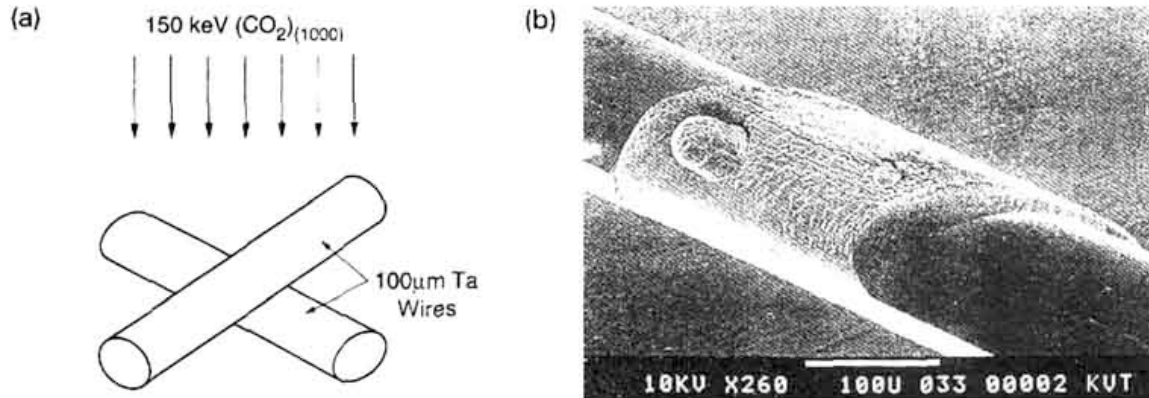


Abb.3-2: (a) Experimenteller Aufbau von W.Henkes und R.Klingelhöfer, in dem ein Paar von Tantal-Drähten mit $(\text{CO}_2)_{1000}^+$ Clusterionenstrahlen bombardiert werden. Dabei stellt der obere Draht eine Maske für den unteren Draht dar. (b) SEM-Aufnahme des unteren Drahts nach der Clusterbestrahlung. Der Draht zeigt außerhalb seiner Maskierung durch den oberen Draht einen erheblicher Materialabtrag. [Henk1989][Brow1995].

Material	Abtragsrate	
	Relativ zu Wolfram	$\mu\text{m}/\text{h}$
Wolfram	1,0	0,97
Aluminium	4,00	3,86
Nickel	4,57	4,42
Tantal	4,97	4,80
Saphir	5,00	4,83
Diamant	6,88	6,65
Kupfer	8,00	7,73
Magnesium	8,89	8,59
Silber	12,0	11,6
Silizium	20,0	19,3

Tab.3-1:
Abtragsraten für das Sputtern mit $(\text{CO}_2)_{1000}^+$ Clusterionen bei 155keV pro Clusterion, 20 nA Ionenstrom und einem Strahldurchmesser von 1.5 mm für verschiedenen Materialien. [Henk1995][Stol1998]

Die Abhängigkeit des Materialabtrags bzw. der Sputteryield Y von der Ordnungszahl des Targetmaterials wird auch in [Yama1995][Yama1996][Mats1997] untersucht. Dort wird die Sputteryield in der Einheit gesputterter Teilchen pro eingeschlagenes Clusterion über der Ordnungszahl des jeweiligen Targetmaterials angegeben. Aus [Yama1996] ist beispielhaft in Abb.3-3 ein solches Diagramm abgedruckt. Wie auch bei den Karlsruher Forschern, findet man eine starke Abhängigkeit der Sputteryield vom Targetmaterial. Zum Vergleich sind die Raten für das Sputtern mit Ar_{3000}^+ und $(\text{CO}_2)_{3000}^+$ Clusterionen mit einer Energie von 20keV aufgetragen, sowie die Sputteryield, die sich äquivalent beim Sputtern mit Ar-

gon-Monomerionen einer Energie von 20 keV ergibt. Beim Atomionensputtern ist die Sputterrata eine ganze Größenordnung kleiner als beim Sputtern mit Clusterionen und damit verbunden ist die Abhängigkeit von der Atomzahl des Targetmaterials ebenfalls eine Größenordnung geringer. Außerdem zeigen Argonclusterionen für fast alle Materialien eine leicht höhere Sputterrata als die Kohlendioxidclusterionen – Ausnahme ist nur das Silbertarget.

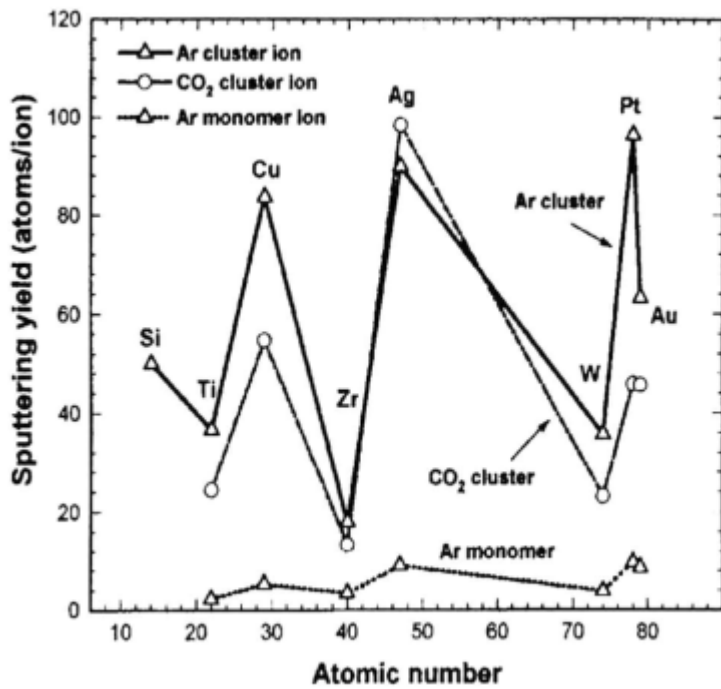


Abb.3-3: Abhängigkeit der Sputteryield Y von der Ordnungszahl des Targetmaterials für Ar_{3000}^+ , $(CO_2)_{3000}^+$ und Ar^+ jeweils bei 20keV pro Gesamtteilchen. [Yama1996]

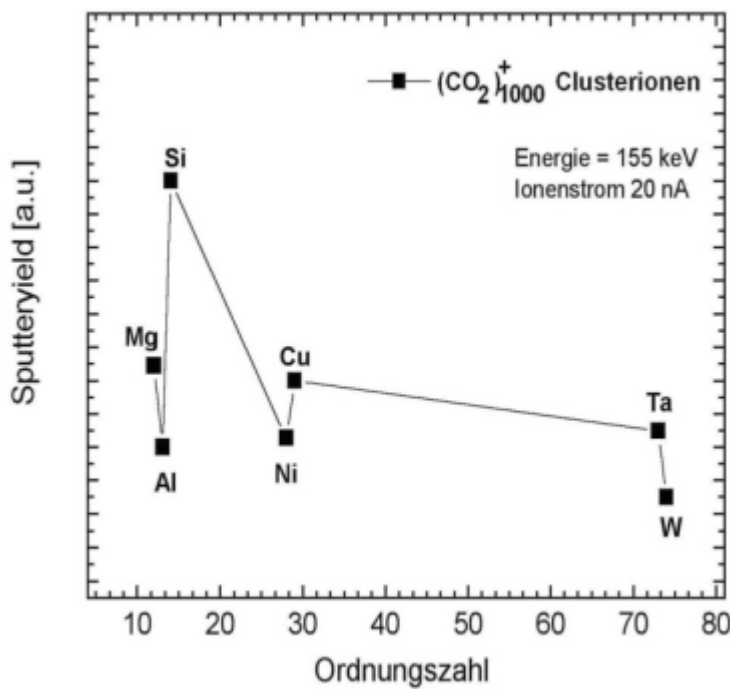


Abb.3-4: Auftrag der Sputteryields aus der Tab.3-1 [Henk1995]. Hier zum besseren Vergleich mit [Yama1996] eine zu Abb.3-3 analoge Auftragung gewählt. Qualitativ ist eine starke Abhängigkeit der Sputteryield Y vom Targetmaterial erkennbar.

In Abb.3-4 sind die Ergebnisse von W.Henkes und B.Krevet aus Tab.3-1 zum besseren Vergleich mit [Yama1996] analog zur Darstellung in Abb.3-3 aufgetragen. Man erkennt, daß auch bei W.Henkes und B.Krevet die Abtragsrate mit der Ordnungszahl des Targetmaterials variiert.

Aus Abb.3-3 kann man ableiten, daß sich die Sputteryield für Clusterionen genauso wie für Atomionen antiproportional zur Sublimationsenergie der Targetatome verhält [Mats1997]. In Abb.3-4 ergibt sich dann allerdings für Silizium ein Widerspruch. Die Sputterrate für Silizium relativ zu Wolfram liegt bei [Yama1996] bei einem Faktor 1.5, während sich bei [Henk1995] ein Faktor 20 ergibt. D.h. Silizium zeigt bei [Henk1995] eine ganz andere Relation zu anderen Materialien als bei [Yama1996]. Dann kann hier aber auch keine direkte Abhängigkeit der Abtragsrate von der Sublimationsenergie der Targetatome mehr gegeben sein. Ein Erklärungsansatz für diese Abweichung bei [Henk1995] ist, daß hier im Vergleich zu Yamada et al.mit einem Faktor 10 höherer Gesamtenergie gearbeitet wird. Die Nichtlinearität des Clustersputter-Prozesses wirkt sich offensichtlich auf den direkten Zusammenhang zwischen Sputteryield und Sublimationsenergie der Targetatome aus. Um aber wirklich zu verstehen, was die Ursache der Abweichung ist, muß der Clustersputterprozeß erst wirklich im Detail begriffen werden.

3.2.2 Energieabhängigkeit der Sputteryield

In Abb.3-5 ist eine Messung aus [Mats1997] abgebildet. Die Sputterrate ist für Silber- und Kupfertargets beim Beschuß mit Ar^+_{3000} Clusterionen einer Energie von bis zu 25 keV aufgetragen. Die Dosis liegt bei $5 \cdot 10^{16}$ Ionen/cm². Der Zusammenhang zwischen Sputteryield und Sputterenergie läßt sich hier sehr gut linear beschreiben. Im Vergleich dazu hängt die Sputteryield für Atomionen nur von der Quadratwurzel der Energie abhängig.

Weiter ist in Abb.3-5 analog zum Atomionensputtern eine Schwellenenergie erkennbar, ab der eine Sputterrate nachweisbar ist, bei der also der Sputterprozeß beginnt. Diese Schwelle liegt für Silber- und Kupfertargets bei etwa 6 keV, d.h. bei 2 eV pro Clusteratom. Die Schwellenenergien für das Sputtern mit Ar^+ Atomionen liegen für Silber bei 15 eV und für Kupfer 17 eV. Beim Clustersputtern setzt im Vergleich zum Monomersputtern der Materialabtrag also schon bei erheblich geringeren Energien ein. Allein hieraus kann man schließen, daß sich der Sputterprozeß für Atomionen vollständig von dem für Clusterionen unterscheiden muß und einer experimentellen Aufklärung bedarf.

Auch W.Henkes und B.Krevet berichten von Untersuchungen zur Abhängigkeit der Sputterausbeute von der Energie bei Variation zwischen 156 keV und 260 keV für $(\text{CO}_2)^+_{1000}$ Clusterionen mit Ionenströmen zwischen 30 nA und 200 nA [Henk1995]. Sie stellen aber keinen linearen Zusammenhang mit der Energie, sondern eine quadratische Abhängigkeit fest. Das ist aber kein Widerspruch zum Ergebnis von Matsuo et al., weil W.Henkes und B.Krevet mit Gesamtenergien arbeiten, die eine Größenordnung über denen von Matsuo et al. liegen. Auch hier wird erst eine grundlegende Aufklärung des Clustersputterprozesses ein tieferes Verständnis des Zusammenhangs zwischen Abtragsrate und Sputterenergie pro Clusterion oder Clustermonomer ermöglichen.

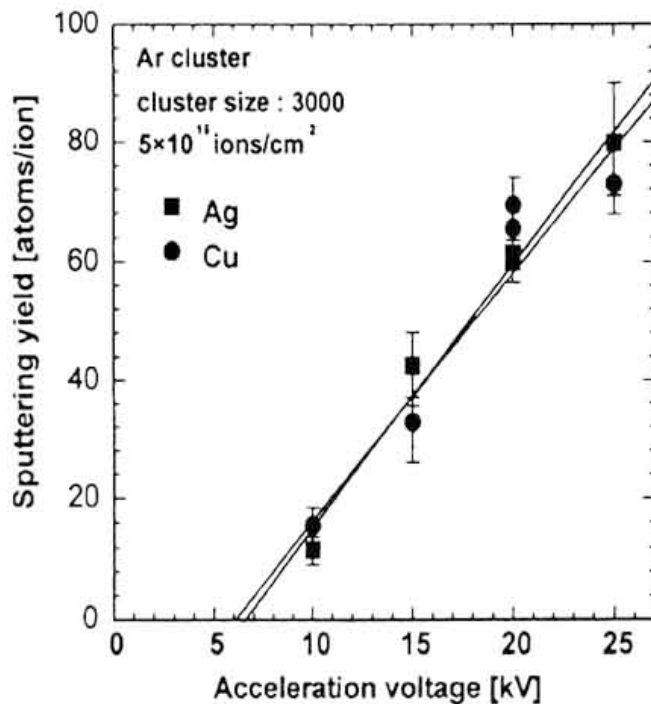


Abb.3-5:
Energieabhängigkeit der Sputteryield für Silber- bzw. Kupfertargets beim Beschuß mit Ar^+_{3000} Clusterionen bei einer Dosis von $5 \cdot 10^{16}$ Ionen/cm². Eine Gerade fittet in beiden Fällen die Meßwerte recht gut [Mats1997].

3.2.3 Dosisabhängigkeit der Sputteryield

Eine Dosisabhängigkeit der Sputteryield ist nicht nachweisbar und ist anschaulich auch nicht zu erwarten. So ergibt sich beim Auftrag der Sputtertiefen bei unterschiedlichen Targets für verschiedene Bestrahlungsdosen ein linearer Zusammenhang. In Abb.3-6 ist eine solche Messung der Sputtertiefen in Abhängigkeit von der Clusterionendosis für Silber-, Kupfer-, Gold-, Wolfram-, Zirkon und Siliziumtargets beim Beschuß mit Ar^+_{3000} Clusterionen mit 20keV Energie abgebildet. Die Sputtertiefen wurden hier jeweils mit einem Profilometer ausgemessen.

3.2.4 Sputteryield unter Variation des Einschlußwinkels θ

Beim Sputtern mit Atomionen ist die Sputteryield für sehr flache Einfallswinkel des Ionenstrahls höher als bei senkrechtem Einfall. Auch hier verhalten sich Clusterionen anders. Man stellt fest, daß sich die Sputteryield beim Sputtern mit Clusterionen quasi komplementär verhält. Beim Atomionensputtern wächst die Sputteryield mit dem Einfallswinkel θ gemäß $(1 / \cos \theta)$ [Sigm1973], d.h. bei $\theta = 0^\circ$ ist die Sputterrate verhältnismäßig klein, während sie bei $\theta = 60^\circ$ schon auf das Doppelte angewachsen ist. Beim Clustersputtern hingegen stellt man fest, daß die Sputterrate für $\theta = 0^\circ$ am größten ist und mit anwachsendem θ kleiner wird. Hier ist der Materialabtrag direkt proportional zu $\cos \theta$. In Abb.3-7 sind Messungen zum Verlauf der Sputteryield in Abhängigkeit von θ abgebildet. Dabei ist die Sputteryield bei $\theta = 0^\circ$ auf 1 normiert und zusätzlich der theoretische Verlauf für das Monomersputtern eingezeichnet.

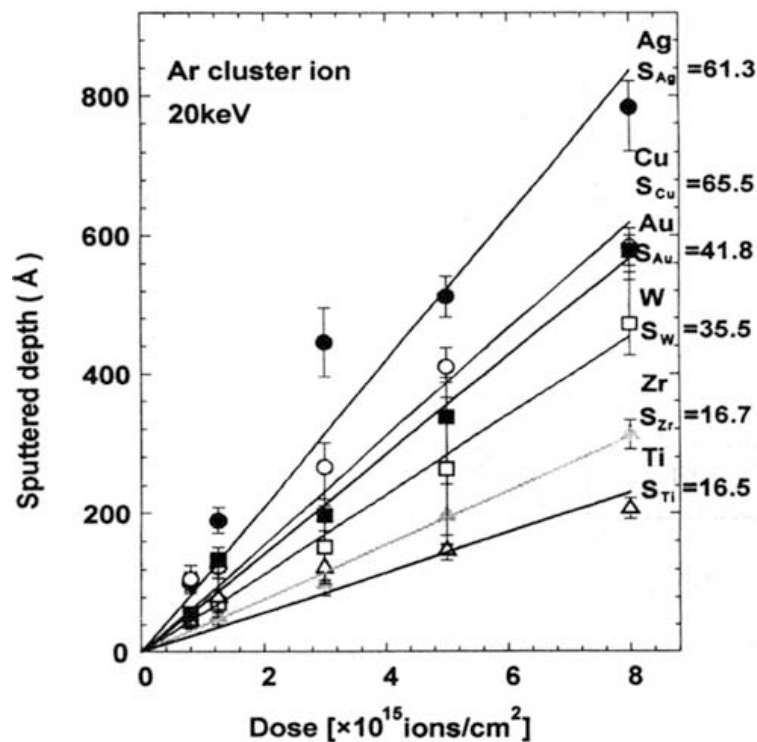


Abb.3-6: Auftrag der Sputtertiefen [Å] in Abhängigkeit von der Clusterionendosis für verschiedene Targets nach dem Beschuss mit Ar_{3000}^+ bei 20keV [Mats1997].

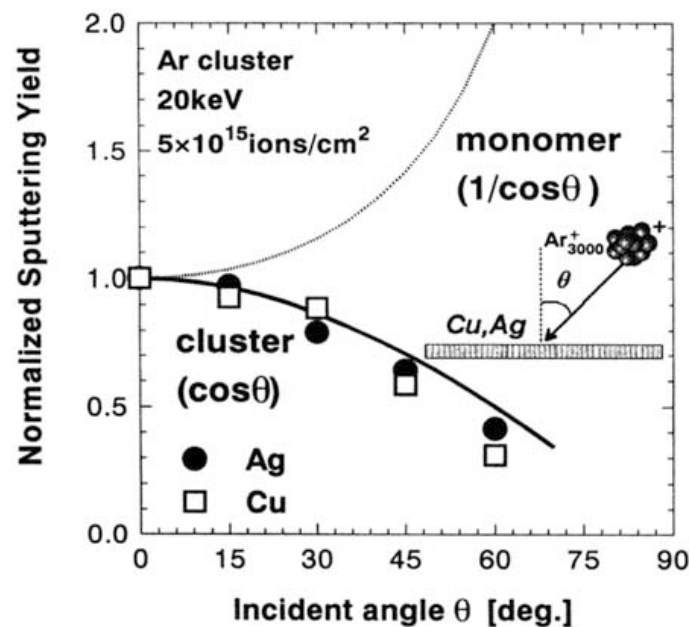


Abb.3-7: Sputteryield gegen den Einfallswinkel θ aufgetragen, der gegen die Target-Normale gemessen wird. Die Sputterraten sind mit wachsendem θ für den Fall eines Beschußes von Silber- und Kupfertargets mit Ar_{3000}^+ bei 20 keV wiedergegeben. Außerdem ist der theoretische Verlauf für Ar^+ Monomerionenbeschuss eingezeichnet [Kita1997].

3.3 Glättungseffekt – Physikalisches Sputtern

Hier sind nun wie schon bei der Beschreibung der Sputterraten rein phänomenologisch Ergebnisse zur Glättung von Oberflächen in Abhängigkeit von verschiedenen Sputterparametern wiedergegeben. Eine Interpretation bzw. Begründung ist in Abschnitt 3.6 im Rahmen der Modellbeschreibung des Clustersputterprozesses zu finden. Der Begriff des „Physikalischen Sputterns“ ist zur bewußten Unterscheidung vom chemisch reaktiven Sputtern z.B. mit Clusterionen aus SF₆ gewählt.

3.3.1 Glättungseffekt für verschiedene Targetmaterialien

Beim Clusterionensputtern tritt neben einer hohen Abtragsraten auf den ersten Blick recht überraschend ein Glättungseffekt auf. Oberflächen zeigen nach dem Clusterionensputtern eine geringere Mikrorauigkeit im Vergleich zu ihrem Ausgangszustand. Deshalb ist das Clusterionensputtern eventuell so interessant als Polierverfahren. Der Glättungseffekt wurde bisher für viele Materialien nachgewiesen. Es ist gelungen, sowohl Metalle als auch Halbleiter und Isolatoren zu glätten. In Tab.3-2 sind mittlere Rauigkeitswerte für unterschiedliche Materialien vor und nach dem Clusterionenbeschuß in hinreichender Dosis ($>10^{15}$ Ionen / cm²) aufgetragen. Auch die R_a[⊗]-Werte für die Bestrahlung mit Monomerionen sind in Tab.3-2 angegeben. Hier ist bei Materialien mit einer Ausgangsrauigkeit von R_a ≥ 1 nm, eine geringe Glättung erkennbar, während die ohnehin schon recht glatten Oberflächen mit R_a ≤ 1nm rauher werden. Zur Veranschaulichung des Glättungseffekts an einer mit R_a = 15 Å zunächst recht rauhen Oberfläche sind in Abb.3-8 AFM-Bilder eines Tanalfilms vor und nach dem Sputtern mit Argonclusterionen abgebildet.

Targets	R _a (nm)		
	Before irradiation	Cluster	Monomer
Pt/Si	7.1	2.8	6.2
Pt/Ti/Si	4.8	1.0	2.4
Cu/Si	6.6	2.7	6.0
Si substrate	0.20	0.15	0.22
Si ₃ N ₄ /Si	0.36	0.24	0.32
Soda-lime glass	0.61	0.28	0.62

Tab.3-2: Mittlere Rauigkeit für verschiedene Targetmaterialien nach dem Sputtern mit (CO₂)⁺N₂. Fast alle Targets wurden mit Clustern N ≥ 250 bei 10keV und 1·10¹⁶ Ionen/cm² gesputtert. Nur das Cu / Si-Target wurde mit 5·10¹⁵ Ionen/cm² und das Pt / Si-Target mit Clustern N ≥ 500 gesputtert. Zum Vergleich sind die R_a-Werte für die Bestrahlung mit CO₂⁺ Monomeren angegeben [Yamag1995].

⊗ Der R_a-Wert ist anders definiert als der RMS-Wert (siehe Kap.5.2.4). Als Faustformel gilt: RMS ≈ 1.3 × R_a.

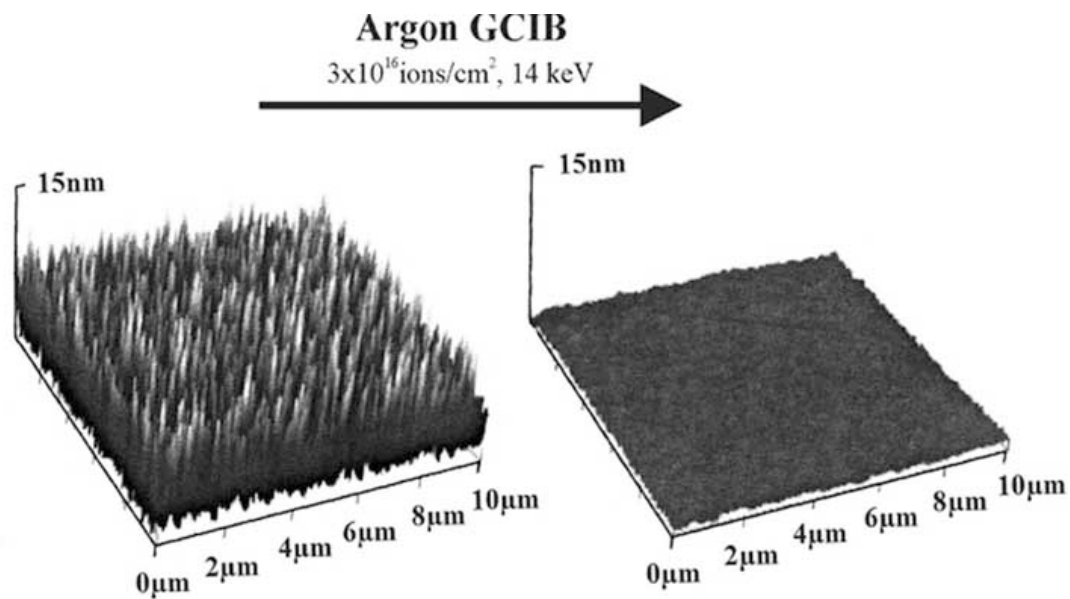


Abb.3-8: AFM-Bilder eines Tantalfilms vor und nach dem Sputtern mit Ar^+_{3000} Clustersputtern. GCIB steht für Gas Cluster Ion Beam. Gesputtert wurde der hier abgebildete Tantalfilm mit 14 keV Energie bei einer Dosis von $3 \cdot 10^{16}$ Ionen / cm^2 . Ungesputtert liegt die Rauigkeit bei $R_a=15\text{\AA}$, gesputtert nur noch bei $R_a=1.8\text{\AA}$. Der Tantalfilm ist nach dem Sputtern also gerade so glatt wie eine polierte Siliziumoxidoberfläche, mit der in dieser Arbeit experimentiert wird. [Fenn2000b].

Der in Abb.3-8 abgebildete Tantalfilm ist nach dem Clustersputtern mit $R_a = 1.8\text{\AA}$ eine Größenordnung glatter als zu Beginn. Doch seine Endrauigkeit entspricht gerade der Anfangsrauigkeit der Siliziumoxidoberflächen, mit denen im Rahmen dieser Arbeit hinsichtlich einer Glättung zu noch kleineren mittleren Rauigkeiten experimentiert wurde.

3.3.2 Energieabhängigkeit der Mikrorauigkeit

Gemäß [Aoki2000] ist der Durchmesser des beim Aufprall eines einzelnen Clusterions entstehenden Kraters proportional zur Quadratwurzel der Energie (siehe Abb.3-9). Betrachtet man nun die Oberfläche nach einer hohen Cluster-Dosis, so muß es einen statistisch hohen Überlapp der Krater geben. Man kann erwarten, daß bei geringerer Beschleunigungsenergie, also kleineren und weniger tiefen Kratern, die verbleibende Endrauigkeit geringer ist (Abb.3-12). Nun betrachtet man anstelle des absoluten Rauigkeitswertes dessen Entwicklung pro Zeiteinheit, also die Glättungsrate $1/\Delta$, die angibt, wie schnell der asymptotische Rauigkeitsendwert erreicht wird (vgl. Kap.3.3.3.). Trägt man die Glättungsrate $1/\Delta$ gegen die Energie der Clusterionen auf, so kann man ab einer kritischen Schwellenenergie einen näherungsweise linearen Zusammenhang vermuten. In Abb.3-10 ist als Beispiel dafür die Entwicklung der Glättungsrate $1/\Delta$ für einen Tantalfilm wiedergegeben, der mit Ar^+_{3000} gesputtert wird. Die Auftragung erfolgt gegen die Beschleunigungsspannung der Clusterionen. Ab einer Schwellenspannung bei ca. 13 kV kann man eine Gerade an die Meßpunkte fitten. Bei höherer Sputterenergie nimmt die Rauigkeit schneller ab.

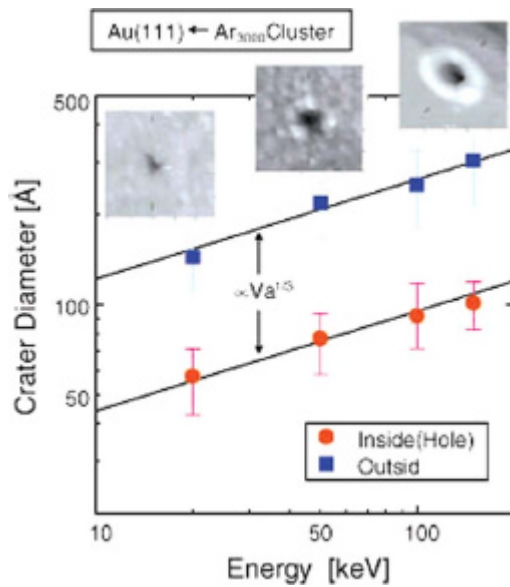


Abb.3-9: Energieabhängigkeit der Kraterdurchmesser (innen und außen) bei einem einzelnen Clusterioneneinschlag eines Ar^+_{3000} auf einer Gold-Au(111)-Oberfläche – ausgemessen mit einem STM. Der Durchmesser ist proportional zur Quadratwurzel der Energie [Aoki2000].

3.3.3 Dosisabhängigkeit der Mikrorauigkeit

Die Mikrorauigkeit einer mit Clusterionen gesputterten Oberfläche entwickelt sich exponentiell mit der Dosis D (siehe Abb.3-11). Neben der Dosis spielt dabei die bereits im vorigen Abschnitt eingeführte Glättungsrate $1/\Delta$ insofern eine Rolle, als sie quasi die „Halbwertszeit des Rauigkeitszerfalls“ darstellt. Man setzt die Entwicklung der mittleren Rauigkeit R_a gemäß [Fenn2000b] als $R_a = R_0 + (R_S - R_0) \cdot \exp(-D/\Delta)$ - der Ansatz für den RMS-Wert ist analog. Dabei ist R_S die Anfangsrauigkeit der Sputtertargets und R_0 die asymptotische Rauigkeitsgrenze, der sich die Oberfläche mit wachsender Sputterdosis D nähert. R_0 ist umso kleiner, je kleiner die Sputterenergie ist. Dies ist in Abb.3-12 an den Rauigkeitsentwicklungen von Tantalfilmen mit der wachsender Sputterdosis D bei drei verschiedenen Sputterenergien für Ar^+_{3000} Clusterionen klar zu erkennen. Man sieht, daß R_0 mit wachsender Sputterenergie größer wird, d.h. die Endrauigkeit bei hinreichender Dosis umso kleiner wird, je geringer die Sputterenergie ist [Fenn2000b].

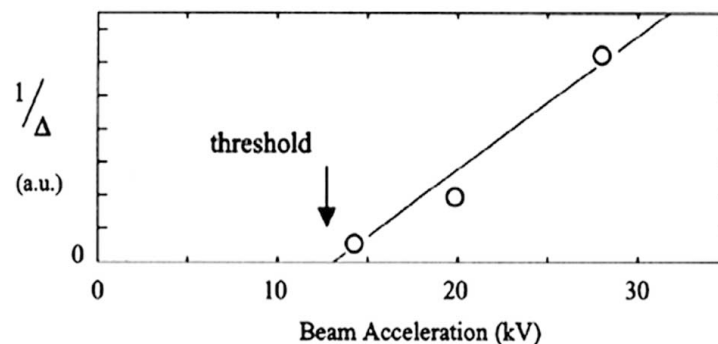


Abb.3-10: Glättungsrate $1/\Delta$ in Abhängigkeit von der Beschleunigungsspannung für den Beschuß eines Tantalfilms mit Ar^+_{3000} Clusterionen. In dieser Darstellung wird linear gefittet, wobei im vorliegenden Fall auch ein Parabelfit durchaus denkbar ist [Fenn2000b].

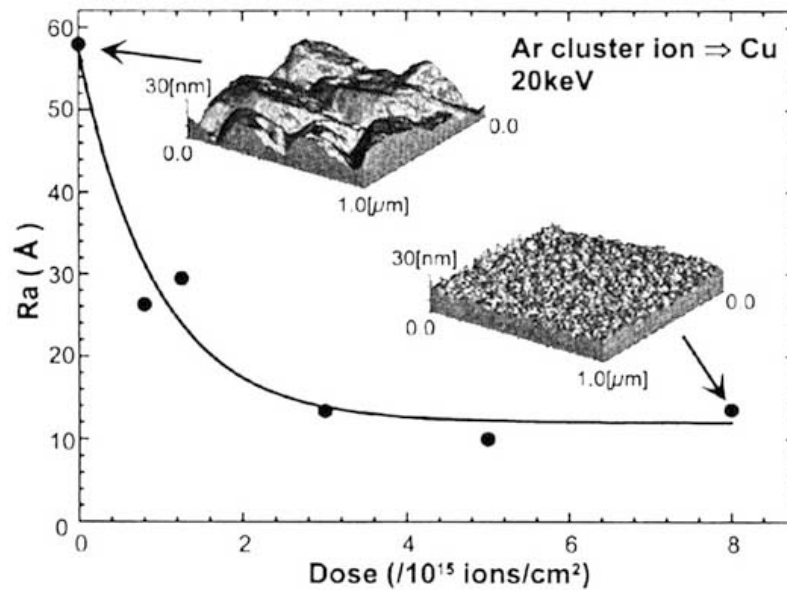


Abb.3-11: Glättung eines Kupferfilms mit Ar_{3000}^+ Clusterionen bei 20keV. Die Dosis bewegt sich im Bereich von etwa 10 bis 100 Monolagen Ar_{3000} Cluster. [Yama1996]

Um ein anschauliches Maß für die Dosis zu haben, kann man als Äquivalent zur Clusterionenzahl pro Fläche angeben, wieviel Monolagen Bedeckung mit Ar_{3000} Clustern dies entspricht. Gemäß [Reck1995] kann man den geometrischen Radius eines Ar_{3000} Clusters zu 4.4 \AA abschätzen, was einer Bedeckungsfläche von $6.1 \cdot 10^{-15} \text{ cm}^2$ entspricht. Daraus ergibt sich:

1 Monolage (bezogen auf 1 cm^2) entspricht etwa $1.64 \cdot 10^{14}$ Ar_{3000} -Clustern.

Demnach halbiert sich der Rauigkeitswert in Abb.3-11 innerhalb einer Dosis von etwa 10 Monolagen. Im Beispiel Abb.3-12 bewegt man sich im Bereich von 100 Monolagen.

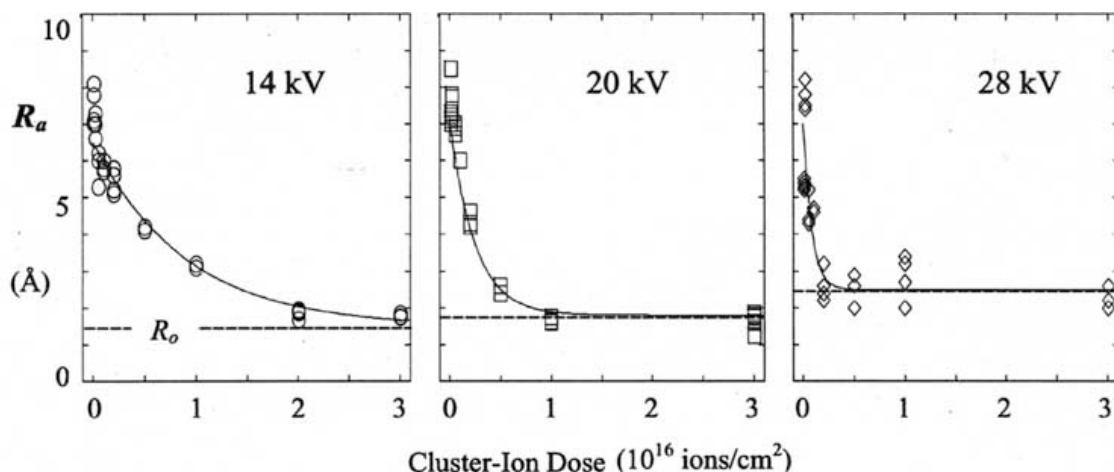


Abb.3-12: Rauigkeitsentwicklungen von Tantalfilmen mit der wachsender Sputterdosis D bei drei verschiedenen Sputterenergien für Ar_{3000}^+ Clusterionen [Fenn2000b].

3.3.4 Mikrorauhigkeit unter Variation des Einschubwinkels θ

Sputtert man eine Oberfläche unter verschiedenen Einfallswinkeln θ der Clusterionen, stellt man fest, daß nicht nur die Sputteryield (Kap.3.3.4), sondern auch die Mikrorauhigkeit erheblich mit dem Einschubwinkel variieren. So ist der Glättungseffekt bei senkrechtem Einfall der Ionen ($\theta = 0^\circ$) maximal, während bei einem größeren Winkel $\theta > 30^\circ$ eine periodisch geriffelte Oberfläche entsteht, deren Wellenvektor parallel zur Oberflächenprojektion des Einfallsvektors des Ionenstrahls liegt. Im Vergleich dazu ist beim Sputtern mit Monomer-Ionen nur bei sehr flachem Einfall, d.h. $\theta \rightarrow 90^\circ$ eine Glättung möglich.

In Abb.3-13 sind AFM-Bilder von Kupferoberflächen abgebildet, die unter verschiedenen Einfallswinkeln θ mit Ar^+_{3000} bei 20 keV und einer Dosis von $5 \cdot 10^{15}$ Ionen/cm² gesputtert wurden. Während bei senkrechtem Ioneneinfall eine gleichmäßig geglättete Oberfläche entsteht (Abb.3-13 (b)), ist die bereits angesprochene periodische Riffelbildung für $\theta = 30^\circ$ (Abb.3-13 (c)) bereits zu erkennen, um in (Abb.3-13(d)) deutlich in Erscheinung zu treten. In Abb.3-14 ist in einem Diagramm der mittlere R_a -Wert der gesputterten Kupferoberflächen aus Abb.3-13 für die verschiedenen Einfallswinkel θ über der Sputtertiefe aufgetragen. Da die Sputtertiefe mit der Dosis skaliert, ist dieser Auftrag einer Darstellung der Dosisabhängigkeit unter variablem Einschubwinkel θ gleichzusetzen.

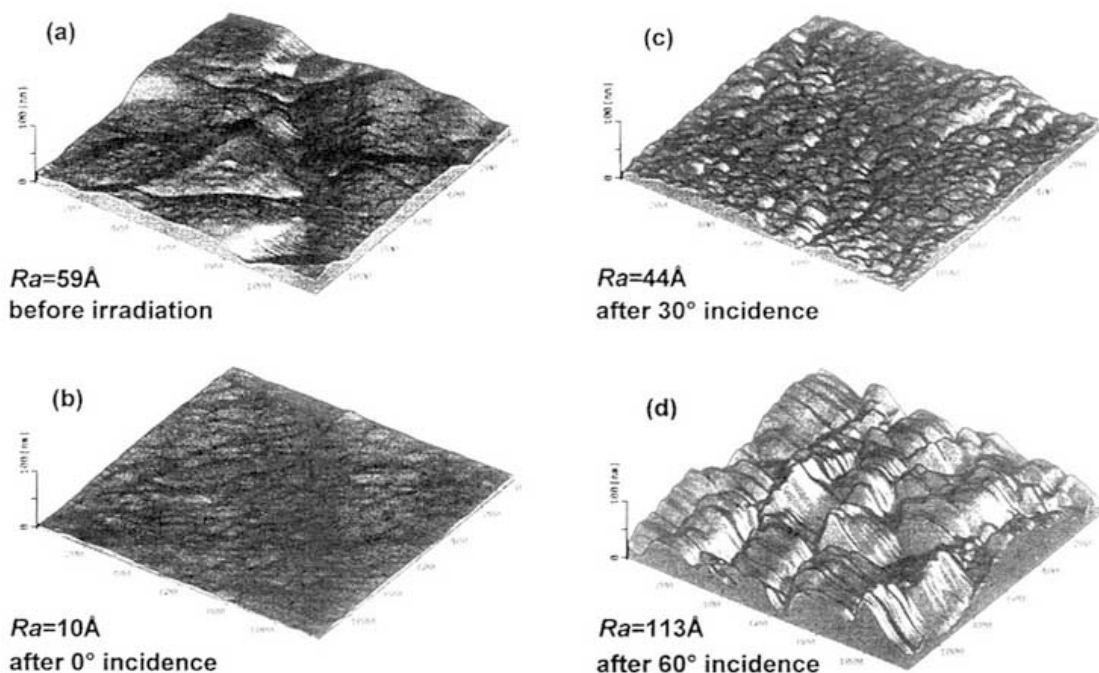


Abb.3-13: AFM-Bilder ($1\mu\text{m} \times 1\mu\text{m}$) von Kupferoberflächen nach dem Beschuß mit Ar^+_{3000} einer Energie von 20 keV und einer Dosis von $5 \cdot 10^{15}$ Ionen/cm² unter Variation von Einschubwinkel θ . Zu sehen ist eine Kupferoberfläche (a) vor dem Sputtern (b) nach der Glättung unter $\theta = 0^\circ$ (c) nach Riffelbildung unter $\theta = 30^\circ$ (d) nach Riffelbildung unter $\theta = 60^\circ$ [Kita1997].

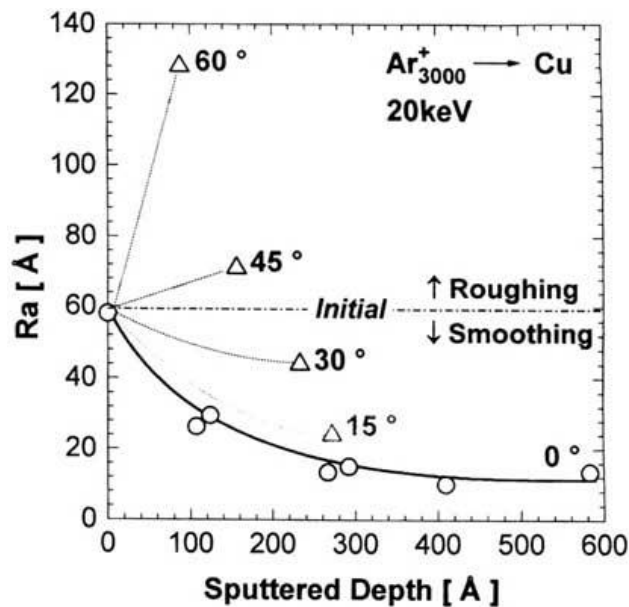


Abb.3-14: Mittlere Oberflächenrauigkeit R_a einer gesputterten Kupferoberfläche bei Variation des Einschubwinkels θ der Clusterionen. R_a ist über der Sputtertiefe aufgetragen, die direkt mit der Dosis skaliert [Kita1997].

3.4 Reaktives Sputtern mit $(\text{SF}_6)_N^+$ Clusterionen

Nachdem im Bereich des Monomer-Ionensputterns reaktive Atome bzw. Moleküle eine enorme Steigerung der Sputteryield zur Folge haben, liegt es nahe zu untersuchen, wie sich die Verwendung von Clusterionen aus chemisch reaktiven Teilchen auf die Sputteryield und den Glättungseffekt auswirken.

Es wurde mit $(\text{SF}_6)^+_{2000}$ Clusterionen experimentiert und in der Tat eine enorme Steigerung der Sputteryield um bis zu drei Größenordnungen festgestellt. Man sieht in Abb.3-15 im Vergleich die Sputteryield für Ar^+ -Atomionen, Ar^+_{3000} -Clusterionen und $(\text{SF}_6)^+_{2000}$ bei einer Sputterenergie von 20 keV für den Fall eines Silizium-, Wolfram- und Goldtargets aufgetragen. Als Referenz für die Sputteryield von Argon-Atomionen sind bei Wolfram und Gold gerechnete Werte von K. Kanaya et al. [Kana1973] angegeben. Was den Glättungseffekt betrifft, so zeigt sich, daß man beim reaktiven Sputtern mit Clusterionen keinen Glättungseffekt erzielen kann und in manchen Fällen sogar eine Aufrauung erfolgt, solange die bestrahlte Oberfläche nicht inert gegenüber SF_6 ist. In Abb.3-16 sind AFM-Bilder von Siliziumcarbid-Oberflächen abgebildet, die einerseits mit $(\text{SF}_6)^+_{2000}$ Clusterionen gesputtert wurden und andererseits auch zum Vergleich mit Ar^+_{3000} Clusterionen. Der Hintergrund dieser unterschiedlichen Rauheitsentwicklungen ist die unterschiedliche Winkelverteilungen der gesputterten Teilchen beim reaktiven und beim nicht-reaktiven Sputtern. Wenn kein sog. Lateral Sputtering (Kap.3.5) stattfindet und die gesputterten Teilchen vorwiegend unter flachem Winkel wegfliegen, ist kein Glättungseffekt zu erwarten.

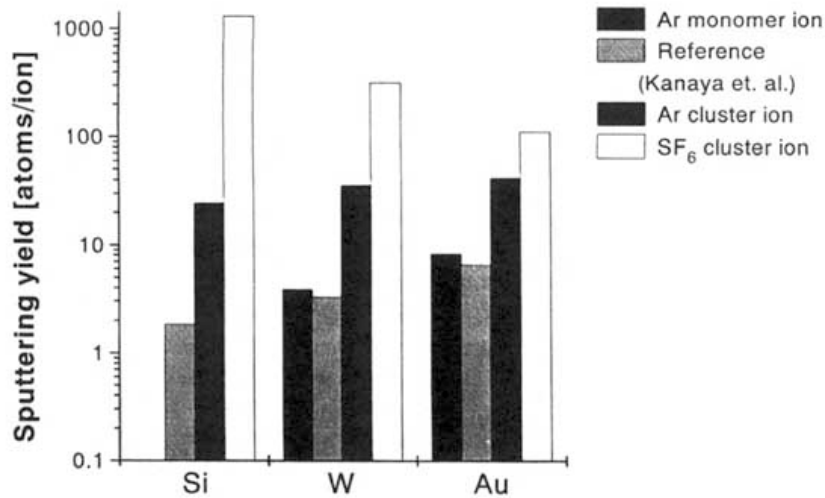


Abb.3-15: Sputteryield im Vergleich für physikalisches Clustersputtern mit Argonclustern und chemisch reaktives Sputtern mit $(SF_6)_N$ -Clustern an verschiedenen Targetmaterialien [Toyo1997].

So wie bei Siliziumcarbid, ist auch bei Wolframtargets nur ein geringer bzw. kein Glättungseffekt beim reaktiven Sputtern mit SF_6 Clustern nachzuweisen, während bei Goldtargets wiederum eine deutliche Glättung erfolgt [Toyo1998a]. Zunächst überrascht, stellt man aber fest, daß bei Gold gar kein reaktives Sputtern vorliegt, weil dieses inert gegenüber SF_6 ist. Also findet hier das „normale“ physikalische Clustersputtern statt.

In Abb.3-17 ist der quantitative Zusammenhang zwischen Sputterenergie und Sputteryield für das chemisch reaktive Sputtern dargestellt. Während beim rein physikalischen Sputtern ein nahezu linearer Zusammenhang besteht, ist im Fall des Sputterns einer Siliziumoberfläche mit $(SF_6)^+_{2000}$ Clusterionen ein exponentieller Anstieg der Abtragsrate mit der Sputterenergie nachweisbar. Das ist insofern nicht überraschend, als Silizium höchst reaktionsfreudig bezüglich SF_6 ist.

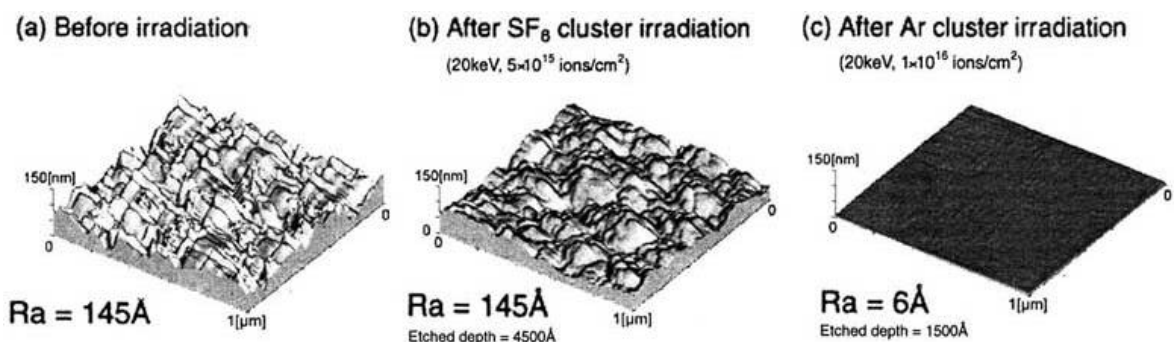


Abb.3-16: AFM-Bilder von SiC-Oberflächen: (a) in unbehandeltem Zustand (b) nach dem chemisch reaktiven Sputtern mit $(SF_6)^+_{2000}$ Clusterionen (c) nach dem Sputtern mit Ar^+_{3000} Clusterionen [Yama1999].

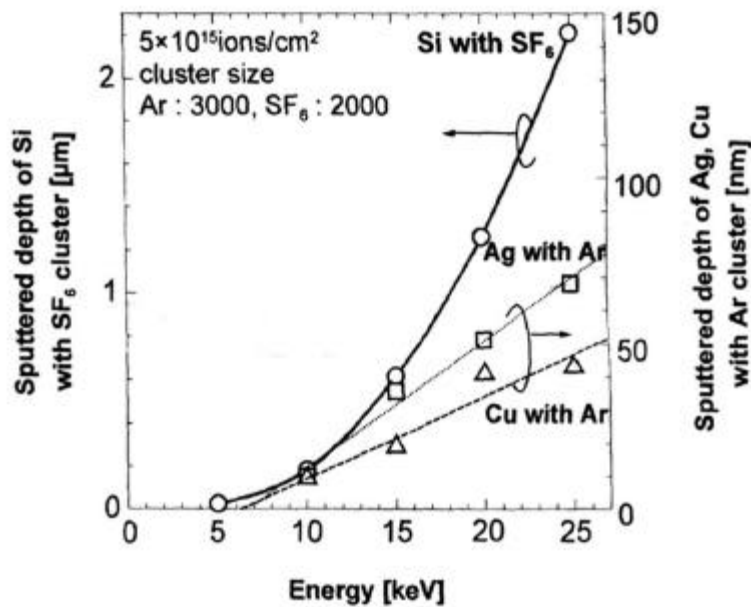


Abb. 3-17:
Energieabhängigkeit der Sputteryield. Aufgetragen sind Meßpunkte für das reaktive Sputtern von Silizium mit (SF₆)⁺₂₀₀₀ und im Vergleich dazu für das nicht-reaktive Sputtern mit Ar⁺₃₀₀₀ an Gold bzw. Kupferoberflächen [Toyo1997].

3.5 Winkelverteilung gesputterter Targetteilchen: Lateral Sputtering

Analysen der Winkelverteilung gesputterter Targetatome ergeben, daß im Falle vom physikalischen Sputtern die gesputterten Teilchen unter sehr flachem Winkel vom Ort des Clusteraufpralls wegspritzen. Dieses Phänomen wird als Lateral Sputtering bezeichnet und ist letztlich die Ursache für den Glättungseffekt, was Simulationen demonstrieren (Kap.3.6). Beim Atomionen-Sputtern tritt eben nicht diese flache Winkelverteilung auf, sondern eine gleichmäßig sphärische in alle Raumrichtungen oberhalb der Sputteroberfläche. Deshalb gibt es eben beim Monomer-Sputtern auch keinen Glättungseffekt.

Bei schrägen Ioneneinschuß nun ändert sich diese Winkelverteilung derart, daß das sog. Lateral Sputtering praktisch nur noch in eine Raumhälfte stattfindet, und zwar genau symmetrisch zur Einfallrichtung. Der Glättungseffekt ergibt sich nicht mehr, sondern stattdessen eine riffelförmige, periodische Strukturierung wie sie in Abb.3-13 bereits gezeigt wurde. In Abb.3-19 sind solche asymmetrischen Winkelverteilungen für Einschußwinkel von $\theta = 10^\circ$, 30° und 60° abgebildet. Sie sind aus Experimenten mit Argon-Clusterionen und Kupfertargets gewonnen.

Im Zusammenhang mit dem chemisch reaktiven Sputtern ist es eben genau das Lateral Sputtering, das fehlt und damit das Zustandekommen des Glättungseffekts behindert. Während die Sputterpartikel in Abb.3-18 eine flache Winkelverteilungen, also Lateral Sputtering zeigen, ist im Vergleich dazu beim Sputtern mit (SF₆)⁺₂₀₀₀ im Falle eines Wolframtargets in Abb.3-20 keine solche flache Verteilung, sondern eher die sphärische Monomer-

Sputter-Verteilung zu sehen. Wolfram reagiert mit SF_6 unter Bildung chemischer Produkte wie WF_x , welches leicht flüchtig ist und isotrop in alle Raumrichtungen von der Oberfläche verdampft. So kommt es zur $(\cos\theta)$ -Winkelverteilung, die für das Atomsputtern typisch ist. Für Gold, das eben nicht mit SF_6 reagiert ist wieder das Lateral Sputtering zu erkennen und damit der klare Hinweis auf einen rein physikalischen Vorgang.

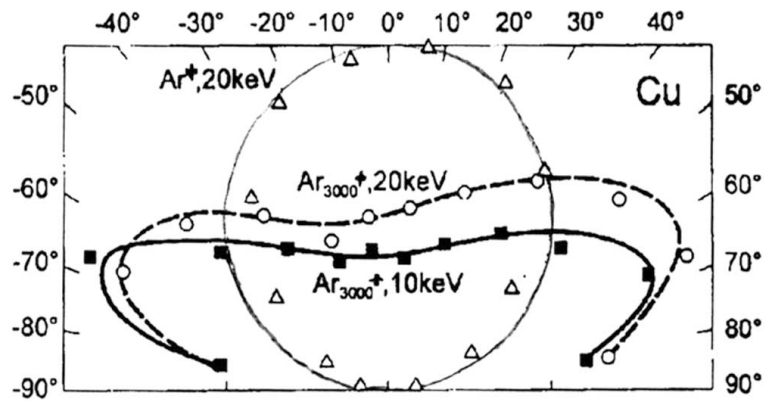


Abb.3-18: Winkelverteilung gesputterten Kupferatome beim Clustersputtern mit Argon-Atomionen und -Clusterionen im Vergleich [Toyo1998b].

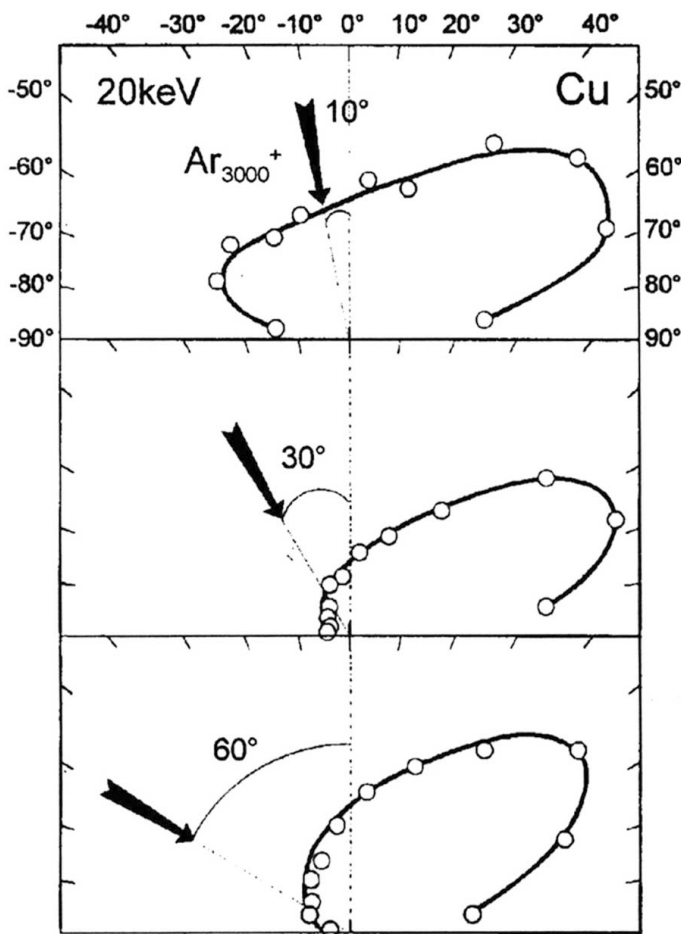


Abb.3-19: Winkelverteilung gesputterter Kupferatome beim Beschuss eines Kupfertargets mit Argon-Clusterionen einer Energie von 20 keV für verschiedene Einschüßwinkel θ . [Toyo1998b]

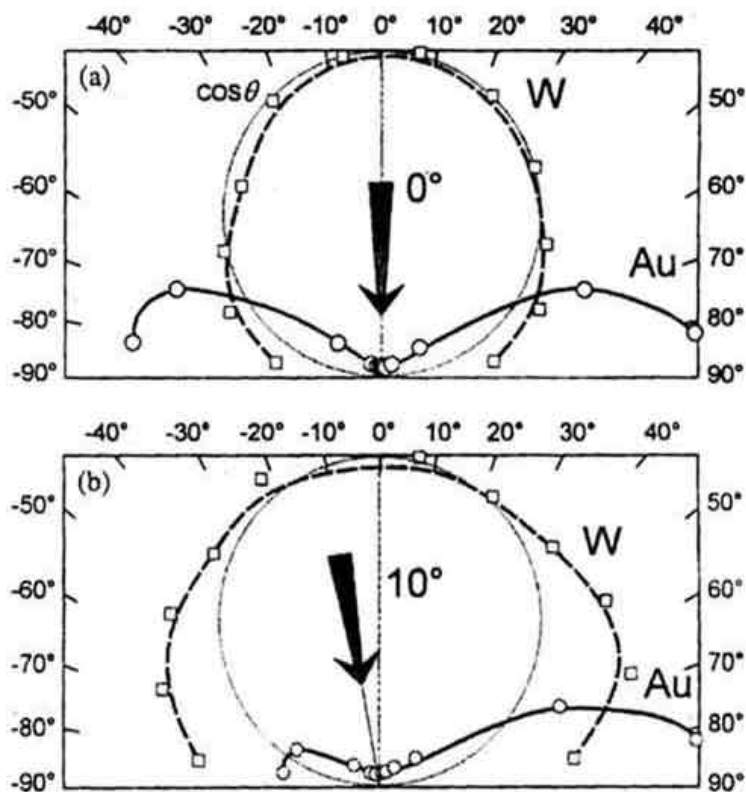


Abb.3-20:
Winkelverteilungen gesputterter Teilchen beim Sputtern mit $(\text{SF}_6)^+_{2000}$ Clusterionen einer Energie von 20 keV für $\theta = 0^\circ$ und $\theta = 10^\circ$ im Vergleich für ein Wolfram- und ein Goldtarget. Im Falle des chemisch reaktiven Sputterprozesses ergibt sich für Wolfram kein Lateral Sputtering, während beim rein physikalischen Prozeß für das Goldtarget, das gegenüber SF_6 inert ist, Lateral Sputtering auftritt [Toyo1998a].

3.6 Beschreibungsmodelle und Simulationen zum Clustersputterprozeß

3.6.1 Anschauliche Beschreibung

Die besonderen Effekte beim Clustersputtern lassen auf einen vollkommen anderen Sputtermechanismus als beim Atomionensputtern schließen. In Abb.3-21 sind zum Vergleich die Ergebnisse von Molecular Dynamics (MD) Simulationen abgebildet. Man erkennt, daß bei gleicher Energie das Monomer viel tiefer in das Target eindringt als der Cluster. Zudem ist deutlich zu sehen, daß die Sputteryield für den Cluster viel höher ist. Es wurde hier mit einer typischen Sputterenergie von etwa 10 eV pro Cluster-Monomer gerechnet. Der Cluster deponiert seine Energie im oberflächennahen Bereich. Es kommt im Wechselwirkungszentrum zwischen Cluster und Oberfläche gemäß Simulationsrechnungen zu sehr hohen Drücken bis zu einigen Mbar und Temperaturen bis zu 10^5 Kelvin [Inse1996]. Nach dem Clusteraufschlag auf der Oberfläche entsteht eine Schockwelle, die sich gemäß Abb.3-22 ausbreitet bzw. das Targetmaterial verdichtet, welches im Fall dieser Simulation für einen Ar_{688} Cluster mit 10 eV/Atom nach etwa 3 Pikosekunden zu relaxieren beginnt. In Abb.3-23 sind MD-Simulationen zum lokalen Druck bzw. zur lokalen Temperatur im Target 363 fs nach dem Auftreffen eines Ar_{349} Clusters auf einer Siliziumoberfläche

abgebildet. Angesichts dieser extremen thermodynamischen Bedingungen ist es nicht überraschend, daß es zu einer hohen Sputterrate kommt. Ein Cluster-Aufprall im Bereich von 10 eV / Atom läßt die Vorstellung entstehen, daß es zu einem lokales Schmelzen des Targets kommt und dieses quasi lokal zu verdampfen beginnt.

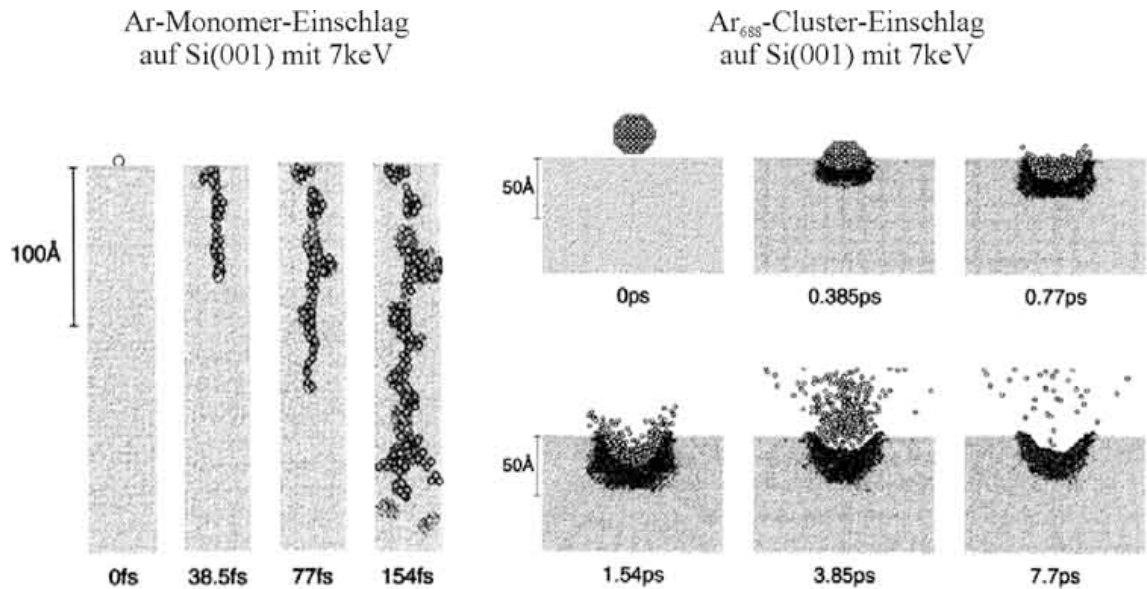


Abb.3-21: Molecular Dynamics Simulationen für einen Argonatom-Einschlag bzw. eine Argoncluster-Einschlag auf einer Si(001)-Oberfläche mit jeweils 7 keV Energie [Aoki2000].

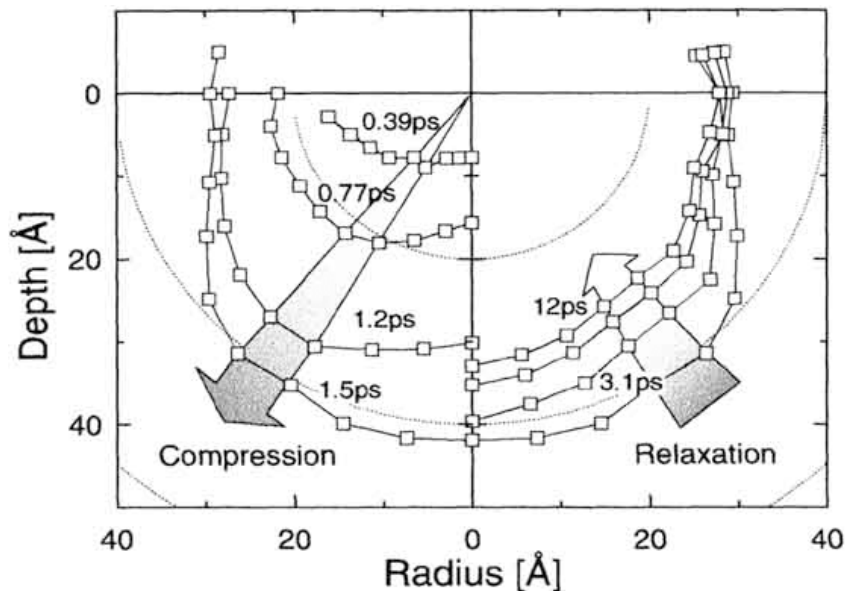


Abb.3-22: MD-Simulation der Kompression und Relaxation des Targets im Clustereinschlagsbereich – gerechnet mit Ar₆₈₈ 10 eV / Atom Energie [Aoki2000].

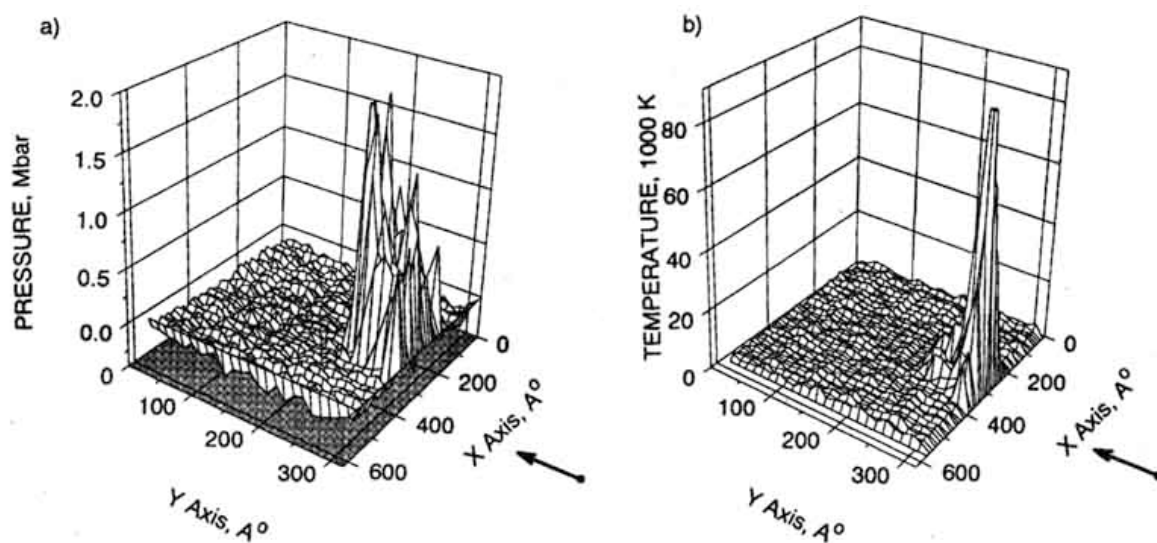


Abb.3-23: MD-Simulationen zum lokaler Druck bzw. zur lokalen Temperatur im Target 363 fs nach dem Auftreffen eines Ar_{349} Clusters auf einer Siliziumoberfläche [Toyo2000b].

3.6.2 Simulationsmethoden

Während im Fall vom Monomeren die lineare Stoß-Theorie gemäß [Sigm1969] angewandt werden kann, ist das beim Aufprall eines Clusters auf einer Oberfläche nicht mehr möglich. Man kann die Cluster-Konstituenten nicht als eine Summe unabhängiger einzelner Monomere behandeln – eine einfache Linearkombination der Ortsfunktionen ist nicht möglich. Man hat es mit nicht-linearen Prozessen zu tun. Die Begriffe Temperatur und Druck beginnen, eine Rolle zu spielen. Zur Untersuchung der Dynamik beim Aufprall von Clustern auf einer Festkörperoberfläche stellt man sog. Molecular Dynamics (MD) Simulationen an. Es sollte derartig möglich sein, die zeitliche Entwicklung der Orts- und Geschwindigkeitskoordinaten für die am Stoß beteiligten Atome mit hoher Auflösung zu simulieren. Inzwischen sind diese Simulationsmethoden so effizient entwickelt, daß Stöße von recht großen Cluster aus hunderten Konstituenten modelliert werden können. Es gab in den letzten 5 Jahren unzählige Veröffentlichungen mit Molecular Dynamics Simulationen zum Clustersputterprozeß, wobei viele von den Theoretikern Z.Insepov und M.Sosnowski stammen [Inse1995][Aoki1997][Aoki1998][YaSo1997][YaIS1997][YaIS1998][Kim1999].

Es ist möglich im Rahmen von MD-Simulationen die hohe Sputteryield beim Clustersputtern zu erklären – der Glättungseffekt aber wird nicht vollständig verstehbar. Lange Zeit war das letzte Resultat in Veröffentlichungen, daß man trotz weiterer Veränderungen in Modellbeschreibungen, den letzten Grund für den Glättungseffekt und ebenso das Verständnis für die Riffelbildung bei schrägem Ioneneinfall noch nicht gefunden habe. Erst mit drei neueren Veröffentlichungen [Inse1999][Toyo2000b][Yama2000] in NIM B wird ein Beschreibungsmodell eingeführt, daß dieses Problem endlich zu lösen scheint. Der hier vorgestellte Beschreibungsansatz ist kompatibel mit einem mesoskopischen Beschreibungsmodell der Gruppe von H.Haberland aus Freiburg [Mose2000], die damit die Entste-

hung sehr glatter dünner Schichten mittels Clusterstrahlen erklären. Sie verweisen in diesem Zusammenhang auch auf die Anwendbarkeit ihres Modells im Hinblick auf das Glätten von Oberflächen mittels Clustersputtern. Im vorliegenden Abschnitt ist nun dieses aktuelle Beschreibungsmodell zum Clustersputterprozeß wiedergegeben.

Monte-Carlo-Simulationsmodell. Das Target wird als Matrix aus 256×256 Zellen einer Höhe $h(i,j)$ mit $i,j \in]0,255[$ und einer Breite von 3nm dargestellt (Abb.3-24). Bei fast senkrechtem Einfall des Clusters simuliert man die Bildung eines symmetrischen Kraters. Die Parameter E , S und D werden eingeführt. E stehen für die Zahl der Atome, die aus dem Krater herausgeschleudert werden, S für die Zahl der weggesputterten Atome und D für die Zahl der versetzten Atome. Beim nahezu senkrechten Clustereinfall verlassen einige Prozent der E aus dem Krater herausgeschleuderten Atome das Target als gesputterte Teilchen. Ein großer Bruchteil bildet einen Wall um den Krater herum und zählt dann zu den D versetzten Atomen. Man geht von Teilchenzahlerhaltung aus und damit von $E=S+D$. Einer Dosis von 10^{15} - 10^{16} Ionen/cm² entsprechend wurde in [Yama2000] der Clusteraufprall unter zufälliger geringfügiger Änderung des Einfallswinkels auf diese Matrix 10^6 - 10^7 Mal wiederholt. Die erreichte mittlere Rauigkeit, Sputtertiefe und die Oberflächenmorphologie können aus dem resultierenden $h(i,j)$ abgelesen werden.

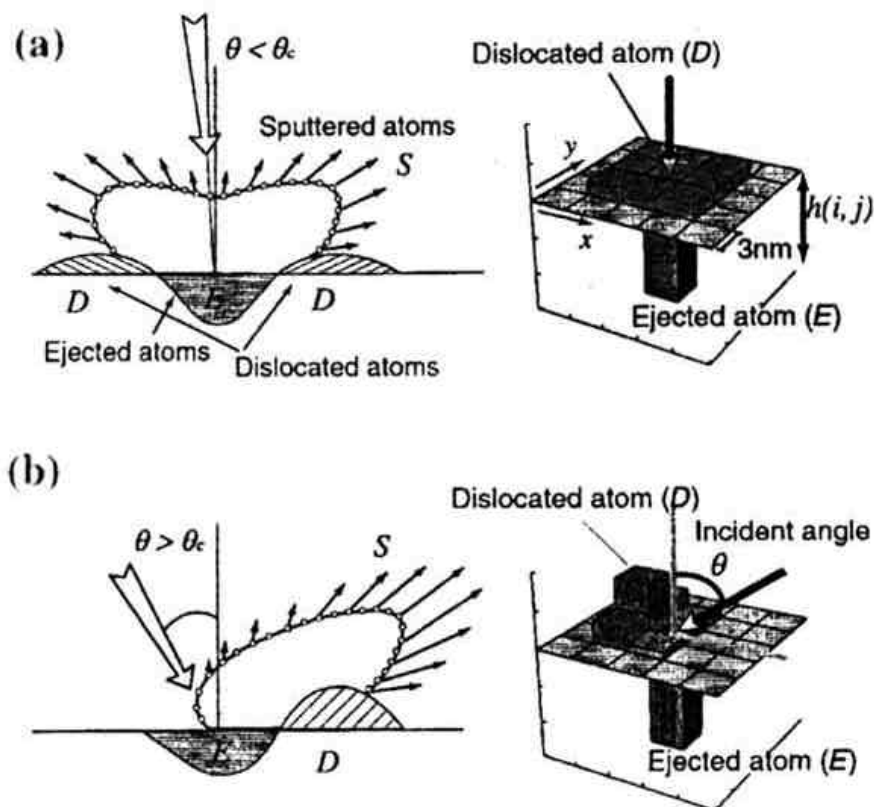


Abb.3-24: Monte Carlo Simulationsmodell der Atombewegung für den Fall eines Clusteraufpralls (a) unter nahezu senkrechtem Einfall und (b) bei flachem Einfall [Toyo2000b].

Diese Simulationen werfen ein neues Licht auf den Glättungseffekt, der im Verlauf des Sputterprozesses bei Clustern auftritt. Es werden nicht mehr einzelne Clustereinschläge in ihrem zeitlichen Verlauf betrachtet, sondern die Materialumverteilungsprozesse. Die Rauheitsstrukturen sind „aus Sicht der Cluster“ Berge (Hügel) und Täler auf der Targetoberfläche. Diese Rauheitsstrukturen werden nun keinesfalls „weggesprengt“ – sonst müßte ein flacher Einfallswinkel ja zu Glättung führen – sondern soweit beschädigt, daß „Bergatome“ losgelöst werden und sich viele von ihnen aufgrund des Lateral Sputtering unter flachem Winkel in die Täler umverteilen. An dieser Stelle ist dann natürlich auch das Oberflächendiffusionsvermögen der Targetpartikel zu berücksichtigen. Zwischen Oberflächendiffusionskonstante und Glättungseffekt besteht eine hohe Korrelation. Zur besseren Anschauung sind in Abb.3-25 MD-Simulationen zum Clusteraufprall abgebildet.

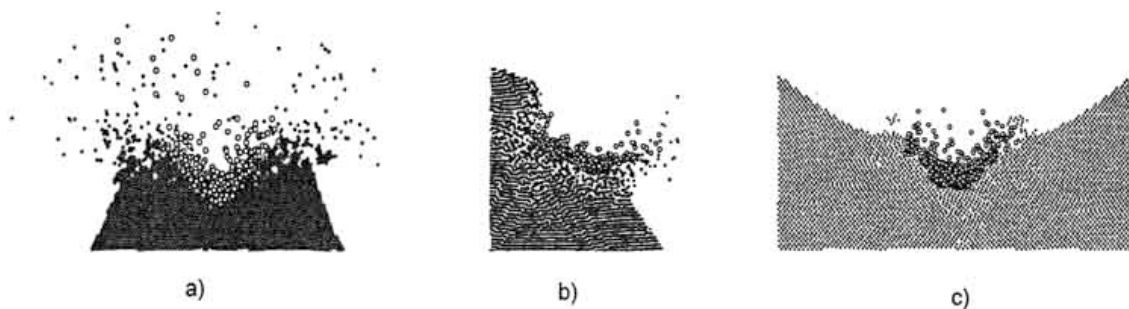


Abb.3-25: 2-dimensionale MD-Simulationen für drei repräsentative Fälle des Ar_{349} -Clustereinschlags mit 50keV Energie auf eine Siliziumoberfläche: (a) Clustereinschlag zentral in der Hügelmitte (b) Clustereinschlag am rechten Hang (c) in einem Tal zwischen zwei Hügeln [Yama2000].

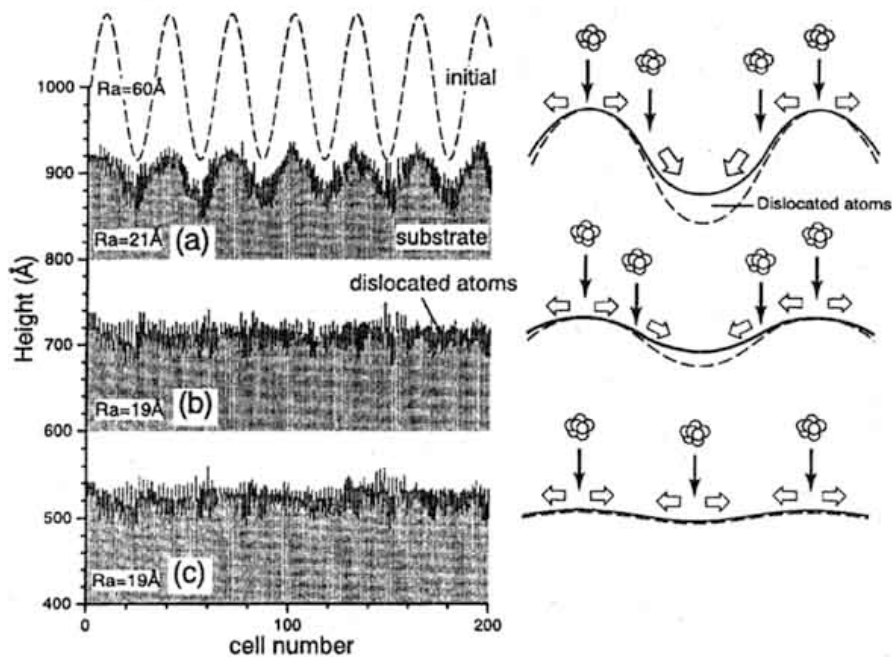


Abb.3-26: Targetquerschnitt und Skizzen zum Glättungsmechanismus bei Clusterionenbeschuß. Die dunklen Bereiche auf der Oberfläche sind die versetzten Targetatome [Toyo2000b].

In Abb.3-26 ist dargestellt, wie während des Materialabtrags die Materialsumverteilung zur Glättung führt. Skizziert ist auch dieses „Auffüllen von Tälern“ durch herausgeschleuderte Targetatome. Während mit hoher Sputteryield eine etwa 50Å dicke Targetschicht abgetragen wird, glättet sich die Oberfläche von einem Rauigkeitswert von 60Å auf 19Å. Ergänzend sind in Abb.3-27 die Rauigkeitswerte und ihre Entwicklung mit wachsender Dosis simuliert. Die drei Oberflächenmorphologien, die hier untersucht sind, unterscheiden sich in ihrer Periodizität bei gleichem mittleren Rauigkeitswert zu Anfang. Offensichtlich benötigt man zur Glättung auf größerer lateraler Längenskala eine höhere Dosis als für kleinere Skalen.

So wie im hier beschriebenen Modell der Glättungsmechanismus für den senkrechten Clusterioneneinfall verstanden werden kann, ist es nun auch möglich, die Erzeugung von Nanostrukturen bei schrägem Clustereinfall zu simulieren. In Abb.3-28 sind Simulationen der Oberflächenstrukturierung nach schrägem Clusterioneneinfall mittlerer Dosis abgebildet. Bei geeigneten Targeteigenschaften bzgl. der Diffusionskonstante und Viskosität sollte die Erzeugung von Quantendots möglich sein – eine faszinierende Art selbstorganisierter Nanostrukturierung. Allerdings ist dies erst eine Simulation, zu welcher der experimentelle Nachweis noch aussteht.

Abschließend ist wichtig zu erwähnen, daß es eine sehr gute Übereinstimmung zwischen dem hier beschriebenen Beschreibungsmodell des und experimentellen Ergebnissen gibt. Deshalb ist in Abb.3-29 sowohl für die Abhängigkeit der Sputteryield von der Sputterenergie als auch für die Winkelverteilung der gesputterten Teilchen ein Vergleich zwischen Experiment und MD-Simulationen abgebildet.

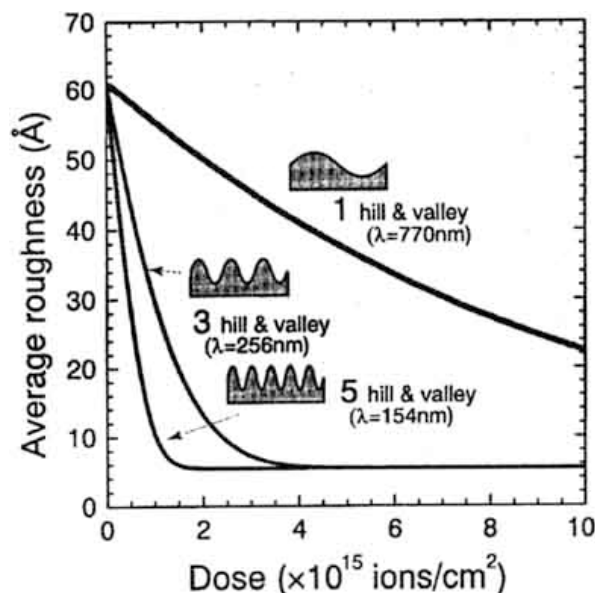


Abb.3-27: Rauigkeitsentwicklung für verschiedene Oberflächenmorphologien bei identischer mittlerer Anfangsrauigkeit zu Sputterbeginn. Man benötigt offenbar zur Glättung auf größerer lateraler Längenskala eine höhere Dosis als für kleinere Skalen [Toyo2000b].

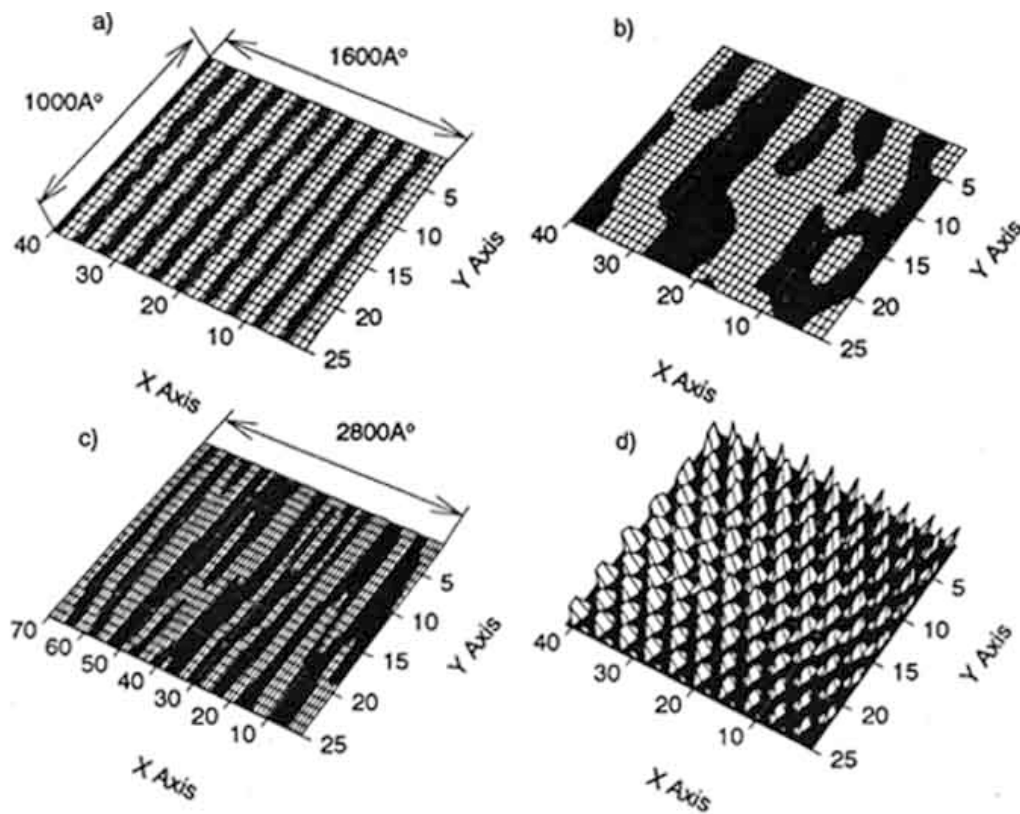


Abb.3-28: Oberflächen-Dynamik-Simulationen für 10000 Clustereinschläge mit flachem Einfallswinkel (einer Dosis 10^{15} Ionen / cm^2 entsprechend). (a) Oberfläche mit geringer Diffusion wie etwa Silizium (b) isotrope Metalloberfläche mit großer Diffusionskonstante vgl. Abb.3-13 (c) Oberfläche mit höchst anisotroper Diffusionskonstante (d) Oberfläche mit höchst geringer Diffusionskonstante und geringster Viskosität im Falle einer hohen Clusterdosis [Yama2000].

In Abb.3-29 ist links die Sputteryield Y für verschiedene Sputterexperimente mit Argonclusterionen in Abhängigkeit von der gesamten Clusterionenenergie E für gesputterte Kupfer-, Silber- und Goldoberflächen aufgetragen. Der Fit bezieht sich auf die MD-Simulationenpunkte für das Sputtern von Kupfer und beschreibt eine $Y \sim E^{1.4}$ Abhängigkeit, die eine Abweichung zum Geradenfit in Abb.3-5 darstellt. Der Geradenfit ist nicht die einzige Fitmöglichkeit und mit umfangreichen Meßpunkten sollte eine gute Anpassung möglich sein.

Rechts in Abb.3-29 ist die experimentell ermittelte Winkelverteilung der gesputterten Teilchen für den Beschuß von Kupfer mit Ar^+_{3000} bei 20 keV aufgetragen. Dazu sind verschiedene MD-Simulationen eingezeichnet. Das Phänomen des Lateral Sputtering ist einwandfrei nachweisbar. Außerdem ist die asymmetrische Veränderung der Verteilung bei schrägem Ioneneinfall ist hier für 60° in guter Übereinstimmung mit experimentellen Ergebnissen simuliert.

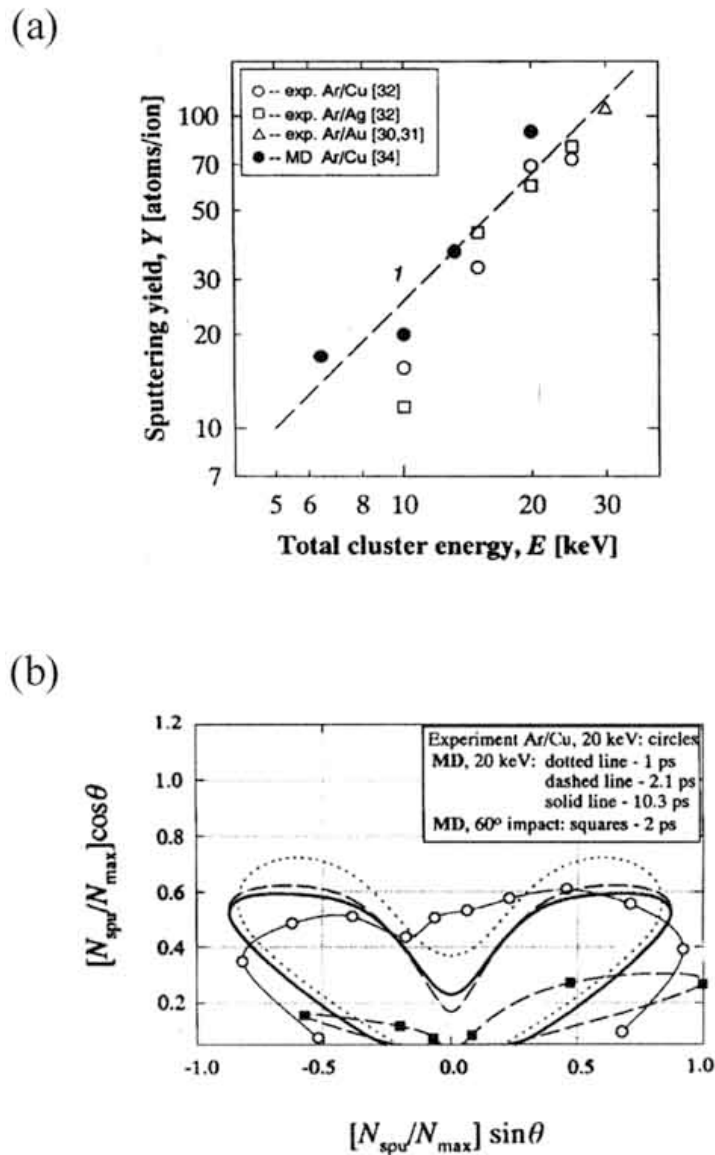


Abb.3-29: Vergleich zwischen Experiment und Simulation. Links ist die Sputteryield Y für verschiedene Sputterexperimente mit Argonclusterionen in Abhängigkeit von der gesamten Clusterionenenergie E aufgetragen – für das Sputtern von Kupfer (○), Silber (□) und Gold (△). Der Fit (---) bezieht sich auf die MD-Simulationspunkte (●) für das Sputtern von Kupfer und beschreibt eine $Y \sim E^{1.4}$ Abhängigkeit. Rechts ist die experimentell ermittelte Winkelverteilung der gesputterten Teilchen für den Beschuß von Kupfer mit Ar^{+}_{3000} bei 20 keV aufgetragen (○). Dazu sind verschiedene MD-Simulationen eingezeichnet - Lateral Sputtering ist einwandtfrei simulierbar. Auch die asymmetrische Veränderung der Verteilung bei schrägem Ioneneinfall (hier 60°) ist erkennbar [Yama2000].

4 Experimenteller Aufbau

Die Erzeugung von Clustern aus gasförmigen Substanzen ist denkbar einfach. Man expandiert das Gas unter hohem Druck durch eine kleine Öffnung ins Vakuum hinein. Werden die Rahmenbedingungen geeignet gewählt, verläuft die Expansion adiabatisch und die Gaspartikel können zu Clustern kondensieren. Im Rahmen der vorliegenden Arbeit sollte mit Clustern aus Kohlendioxid-Molekülen bzw. Argon-Atomen gearbeitet werden. Beide Substanzen sind bei Raumtemperatur gasförmig und eignen sich zur Düsenstrahlexpansion.

Für systematische Untersuchungen zum Clustersputtern und für die Überprüfung, ob sich Clustersputtern als Präzisionsformgebungs- bzw. Polierwerkzeug zur Glättung von Oberflächen eignet, wurde eine Apparatur aufgebaut, die aus einer intensiven Clusterionenquelle [Stol1998], einem Vakuumsystem mit Ionenoptik und schließlich einer Sputterkammer besteht. Die Maschine wird in diesem Kapitel in ihrer Funktionsweise und ihrem Design beschrieben.

4.1 Clustererzeugung

Um mit Clusterionen Oberflächen sputtern zu können, muß man im Vakuum einen Düsenstrahl aus Clusterionen erzeugen. Dieser bildet dann quasi den «Nanomeisel», mit dem die Targetoberfläche bearbeitet wird. Nun muß man zunächst verstehen, wie ein stabiler Düsen- bzw. Molekularstrahl entsteht. Dann sind diejenigen Parameter zu finden und geeignet zu wählen, die dafür verantwortlich sind, daß in einem solchen Düsenstrahl die Gaspartikel zu Clustern kondensieren. Schließlich sollte dann ein Freiheitsgrad gefunden werden, über den die Größenverteilung der Cluster im Düsenstrahl mit möglichst geringem Aufwand eingestellt werden kann.

4.1.1 Wie bildet sich ein Düsenstrahl aus ?

Zunächst gehen wir von einem idealen Gas aus. Wie und unter welchen Bedingungen sich ein Molekularstrahl ausbildet, kann dann gut beschrieben werden. Die Annahme eines idealen Gases vereinfacht die Beschreibung insofern, als weder Wechselwirkungen unter den Gaspartikeln noch Eigenvolumina derselben zu berücksichtigen sind. Die Teilchen sind Massepunkte, die miteinander stoßen können. Turbulenzen und Wärmeleitungseffekte werden außer Acht gelassen. Um die Clusterbildung zu verstehen, muß man allerdings die

Wechselwirkung unter den Gaspartikel dann schließlich wieder berücksichtigen, denn diese ist eine entscheidende Voraussetzung für die Clusterkondensation.

Das Modell, mit dem der Düsenstrahl beschrieben werden soll, besteht im Wesentlichen aus zwei Kammern, die durch eine Wand mit kleiner Öffnung getrennt sind. In der ersten Kammer, die mit Gas gefüllt sei, soll ständig hoher Druck, in der zweiten Kammer, die als weitgehend evakuiert angenommen wird, ständig niedriger Druck herrschen. Entsprechend bezeichnen wir die erste als Staukammer und die zweite als Vakuumkammer. Die Öffnung in der Trennwand wird Düse genannt. Die geometrische Anordnung dieser Komponenten ist in Abb.4-1 zu sehen.

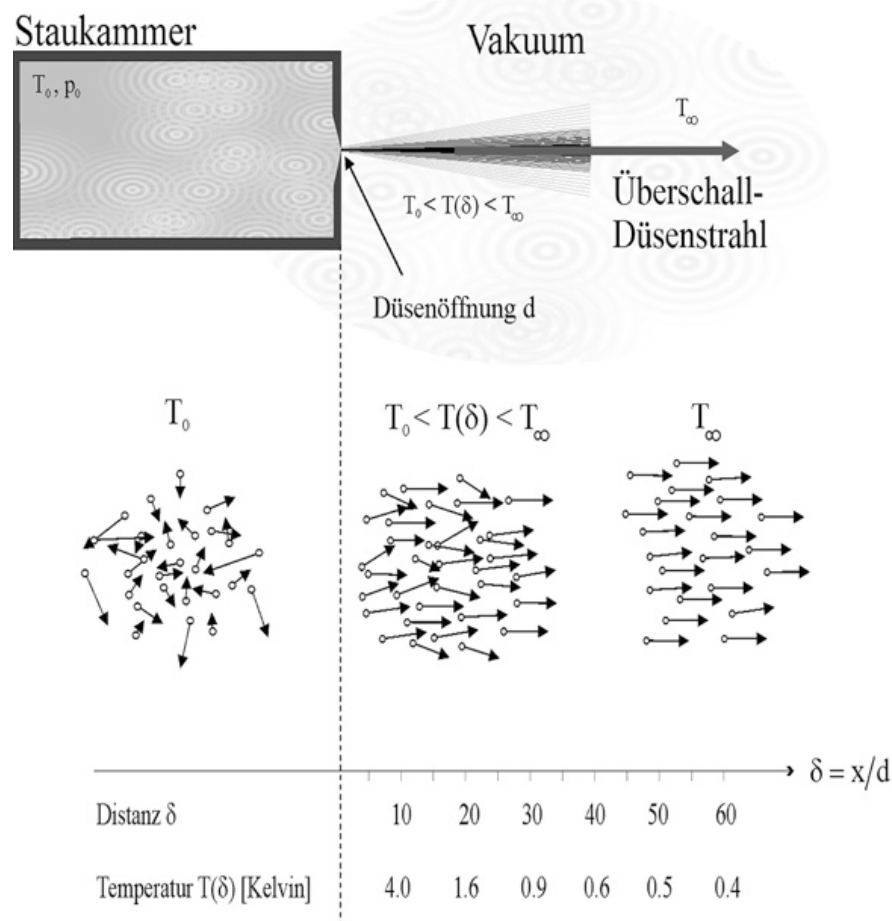


Abb.4-1: Die Geometrische Anordnung von Staukammer und Vakuumkammer mit Düsenöffnung, durch die sich ein Düsenstrahl ausbildet. Für die Ausbildung eines Überschall-Düsenstrahls ist außerdem die Temperaturentwicklung der Gaspartikel in Abhängigkeit vom reduzierten Düsenabstand δ angegeben d.h. die Distanz δ wird in Vielfachen des Düsendurchmessers d angegeben. [Demt1987][Habe1994b]

Aufgrund des Druckgradienten zwischen beiden Kammern strömt das Gas aus der Staukammer durch die Düse in die Vakuumkammer, ein Strahl bildet sich aus, dessen Eigenschaften mit Hilfe der sog. Knudsenzahl K_n beschrieben werden können. Die Knudsenzahl K_n ist definiert als

$$K_n = \frac{\lambda}{d} \quad (4-1)$$

wobei λ für die mittlere freie Weglänge eines Gasparkels in der Staukammer steht und d den Durchmesser der Düsenöffnung angibt. Anschaulich ist die Knudsenzahl ein Maß für die Wahrscheinlichkeit, daß die Gasparkel beim Durchqueren der Düse miteinander stoßen. Man unterscheidet mit ihrer Hilfe prinzipiell zwei verschiedene Formen des hinter der Düse entstehenden Gasstrahls, je nachdem, ob ihr Wert größer oder wesentlich kleiner als 1 ist. Ist die mittlere freie Weglänge der Gasparkel größer als der Düsendurchmesser, entsteht ein effusiver Strahl; ist sie wesentlich kleiner bildet sich ein Überschall-Düsenstrahl aus.

Ein effusiver Strahl, der sich bei $K_n > 1$ ausbildet, besitzt eine relativ geringe Intensität und hohe Winkeldivergenz. Die Geschwindigkeitsverteilung der Gasparkel im effusiven Strahl entspricht der in der Staukammer gegebenen Maxwell'schen Geschwindigkeitsverteilung zur entsprechenden Temperatur T_0 (Abb.4-2).

Ein Überschall-Düsenstrahl, der für $K_n \ll 1$ entsteht, besitzt im Gegensatz zum effusiven Strahl eine relativ hohe Strahlintensität und eine hohe Richtungs-fokussierung. Der sog. supersonic beam hat bezogen auf die Breite der Maxwell'schen Geschwindigkeitsverteilung seiner Gasparkel nur eine Temperatur von einigen wenigen Kelvin, die Verteilung ist äußerst schmal, die Gasparkel haben fast keine Relativgeschwindigkeit zueinander. Diesen Effekt der enormen Abkühlung nennt man Joule-Thomson-Effekt bei adiabatischer Expansion. Adiabatische Expansion heißt hier, daß die Wärmemenge des Systems konstant bleibt und in diesem Fall, daß die Gasteilchen beim Durchqueren der Düse keine Energie an die Düsenwand abgeben. Da die Knudsenzahl für die Überschall-Düsenstrahl-expansion wesentlich größer als 1, d.h. die mittlere freie Weglänge der Gasparkel in der Staukammer viel kleiner als der Düsendurchmesser ist, ist die Stoßwahrscheinlichkeit der Gasteilchen miteinander beim Durchqueren der Düse bzw. im Bereich kurz hinter der Düse sehr hoch. Die Stöße führen zu einer Geschwindigkeitsnivellierung hinsichtlich des Betrags und auch der Richtung. So erklärt sich die starke Richtungs-fokussierung und die starke Abnahme der Relativgeschwindigkeit. Nach einer kurzen Strecke hinter der Düse (typischerweise einige Düsendurchmesser lang) gibt es auf diese Weise nur noch eine schmale Geschwindigkeitsverteilung um eine Düsenstrahlgeschwindigkeit u_1 herum und die Stöße werden seltener (Abb.4-2). Die Geschwindigkeitsverteilung im Überschall-Düsenstrahl lautet:

$$N(u_z) = N_{u_1} \cdot e^{-\frac{M}{2kT_1}(u_z - u_1)^2} \quad (4-2)$$

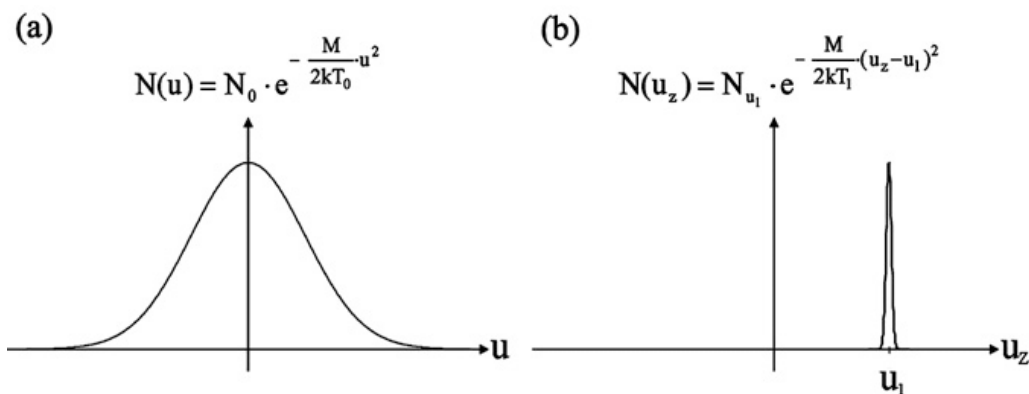


Abb.4-2: Maxwellsche Geschwindikeitsverteilungen der Gaspartikel (a) in der Staukammer und zum Vergleich (b) im Überschall-Düsenstrahl [Demt1987].

Die Temperatur T_1 sinkt auf etwa 1 Promille der Temperatur T_0 und die kinetische Energie der Teilchen $\frac{1}{2} M u_1^2$ beträgt $\frac{5}{2} kT_0$ [GeGa1998]. Experimentell erreicht man die Erzeugung eines supersonic beam, wenn der Stagnationsdruck p_0 in der Staukammer bzw. die Druckdifferenz zum Vakuum sehr hoch, d.h. typischerweise einige bar ist und die Düse sehr klein (typischerweise 50...200 μ m). In einem solchen Überschall-Düsenstrahl ist nun Clusterkondensation möglich.

4.1.2 Clusterkondensation

Die Bildung von Clustern im Überschall-Düsenstrahl kann mit der Bildung von Wassertropfchen in einer mit Wasserdampf übersättigten Atmosphäre verglichen werden. Mikroskopisch betrachtet entstehen zunächst Dimere. Diese bilden sich bei Dreierstößen der Gaspartikel, wobei das dritte Teilchen die überschüssige Energie in Form von kinetischer Energie abführt. Das entstandene Dimer ist zunächst noch hoch angeregt, knapp unterhalb der Dissoziationsgrenze. Durch weitere Stöße relaxiert es dann aber in tiefergelegene Rotations- und Schwingungszustände. Stoßen diese Dimere nun mit weiteren Gaspartikeln, kann es auch bei einem Zweierstoß zur Trimerbildung kommen, weil über die Freiheitsgrade von Schwingung und Rotation des Dimers Kondensationswärme abgeführt werden kann. Analog sind dann natürlich Trimere weiterführende Kondensationskeime. Die Bildung größerer Cluster geschieht über die Anlagerung von weiteren Monomeren an diese. Ab einer Clustergröße von etwa 10 Teilchen kommen zum Prozeß der Anlagerung von Monomeren noch Cluster-Cluster-Reaktionen (Koagulation) dazu. Dabei können sich sehr große Cluster mit mehr als 1000 Teilchen bilden [Echt1982].

Nach dieser eher anschaulichen mikroskopischen Erklärung der Bildung von Clustern soll nun die Clusterkondensation im Überschall-Düsenstrahl anhand der Expansions- und Dampfdruckkurve des expandierenden Gases erläutert werden. Es wurde bereits ausgeführt, daß ein Gas, das adiabatisch durch eine Düse ins Vakuum expandiert, eine starke Abkühlung erfährt. Adiabatisch heißt dabei, daß die Gesamtenergie des Systems konstant bleibt und die Gasteilchen keine Energie an die Düsenwand abgeben. Die große Abküh-

lung des Gases äußert sich darin, daß ein Großteil der inneren Energie in kinetische Energie der Gaspartikel umgesetzt wird und eine Richtungsfokussierung erfolgt. So gelangen die Gasteilchen hinter der Düse in eine Übersättigung und Clusterkondensation kann erfolgen. Das $p(T)$ -Diagramm (Abb.4-3) soll helfen, die Clusterbildung thermodynamisch nachzuvollziehen. Die Gaspartikel befinden sich zunächst, also beim Eintritt in die Düse, im Zustand $A(p_0, T_0)$ und wandern während der adiabatischen Expansion, also während sie abkühlen, entlang der Adiabatenkurve $p(T)$ in Pfeilrichtung. Doppelt logarithmisch aufgetragen ist die Adiabate eine Gerade mit Steigung $m=\gamma/(\gamma-1)$. Ab dem Punkt B, wo die Adiabate die Dampfdruckkurve schneidet, befindet sich das Gas im Zustand der Übersättigung. Der lokale Druck ist größer als der Dampfdruck in der Gasphase. Der Grad S der Übersättigung wird über das Verhältnis des Gasdrucks bei Temperatur T zum Gleichgewichtsdampfdruck über einer ebenen Flüssigkeit bei derselben Temperatur T angegeben.

$$S = \frac{p(T)}{p_v(T)} \quad (4-3)$$

Im Punkt B ist der Grad der Übersättigung demnach $S=1$. Die Lage von Punkt C, wo $S>1$ ist und die Clusterkondensation einsetzt, hängt vom thermodynamischen Zustand des Gases und der Kinetik der Expansion ab, die aus den Expansionsparametern p_0 und T_0 folgt. Ab Punkt C verläßt dann das System die Adiabate und biegt in Richtung kleinerer Drücke und wieder höherer Temperaturen ab. Die Gründe dafür sind klar: zum einen wird die Teilchenzahl des Systems bei der Clusterbildung reduziert und damit der Druck, zum anderen wird Kondensationswärme frei.

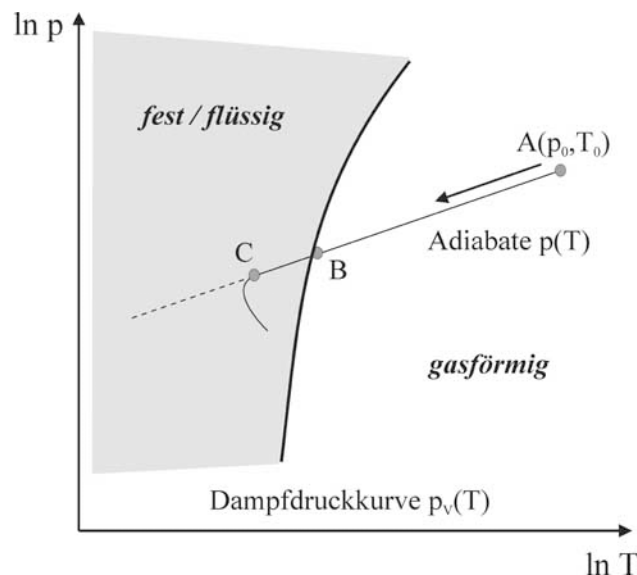


Abb.4-3: Expansions- und Dampfdruckkurve des expandierenden Gases. Punkt $A(p_0, T_0)$ ist der Anfangszustand des Systems, Punkt B markiert den Übersättigungspunkt des Gases und in Punkt C ist der Startpunkt der Kondensation der Gasteilchen zu Clustern, wo das System die Adiabate verläßt [Stol1998].

Um die Clusterbildung zu fördern und insbesondere große Cluster zu bekommen, kann man anstelle eines einfachen Loches eine Düse mit konisch auslaufendem Profil verwenden [Schü1992] bzw. noch besser eine sog. Lavaldüse [Zier1993][Abra1981], die im Querschnitt zunächst kleiner wird und sich dann aufweitet, was zu besonders hoher Überschallgeschwindigkeit des Düsenstrahls und daher einer besonders starken Abkühlung und Richtungsfokussierung führt. Die Form der Düse bestimmt das Dichte- und Geschwindigkeitsprofil des Clusterstrahls (Abb.4-4). Geometrische Überlegungen erlauben die Annahme, daß eine (meist verwendete) konische Düse mit einem Öffnungsdurchmesser d und Öffnungswinkel 2α aufgrund ihrer kleineren Winkeldivergenz dasselbe Strömungsfeld erzeugt wie eine Lochdüse mit einem äquivalenten Durchmesser

$$d_{\text{äqu}} = 0,74 \cdot \frac{d}{\tan \alpha} \quad (4-4)$$

Für einfache Lochdüsen ist diese Formel nicht anwendbar. Hier setzt man einfach $d_{\text{äqu}} = d$. Da der Fluß an Gasparkeln proportional zum Quadrat des Düsendurchmessers anwächst, wird bei gleicher Pumpleistung durch die Verwendung konischer Düsen eine Steigerung des Expansionsdruckes um den Faktor $(d_{\text{äqu}}/d)^2$ und damit eine Verstärkung der Clusterbildung ermöglicht. Die Reduzierung des Öffnungswinkels 2α ist durch die Entstehung von Grenzschichten innerhalb des Konus limitiert [Ober1979]. Diese stören die Überschall-Düsenstrahlexpansion. Es ist auch möglich, solche Grenzschichten sehr genau zu vermessen [Schü1996].

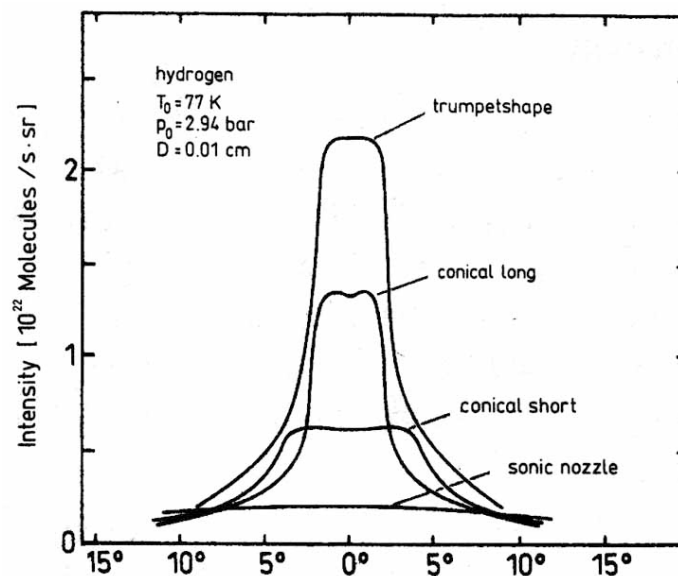


Abb.4-4: Winkelverteilung eines Wasserstoff-Clusterstrahls für verschiedene Düsenformen. Die Temperatur T_0 in der Staukammer, der Stagnationsdruck p_0 und der Durchmesser D der Düsenöffnung sind konstant ($T_0 = 77 \text{ K}$, $p_0 = 2,94 \text{ bar}$, $D = 100 \mu\text{m}$). Deutlich ist die verstärkte Vorwärtsfokussierung und die Clusterintensitätssteigerung für konische Düsen im Vergleich zur einfachen Lochdüse zu erkennen [Habe1994b].

4.1.3 Skalierungsgesetz nach Hagen

Die Clustersputterapparatur im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurde mehrfach im Hinblick auf die Clustermassenverteilungen charakterisiert. Im laufenden Experimentierbetrieb aber macht es keinen Sinn, das Clustermassenspektrum vor jedem Sputterexperiment neu zu bestimmen, solange man anhand der Expansionsparameter eine zuverlässige Aussage über den Clustermassenschwerpunkt und die Breite und Form der Verteilung machen kann. Genau zu diesem Zweck wurde die Anwendbarkeit des Skalierungsgesetzes nach Hagen überprüft und bestätigt (vgl. Kap.4.2.3)

Bisher gibt es keine geschlossene Theorie, die eine Vorhersage der Clustergrößenverteilung für die adiabatische Düsenstrahlexpansion ermöglicht. Das Problem einer geschlossenen Beschreibung besteht insbesondere darin, daß sich während der Expansion, d.h. während die Cluster kondensieren und wachsen, ständig die Bedingungen für die weitere Kondensation ändern. Die Kondensationstheorie etwa macht zu stark vereinfachende Annahmen, um Vorhersagen zu gestatten, und rein statistische Modelle vernachlässigen die mikroskopischen Eigenschaften und Wechselwirkungsprozesse. Der einzige quantitative Ansatz zur Beschreibung der Clusterkondensation für die adiabatische Düsenstrahlexpansion stammt von O.F.Hagen. Seine Theorie erlaubt eine Vorhersage der mittleren Clustergröße \bar{N} aus den Expansionsparametern Stagnationsdruck p_0 (genau genommen die Differenz zwischen dem Druck in der Staukammer und dem Restdruck in der Vakuumkammer), Temperatur T_0 der Gaspartikel im Reservoir und Durchmesser d der Düsenöffnung.

Die Theorie nach Hagen beschreibt die Expansion eines idealen einatomigen Gases entlang der Strahlachse [Hage1987][Hage1992]. Zunächst werden die reduzierte Teilchendichte $\bar{n}(\delta)/\bar{n}_0$ und Strahltemperatur $T(\delta)/T_0$ eingeführt. Ihre Abhängigkeiten vom reduzierten Düsenabstand $\delta = x/d$ leitet sich aus den Adiabatengleichungen ab und lautet in einer Näherung

$$\frac{\bar{n}(\delta)}{\bar{n}_0} = 0,15 \cdot \delta^{-2} \quad \text{und} \quad \frac{T(\delta)}{T_0} = 0,282 \cdot \delta^{-\frac{4}{3}} \quad (4-5)$$

Weiter wird der Skalierungsparameter Ψ für bimolekulare Stöße eingeführt, um den Übergang vom Kontinuumsstrahl zum Molekularstrahl zu beschreiben.

$$\Psi = \bar{n}_0 \cdot d \cdot T_0^{-1,25} \quad (4-6)$$

Ströme mit gleichem Skalierungsparameter Ψ erreichen den gleichen Kondensationsgrad und die gleiche Endtemperatur T . Der quantitative Zusammenhang zwischen Ψ und T hängt davon ab, welche Art von Kollisionsprozeß unter den Gasparkeln angenommen wird. Geht man von Stößen zwischen „harten Kugeln“ aus, dann ergibt sich als Näherung

$$T_\infty = K \cdot \Psi^{-0,8} \quad (4-7)$$

wobei K eine stoffspezifische Konstante ist. Um den Clusterbildungsprozeß hinreichend zu

beschreiben, muß der Skalierungsparameter Ψ erweitert werden, d.h. die Möglichkeit des unimolekularen Zerfalls von Clustern, also des Abdampfens einzelner Atome, muß berücksichtigt werden. Zur Abschätzung der mittleren Clustergröße \bar{N} führt Hagena deshalb den Skalierungsparameter Γ ein:

$$\Gamma = \bar{n}_0 \cdot d^q \cdot T_0^{(0.25q-1.5)} \quad \text{mit} \quad 0.5 < q < 1 \quad (4-8)$$

Dabei ist q ein stoffspezifischer Parameter, dessen Wert experimentell bestimmt werden muß. Für $q = 1$ entspricht Γ der bimolekularen Skalierung: $\Gamma = \Psi$. Außerdem läßt sich an Gl.(4-8) direkt ablesen, daß Γ mit der Erhöhung der Teilchenflußdichte $J_0 \sim \bar{n}_0 \cdot d_2 \cdot \sqrt{T}$ über Teilchendichte n_0 und Düsendurchmesser d anwächst, während eine Temperaturerhöhung Γ verkleinert. Als Skalierungsparameter ist Γ ein Maß für die Stärke der Clusterkondensation, d.h. ein Anwachsen von Γ ist gleichbedeutend mit einer verstärkten Clusterbildung, eine Reduktion mit einer Abnahme derselben. Eine Substitution der Teilchendichte n_0 durch den Teilchenfluß J_0 in Gleichung (4-8) ergibt

$$\Gamma \sim J_0 \cdot d^{q-1} \cdot T_0^{(0.25q-2)} \quad (4-9)$$

Man kann hier direkt ablesen, daß bei maximalem Teilchenfluß J_0 , der durch die Pumpleistung der Vakuumkammer begrenzt ist, die Clusterkondensation entweder durch eine Reduzierung des Düsendurchmessers d oder eine Verringerung der Expansionstemperatur gefördert werden kann.

Da die Teilchendichte $\bar{n}(\delta)$ mit $\delta = x/d$ gemäß (4-5) auf der Strahlachse quadratisch mit d abfällt, sind der Reduktion des Düsendurchmessers aus Intensitätsgründen Grenzen gesetzt. Der Einfluß der Temperatur T_0 allerdings ist sehr groß und dominant gegenüber dem Einfluß der Teilchenflußdichte J_0 . Anschaulich ist das nachvollziehbar. Eine Reduktion von T_0 ist gleichbedeutend mit der Verringerung der inneren Energie der Gaspartikel, so daß es einer geringeren Anzahl an Stößen bedarf, um die Temperatur unterhalb die Dissoziationstemperatur der Cluster zu drücken. Dieser Gewinn hinsichtlich der Clusterbildung ist größer als derjenige Kondensationsgewinn, der aus der Zunahme an Stößen durch eine Erhöhung der Teilchenflußdichte J_0 resultiert.

Für die weitere Beschreibung ist es nützlich, einen reduzierten Skalierungsparameter Γ^* einzuführen:

$$\Gamma^* = \frac{\Gamma}{\Gamma_{\text{ch}}} \quad (4-10)$$

Diese Definition berücksichtigt die stoffspezifischen charakteristischen Eigenschaften der Gaspartikel, so daß Γ^* stoffunabhängig ein universelles Maß für die Clusterkondensation ist. Der stoffspezifische Skalierungsparameter Γ_{ch} ist aus (4-8) entwickelbar zu:

$$\Gamma_{\text{ch}} = r_{\text{ch}}^{q-3} \cdot T_{\text{ch}}^{(0.25q-1.5)} \quad (4-11)$$

Dabei sei r_{ch} ein geometrischer spezifischer Radius der Gaspartikel, den man aus der Masse m und der spezifischen Festkörper-Dichte ρ der Gasteilchen erhält. Die charakteristische Temperatur T_{ch} sei äquivalent zur Sublimationsenthalpie Δh_0^0 pro Gaspartikel (bei Temperatur $T = 0$ K). Also sind die beiden Größen wie folgt zu definieren:

$$r_{\text{ch}} = \left(\frac{m}{\rho} \right)^{1/3} \quad \text{und} \quad T_{\text{ch}} = \frac{\Delta h_0^0}{k_B} \quad (4-12)$$

Laut O.F.Hagena setzt die Clusterkondensation bei $\Gamma^* = 200$ ein. Kleine Cluster bis zu einer mittleren Größe $\bar{N} = 100$ bilden sich für $\Gamma^* < 1000$, während für $\Gamma^* > 1000$ größere Cluster entstehen. Die mittlere Clustergröße \bar{N} wird über eine nichtlineare Beziehung mit dem reduzierten Skalierungsparameter Γ^* wie folgt verknüpft:

$$\bar{N} = c \cdot (\Gamma^*)^\alpha \quad (4-13)$$

Die Parameter $c > 0$ und $\alpha > 0$ sind experimentell zu bestimmen. Im Rahmen der Charakterisierung der Clusterquelle wurden Massenspektren aufgenommen und bezüglich der mittleren Clustergröße \bar{N} ausgewertet. Folgende Werte wurden für die Parameter c , α und q bestimmt [Stol1998] :

$$c = 8,85 \cdot 10^{-2} \quad \text{und} \quad \alpha = 1,22 \quad \text{und} \quad q = 0,85 \quad (4-14)$$

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurde mit $(\text{CO}_2)_N^+$ und Ar_N^+ Clusterionen gearbeitet. Die mittlere Clustergröße \bar{N} kann, wie bereits weiter oben diskutiert, im Experiment über den Stagnationsdruck p_0 , den Düsendurchmesser d und die Temperatur T_0 festgelegt. Daher ist es von praktischem Nutzen, die mittlere Clustergröße \bar{N} in direkter Abhängigkeit von Stagnationsdruck p_0 , Düsendurchmesser d und Temperatur T_0 anzugeben. Da mit einer konischen Düse gearbeitet wurde, ist es des weiteren sinnvoll, anstelle von Düsendurchmesser d den äquivalenten Lochdüsen-Durchmesser $d_{\text{äqu}}$ zu verwenden (Gl.(4-4)). Schließlich substituiert man \bar{n}_0 in Gleichung (4-8) durch den Ausdruck

$$\bar{n}_0 = \frac{p_0}{k_B T_0} \quad (4-15)$$

Nun sind alle notwendigen Größen und Zusammenhänge soweit hergeleitet, daß man zusammenfassend eine Formel zur Berechnung der mittleren Clustergröße \bar{N} angeben werden kann. Sie hat die folgende Form:

$$\bar{N} = 8.85 \cdot 10^{-2} \cdot (\Gamma^*)^{1.22} \quad (4-16)$$

Dabei ist Γ^* eine Größe, die vom stoffspezifischen Parameter β , Stagnationsdruck p_0 , Düsendurchmesser $d_{\text{äqu}}$ und Düsensstemperatur T_0 abhängt. Die zur Berechnung benötigten Zu-

sammenhänge lauten wie folgt (in eckigen Klammern sind die Einheiten angegeben):

$$\Gamma^* = \beta \cdot \frac{p_0[\text{bar}] \cdot d_{\text{äqu}}^q [\text{m}]}{T_0[\text{K}]^{(2.5 - 0.25 q)}}$$

$$\beta = \frac{r_{\text{ch}}[\text{m}]^{3-q} \cdot T_{\text{ch}}[\text{K}]^{(1.5 - 0.25 q)}}{k_B[\text{J/K}]}$$

$$r_{\text{ch}}[\text{m}] = \left(\frac{m_{\text{Atom/Molekül}} [\text{g}]}{\rho [\text{g/m}^3]} \right)^{1/3}$$

$$T_{\text{ch}}[\text{K}] = \frac{\Delta h_0^0 [\text{J/Atom}]}{k_B[\text{J/K}]}$$

$$\Delta h_0^0 [\text{J/Atom}] = \frac{\Delta h_0^0 [\text{J/mol}]}{N_A}$$

$$d_{\text{äqu}} = 0,74 \cdot \frac{d}{\tan \alpha}$$

Da in dieser Arbeit mit Ar_N- und (CO₂)_N-Clustern gearbeitet wurde, sind in Tab.4-1 die stoffspezifischen Parameter für diese Gase angegeben. Darüberhinaus sind die geometrischen Parameter der hauptsächlich verwendeten Düsen angegeben. Mit diesen Informationen ist die Abhängigkeit der mittleren Clustergröße vom Stagnationsdruck für die hier verwendete Apparatur vollständig beschrieben.

Argon	$m_{\text{Argon-Atom}} = 39,9 \text{ u} = 66,2 \cdot 10^{-24} \text{ g}$, $\rho_{\text{Argon-Festkörper}} = 1,77 \text{ g/cm}^3$ $\Delta h_{0,\text{Argon}}^0 = 7812 \text{ J/mol}$ $1,3 \cdot 10^{-20} \text{ J/Atom}$ $\Rightarrow \beta_{\text{Argon}} = 2,062 \cdot 10^{11}$
CO ₂	$\Delta h_{0,\text{CO}_2}^0 = 4,5 \cdot \Delta h_{0,\text{Argon}}^0 = 5,85 \cdot 10^{-20} \text{ J/Atom}$ $\Rightarrow \beta_{\text{CO}_2} = 1,44 \cdot 10^{12}$
Naturkonstanten	$k_B = 1,38 \cdot 10^{-23} \text{ J/K}$, $N_A = 6,02 \cdot 10^{23} \text{ Teilchen/mol}$
Düse 1 (Abb.4-8(a))	$d = 200 \mu\text{m}$, $2\alpha = 30^\circ$, $d_{\text{äqu}} = 550 \mu\text{m}$, $T_0 = 300 \text{ K}$
Düse 2 (Abb.4-8(b))	$d = 200 \mu\text{m}$ (Quasi-Lochdüse) $d_{\text{äqu}} = 200 \mu\text{m}$, $T_0 = 300 \text{ K}$

Tab.4-1 : Übersicht über die stoffspezifischen Größen für Argon und CO₂. Außerdem Angaben zu der bevorzugt verwendeten Düse und die benötigten Konstanten.

4.2 Apparaturdesign

Die Clustersputtermaschine besteht aus einem mehrstufigen Vakuumsystem, beginnend bei der Clusterquellenkammer, gefolgt von differentiellen Pumpstufen bis hin zur Sputterkammer. Mit Hilfe einer Ionenoptik wird ein Clusterionenstrahl aus der Quellenkammer extrahiert und bis zum Target gelenkt. Das Target selbst wird auf ein Hochspannungspotential gelegt. Die Clusterionen beziehen also ihre Sputterenergie aus dem Hochspannungsfeld zwischen dem Ende der Ionenoptik und dem Target.

Die Apparatur wurde in ihrer ersten Entwicklungsstufe im Rahmen einer Diplomarbeit [Stol1998] aufgebaut. Im weiteren Verlauf der experimentellen Arbeit an dieser Apparatur wurden Umbauten und Verbesserungen vorgenommen, die zum Teil bereits in [Gerh2000] dokumentiert sind. So wurde zunächst ein einfaches Massensfilter zur Eliminierung kleiner Clustermassen und Atome eingebaut, das aber später durch einen Sektormagneten zur gezielteren Massensfilterung ersetzt wurde. Im Zusammenhang mit experimentellen Problemen durch Kohlenwasserstoffverunreinigungen wurden eine weitere Pumpstufe und außerdem an mehreren Stellen Stickstoffkühlfallen installiert.

Bevor der experimentelle Aufbau im Detail besprochen wird, sollen vorab die wesentlichen Unterschiede der Sputtermaschine vom „*Bautyp Konstanz*“ im Vergleich zum „*Bautyp Yamada*“ (Kap.3.1) erläutert werden:

1. Während beide Apparaturen in der Clustererzeugung sehr ähnlich sind, unterscheiden sie sich in der Ionisationsmethode der zunächst neutralen Cluster. Beim „*Bautyp Yamada*“ wird mit Elektronenstoßionisation gearbeitet, während der „*Bautyp Konstanz*“ die neutralen Cluster durch Zündung einer Gasentladung direkt hinter der Düse ionisiert. Die Methode der Elektronenstoßionisation wurde beim Bau der Konstanzer Maschine zu Anfang gleich als wesentlich entwicklungsbedürftiger im Vergleich zu einer Gasentladung angesehen. So wurde die Gasentladung im Düsenstrahl zunächst recht problemlos über eine einfache Drahtschleife vor dem ersten Skimmer gezündet. Inzwischen wird mit einer Elektrode direkt hinter der Düse gearbeitet. Im Vergleich dazu bedurfte es einer jahrelangen Entwicklung beim „*Bautyp Yamada*“, um mit Elektronenstoßionisation inzwischen allerdings sehr große Clusterionenströme von bis zu $100\mu\text{A}$ zu erzeugen. Solch hohe Ströme werden für die hier anstehenden Experimente allerdings nicht benötigt, so daß man bei der Konstanzer Apparatur nach dem Erreichen von Clusterionenströmen bis zu 300 nA für $(\text{CO}_2)^+_N$ und Ar^+_N Clusterionen einer mittleren Größe $\bar{N} = 100 \dots 10000$ von weiteren Entwicklungsbemühungen absah.
2. Ein weiterer Unterschied zur Clustersputtermaschine der japanischen Forscher ist die Art der Massensfilterung. Beim „*Bautyp Yamada*“ werden die Atom- und kleinsten Clusterionen über ein elektrisches Gegenpotential aus dem Ionenstrahl herausgebremst. Beim „*Bautyp Konstanz*“ wird mit einem Sektormagneten gearbeitet. So macht man keinen „*Massen-Cutoff*“, sondern setzt ein „*Massenfenster*“. Zudem kann man direkt Massenspektren aufnehmen und damit die Clustermassenverteilung kontrollieren.

4.2.1 Vakuumsystem

Auf der folgenden Seite ist eine Übersichtsskizze (Abb.4-6) zum Apparaturaufbau zu sehen. Sie besteht aus einem System Vakuumkammern, die differentiell gepumpt werden. An drei Stellen sind Ventile eingebaut. Das Ventil direkt hinter der Quellenkammer hat den Nutzen, daß die Quellenkammer unabhängig vom restlichen Vakuumsystem belüftet werden kann, so daß auch während des Betriebs der Maschine ein Austausch bzw. Umbau an der Düse oder an der Elektrode möglich ist. Das Ventil vor der Sputterkammer wiederum erlaubt einen reibungsloseren Experimentierverlauf, da so nach dem Belüften und dem Austausch des Sputtertargets lediglich das Volumen der Sputterkammer erneut zu evakuieren ist.

Unter differentiellen Pumpstufen, die zwischen der Quellenkammer und Kammer IV realisiert sind, versteht man, daß quasi getrennte Vakuumeinheiten vorliegen – nur verbunden bzw. getrennt durch einen sog. Skimmer (engl. *to skim* \cong *entrahmen*). Dieser schält mit seiner scharfen Kante den stabilen inneren Clusterstrahlbereich heraus bzw. „entrahmt“ quasi den Clusterstrahl von seinen diffusen Außenbereichen. Zugleich erreicht man über die Trennung der einzelnen Kammern durch Skimmer mit nur kleiner Öffnung eine stufenweise Verbesserung der Vakuumbedingungen um jeweils etwa eine Größenordnung von Kammer zu Kammer (Tab.4-2).

Die grundsätzliche Philosophie zum Vakuumsystem kann einfach wie folgt formuliert werden: der Clusterionenstrahl muß möglichst rasch gutes Vakuum erreichen, um sich gegen den Hintergrundgasdruck bis zur Sputterkammer stabil „durchzusetzen“. Da aber durch die Düse kontinuierlich Gas in das System strömt, ist eine hohe Pumpleistung erforderlich, um das Vakuum soweit aufrechtzuerhalten, daß sich der Überschall-Düsenstrahl bis zum ersten Skimmer durchsetzen kann, hinter dem dann der Druck schon besser ist. Das heißt aber auch daß neben einer großen Pumpleistung ein Kammerdesign mit möglichst kurzen erforderlich wird. Die differentiellen Pumpstufen müssen also als schmale Vakuumkammern in Richtung des Düsenstrahls mit minimalem Pumpvolumen konstruiert werden (Kap.4.2.3).

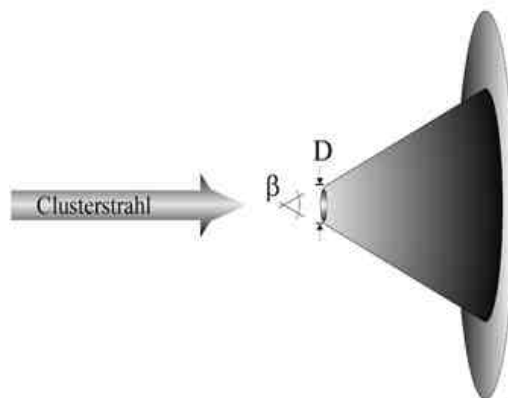


Abb.4-5: Skizze eines Skimmers. Wichtig ist, daß die Kante an der Skimmeröffnung mit Durchmesser D und Öffnungswinkel β scharf geschliffen ist.

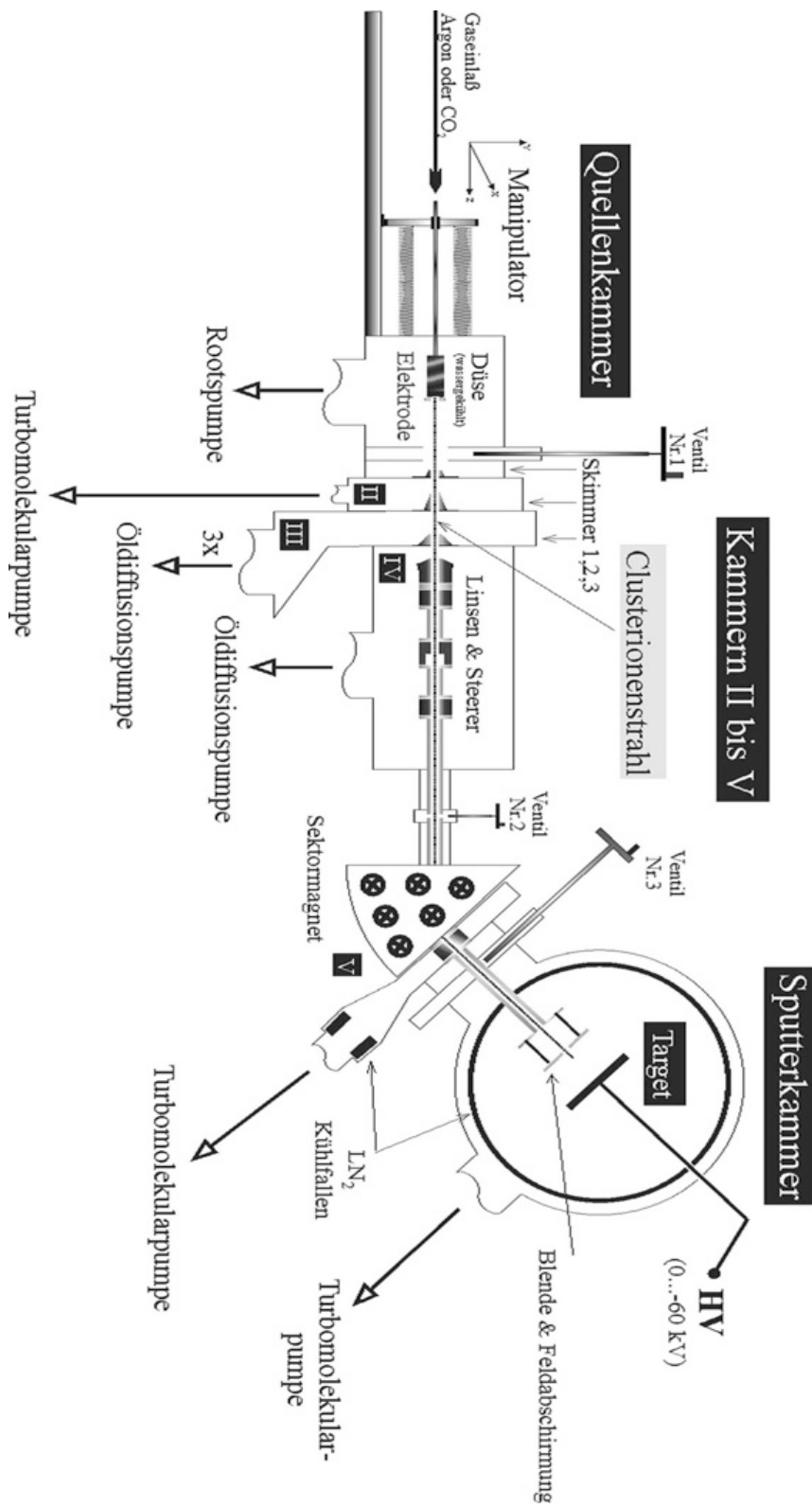


Abb.4-6: Übersichtsskizze zum Aufbau der Clustersputtermaschine.

Was die Güte des Vakuums betrifft, so ist es nicht unbedingt notwendig, unter UHV-Bedingungen zu sputtern. Sogar ein Druckbereich von 10^{-7} mbar ist auszureichend. Im Rahmen dieser Arbeit wurde dies zumindest für das Sputtern von oxidierten Siliziumwafern festgestellt. Deren Oxidschicht wird im Bereich des Sputterflecks zwar während des Sputterns abgetragen, jedoch spätestens bei der Entnahme der Probe oxidiert die Oberfläche sofort wieder, so daß eine teilweise Oxidation noch in der Kammer im Anschluß an das Sputtern nicht weiter stört. Ein großes Problem stellte allerdings zeitweise ein nachweisbarer Partialdruck an Kohlenwasserstoffen bis zu 10^{-8} mbar dar, die zunächst durch Kammersäuberungen und Ausheizen, später durch den Einbau von Kühlfallen unter die Nachweisgrenze gedrückt wurden. Beim Sputterprozeß mit hohen Sputterenergien können Kohlenwasserstoffmoleküle aus dem Restgas ge-crackt werden. Eine durchs Sputtern oxidfrei gewordene Siliziumoberfläche stellt dann den denkbar besten Reaktionspartner für frei gewordene Kohlenstoffgruppen dar. Im Sputterbereich bildet sich eine Siliziumcarbidschicht, die als Schliere auf der Siliziumoberfläche sichtbar ist. Daß im Verlauf der Experimente längerfristig reaktive Sputterprozesse mit Kohlenwasserstoffen aufgetreten sind, ist aber nicht mehr auf Restgas-Kohlenwasserstoffe zurückzuführen. Hier spielen vom Clusterstrahl im Quellenbereich der Apparatur „aufgepickte“ Verunreinigungen eine Rolle.

	Vorpumpe Pumpleistung in [m ³ /h]	Hochvakuumpumpe Pumpleistung in [m ³ /h]	Druckbereich
Quellenkammer	Drehschieberpumpe (1-stufig) Alcatel 1200 (200)	Wälzkolbenpumpe Pfeiffer WPK1000 (1000)	$< 10^{-2}$ mbar
Kammer II	Drehschieberpumpe (2-stufig) Alcatel 1060 (60)	Turbomolekularpumpe VARIAN V550 (1980)	10^{-4} mbar
Kammer III	Drehschieberpumpe Balzers Duo 170 (170)	3 x Öldiffusionspumpen 3 x VARIAN VHS-6 (8640)	10^{-5} mbar
Kammer IV	über Kammer III gepumpt	Öldiffusionspumpe mit Baffle VARIAN VHS-6 (7200)	10^{-6} mbar
Kammer V	Drehschieberpumpe VARIAN SD-90 (90)	Turbomolekularpumpe Leybold TURBOVAC 360CF	10^{-7} mbar
Sputterkammer	Drehschieberpumpe Leybold Heraeus D30A (30)	Turbomolekularpumpe Leybold TURBOVAC 450CF	$< 10^{-8}$ mbar

Tab.4-2: Vakuumbedingungen in der Clustersputterapparatur.

4.2.2 Clusterionenquelle – Düsendesign – Clusterionisation

Die Clusterquelle besteht in ihrem Kernstück aus einer Düse, durch die ein Gas aus einer Staukammer ins Vakuum hinein adiabatisch expandiert. In Kapitel 4.1 wurde bereits beschrieben, wie es bei einer solchen Expansion zur Clusterkondensation kommt. In diesem Unterkapitel soll nun das konkret verwendete Düsendesign vorgestellt werden. Außerdem wird die Ionisation der neutralen Cluster über eine Gasentladung direkt

hinter der Düse erklärt - schließlich können nur geladene Teilchen gezielt durch die Apparatur gelenkt und schließlich auf das zu sputternde Target zu beschleunigt werden.

Die Ausbildung eines stabilen Überschall-Düsenstrahls ist Voraussetzung für die Clusterkondensation. Mit wachsender Düsenstrahlgeschwindigkeit wird die Richtungsfokussierung der Gasteilchen größer und die Clusterkondensation effizienter. Das Herunterskalieren von Strömungsdynamik aus dem makroskopischen hinunter in den mikroskopischen Maßstab ist allerdings nicht trivial. Für ein Laval-Düsenprofil zum Beispiel konnten O.Abraham et al. [Abra1981] zeigen, daß dieses im makroskopischen Maßstab ausgezeichnete Design zur Erzeugung von Überschall-Düsenstrahlen auch im mikroskopischen Maßstab, insbesondere bei der adiabatischen Expansion für Düsendurchmesser zwischen $25\mu\text{m}$ und $250\mu\text{m}$ ebenso erfolgreich die Ausbildung eines stark gebündelten Düsenstrahls bewirkt. In Abb.4-7 sind die Düsenstrahlintensitäten I_{beam} für eine einfache Lochdüse mit einer $100\mu\text{m}$ Düsenöffnung vergleichend mit denen einer Lavaldüse mit entsprechendem Öffnungsdurchmesser über dem Staukammerdruck p_0 aufgetragen. Demnach wird man ein zumindest konisches Düsenprofil favorisieren.

In der vorliegenden Arbeit wurde zunächst mit einer Düse experimentiert, die aus einem Lochdüsenplättchen aus Edelstahlfolie (Dicke: $0,5\text{ mm}$) besteht, das zwischen zwei Flanschen vakuumdicht eingeklemmt ist (Abb.4-8(a)). Bei dieser Düsenkonstruktion hat der vordere Flansch, zur Staukammer hin, ein zylindrisches Profil, während der hintere, zur Vakuumkammer hin, zweistufig konisch zugeschnitten ist. Man kann von einem Quasi-Lavalprofil sprechen. Praktisch ist an diesem Design die problemlose, schnelle Herstellbarkeit der Düsenplättchen mit unterschiedlichsten Lochdurchmessern in größeren Mengen (mittels Laserbohren). Aufgrund eines Verschleißes durch die starke Druckbelastung müssen die Lochdüsenplättchen allerdings oft ausgetauscht werden.. Insbesondere in der ersten Entwicklungsphase der Maschine war aber das Experimentieren mit unterschiedlichen Düsendurchmessern notwendig und daher die schnelle Austauschbarkeit der Plättchen von großem Nutzen.

Die Clustersputtermaschine wurde im Laufe der weiteren Experimente bezüglich der Pumpleistung, des Skimmerdesigns und der Ionenoptik auf eine Düse mit $d = 200\mu\text{m}$ optimiert. Die Möglichkeit eines schnellen Düsenwechsels war in der fortgeschrittenen Experimentierphase nicht mehr wichtig. Deshalb wurde aufgrund des schnellen Verschleißes der Düsenplättchen ein Düsenflansch „am Stück“ mit einem $200\mu\text{m}$ -Düsenloch in Auftrag gegeben. Die Herstellung eines solchen Flansches stellt allerdings enorme Anforderungen an das Geschick eines Feinmechanikers. Deshalb wurde das Profil dieser Düse vergleichsweise einfach gehalten: ein kurzer $200\mu\text{m}$ Kanal mit anschließendem Übergang in einen konisch sich öffnenden Bereich (Abb.4-8(b)). Bei diesem Design ist es aufgrund des stufigen Übergangs in den konischen Bereich nicht sinnvoll, über den Öffnungswinkel des Konus einen äquivalenten Düsendurchmesser zu bestimmen. Die Eichung der mittleren Clustergröße aus dem Stagnationsdruck wird also - in Übereinstimmung mit aufgenommenen Massenspektren - über die Annahme einer Lochdüse mit $d = d_{\text{äqu}}$ vorgenommen (Tab.4-1).

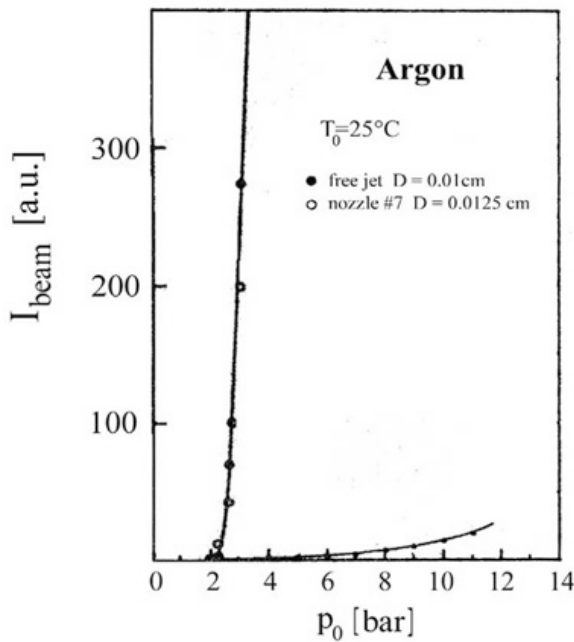


Abb.4-7: Darstellung der Düsenstrahlintensitäten aufgetragen über dem Stagnationsdruck p_0 . Zum Vergleich sind die Intensitäten für eine $100\mu\text{m}$ -Lochdüse (*free jet*) einerseits und für eine entsprechende Lavaldüse (*nozzle #7*) andererseits aufgetragen. Die enorme Effizienzsteigerung bei einer Lavaldüse wird deutlich. [Abra1981].

Nach der Düsenform ist noch zu beschreiben, wie die neutralen Cluster ionisiert werden, um dann mit Hilfe einer Ionenoptik zum Sputtertarget gelenkt zu werden. Zunächst wurde eine Drahtschleife auf negativem Potential von einigen 10 Volt vor dem 1. Skimmer positioniert. Dort entzündete sich dann im Düsenstrahl eine heftig leuchtende Gasentladung. Eine solche Schleife stellt aber ein großes Strömungshindernis dar, zumal man den Durchmesser so klein wählt, daß die Entladung in der Mitte des Düsenstrahls zündet, wo aufgrund der höchsten Teilchendichte die Konzentration der größeren Cluster am höchsten ist. Deshalb wurde als Alternative ein Elektrodenring direkt hinter der Düse installiert. Damit der Düsenstrahl möglichst wenig behindert wird, wurde schließlich einem „Trichter“-Design gewählt. Elektrisch isoliert gegenüber dem Düsenflansch ist die Elektrode über Keramik-Isolierungen. In Abb.4-9 ist ein Photo des durch die Gasentladung leuchtenden Düsenstrahls und das Elektrodendesign abgebildet.

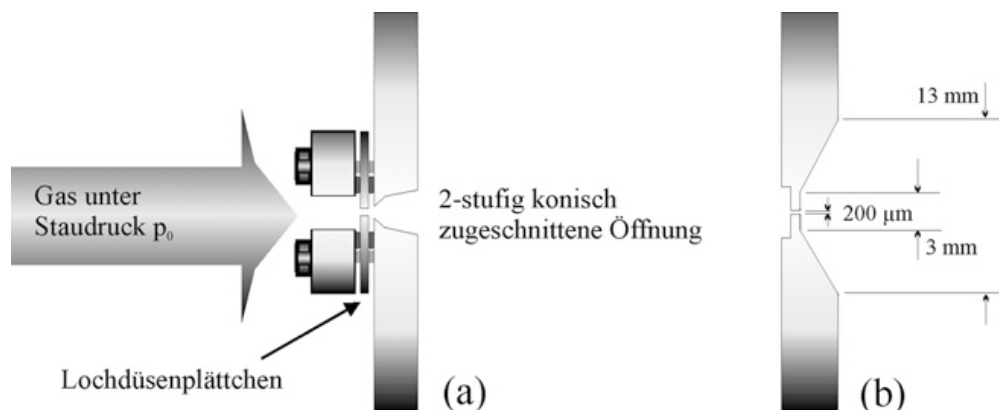


Abb.4-8: (a) Lochdüsenplättchen eingeklemmt zwischen zwei Flanschen (b) $200\mu\text{m}$ -Düsenflansch „am Stück“. (keine maßstabgetreuen Skizzen!)400

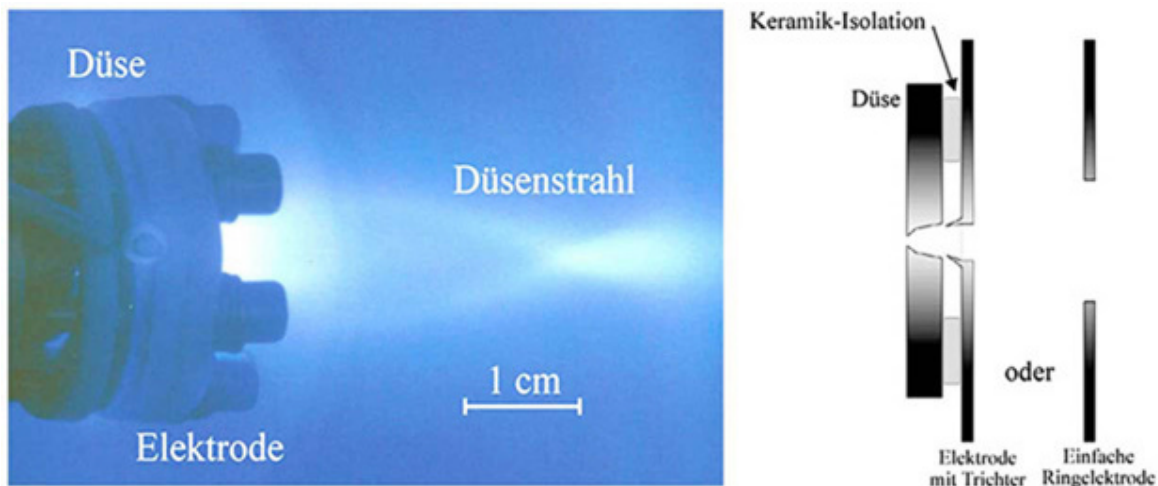


Abb.4-9: Photo des Überschalldüsenstrahls [Stol1998], der aufgrund der Gasentladung leuchtet. Direkt hinter der Düse ist die Elektrode zu sehen, die diese Gasentladung zur Ionisation der neutralen Cluster zündet. In der Skizze rechts ist die Düse mit unterschiedlichen Elektroden dargestellt. Das „Trichter“-Design hat sich als geeignet erwiesen. Über Keramik-Isolierungen sind Düsenflansch und Elektrode voneinander elektrisch getrennt.

4.2.3 Ionenoptik – Massenfilterung mit Sektormagnet

Die Ionenoptik sorgt dafür, daß die Clusterionen zum Target hingelenkt werden. Wie Abb.4-6 zeigt, besteht sie aus den Skimmern auf Potential, aus Linsen, Steuerern und dem Führungsrohr zur Abschirmung der Ionen gegenüber dem geerdeten Kammergehäuse und anderen Störfeldern. Die Ionenoptik ist durchgängig bis in die Sputterkammer.

In Kap.4.2.1 wurde die Notwendigkeit eines möglichst raschen Übergangs vom gutem zu schlechtem Vakuum innerhalb der ersten Kammern (differentiellen Pumpstufen) erklärt, so daß sich der Clusterionenstrahl stabil „durchsetzen“ kann. Der Ionenoptik kommt bei der Extraktion eines stabilen Ionenstrahls hinter der Düse eine entscheidene Bedeutung zu. Auf welcher Strecke der Ionenstrahl erzeugt und stabil in ein Vakuum von 10^{-6} ... 10^{-7} mbar extrahiert wird, ist in Abb.4-10 (maßstabsgetreu in Richtung des Ionenstrahls) gezeigt.

Auch wenn für das Clustersputtern keine Massenseparation notwendig ist und man mit Massenverteilungen experimentiert, ist es dennoch sinnvoll, die Atomionen und kleineren Clustermassen ($\bar{N} \approx 100$) herauszufiltern, um wirklich Clustersputtereffekte und keine Atomsputtereffekte zu bekommen. Als Massenfilterung im Sinne eines „Massenfensters“ dient ein Sektormagnet, bei dem die Magnetische Induktion B über den Strom durch die Kupferrohrwicklungen um den Weicheisenkern im Bereich 0 ... 400 mTesla eingestellt werden kann. In Abb.4-11 ist die Eichung des Sektormagneten wiedergegeben. Es ist möglich, nicht nur die kleinen Massen wegzufiltern, sondern insbesondere Massenspektren aufzunehmen und damit die Clusterionenverteilung zu kontrollieren, indem man den Magnetstrom variiert und den Ionenstrom mißt. Man erhält ein „Ionenstromspektrum“.

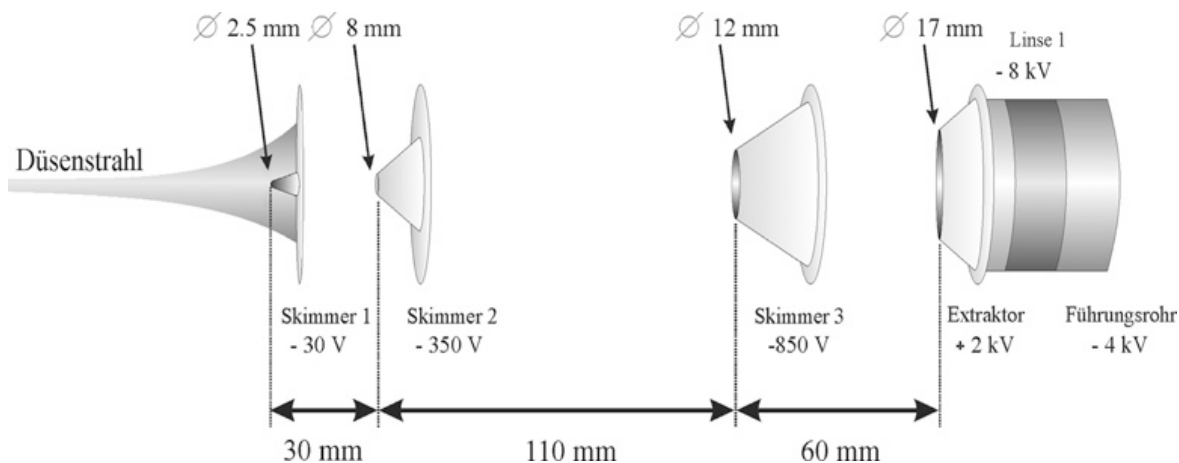


Abb.4-10: Skimmeranordnung zur Extraktion eines stabilen Clusterionenstrahls. Typische Ionenoptik-Potentiale sind angegeben. (Zeichnung ist in Strahlrichtung maßstabsgetreu)

Zur Eichung diese „Ionenstromspektrums“ muß der Zusammenhang zwischen Flugbahnradius r im Bereich des Magnetfeldes, kinetischen Energie E_{kin} , Clustermasse m und Magnetischer Induktion B geklärt werden. E_{kin} der Clusterionen ergibt sich im Wesentlichen aus der Beschleunigung durch das Führungsrohrpotential U . Die Strömungsgeschwindigkeit der Ionen aus der adiabatischen Expansion und die Beschleunigung durch die Skimmer und Linsen sind vernachlässigbar. Aus der Gleichsetzung $F_{Lorenz} = F_{Zentrifugal}$ ergibt sich:

$$m[\text{kg}] = \frac{r[\text{m}]^2 \cdot e[\text{C}] \cdot B[\text{Tesla}]^2}{2 \cdot U[\text{V}]} \tag{4-17}$$

Über die atomare Masseneinheit $1u \approx 1.66 \cdot 10^{-27} \text{ kg}$ ist dann die Masseneichung $[u]$ fertig.

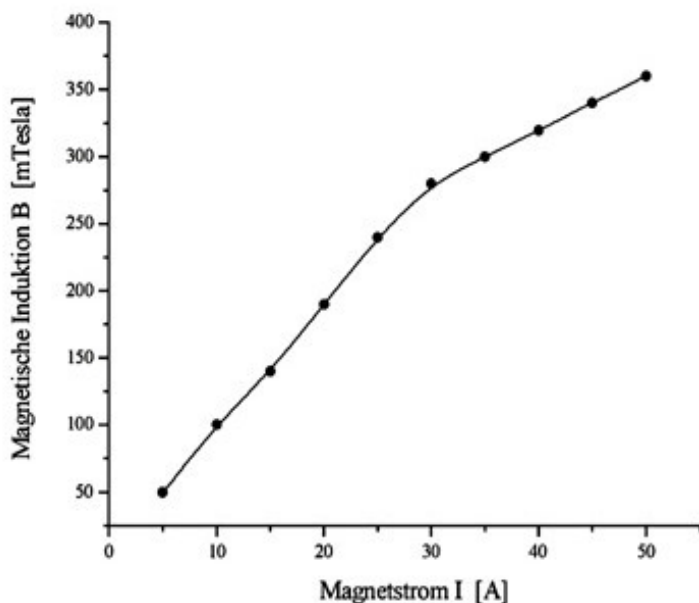


Abb.4-11: Sektormagnet-Eichung.

Im Bereich des Sektormagneten ist das Flugrohr für die Clusterionen gekrümmt mit einem Radius von 17,5 m. D.h. wenn man nun das B-Feld variiert, dann kommen immer gerade diejenigen Clusterionen durch, deren Masse und Geschwindigkeit gerade so ist, daß sie bei dieser Magnetfeldstärke eine Flugbahn mit Radius $r = 17,5$ m haben.

In Abb.4-12 sind Massenspektren von $(\text{Ar})_N^+$ Clusterionen gezeigt, die mit einem Time-of-Flight-Spektrometer aufgenommen wurden [Stol1998]. In Abb.4-13 sind „Ionenstromspektren“ von $(\text{CO}_2)_N^+$ Clusterionen abgebildet, die mit dem Sektormagneten aufgezeichnet wurden. Für Stagnationsdrücke bei 2 bar, 4 bar und 6 bar und einem Düsendurchmesser von 200 μm ergeben sich hier sehr breite Massenverteilungen. Diese Breite läßt sich über die bewußt sehr schlechte Massenauflösung des Sektormagneten erklären – schließlich soll ja nicht massensepariert gesputtert werden. Schließlich ist in Abb.4-14 die mittlere Clustermasse in Abhängigkeit vom Stagnationsdruck p_0 nach Hagena abgebildet und die experimentellen Meßpunkte mittlerer Clustermassen eingezeichnet. Die Übereinstimmung ist im Rahmen der Fehlerannahmen gut, d.h. man kann die Clustermasse beim Clustersputtern über den Stagnationsdruck gemäß dem Skalierungsgesetz nach Hagena kontrollieren. In Abb.4-15 schließlich als ergänzende Charakterisierung der Apparatur noch der Clusterionenstrom I_{Cluster} gegen den Stagnationsdruck aufgetragen. I_{Cluster} wächst mit dem Stagnationsdruck p_0 bzw. der Clustergröße. Anschaulich kann man sagen, daß sich schwere Clusterionen besser gegen den Hintergrundgasdruck durchsetzen.

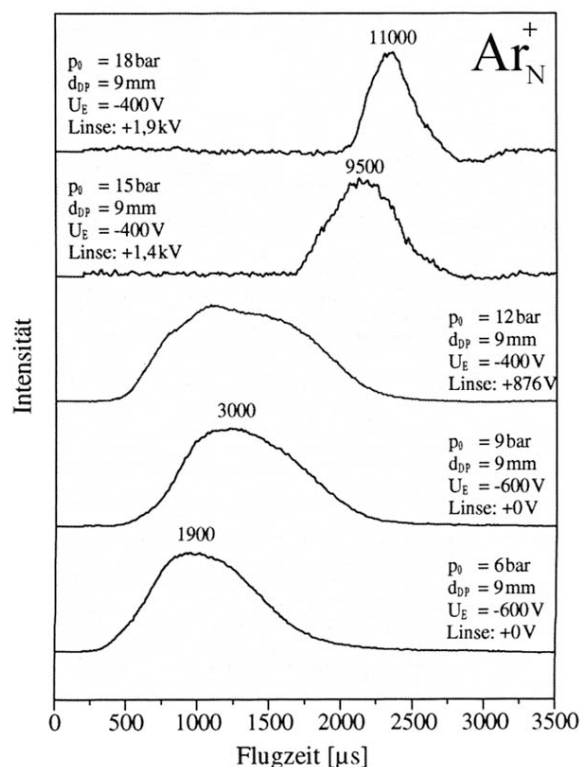


Abb.4-12: Time-of-Flight-Massenspektren von Argonclusterionen. Die Massenbreite ist im Falle der drei oberen Spektren für $p_0 = 12$ bar, 15 bar, 18 bar künstlich verringert, da eine Linse als Energiefenster wirkt [Stol1998].

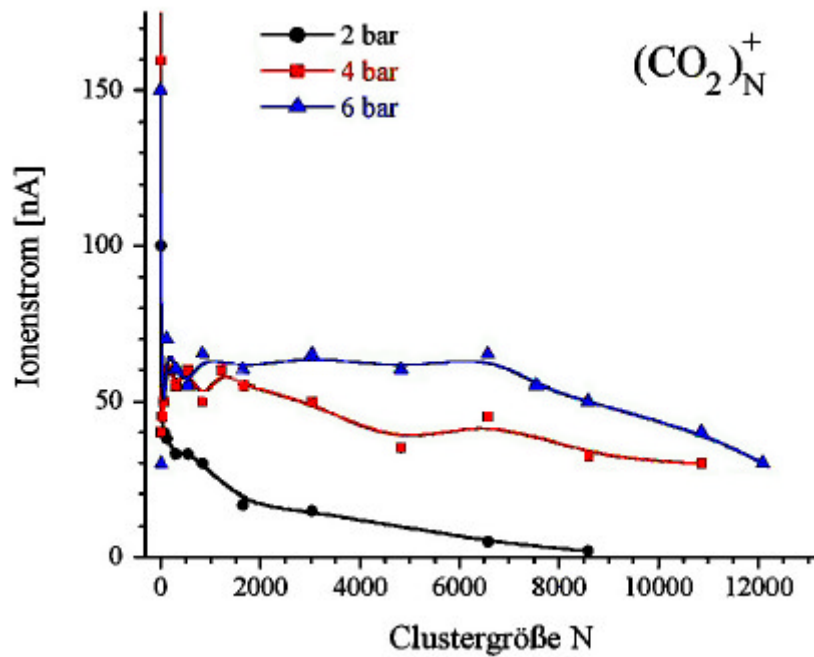


Abb.4-13: „Ionenstromspektren“ von $(\text{CO}_2)_N^+$, mit dem Sektormagneten aufgenommen. Für Stagnationsdrücke 2 bar, 4 bar und 6 bar und einen Düsendurchmesser von $200\mu\text{m}$ ergeben sich hier sehr breite Massenverteilungen, weil die Massenauflösung des Sektormagneten bewußt sehr schlechte ist – es soll ja nicht massensepariert gesputtert werden.

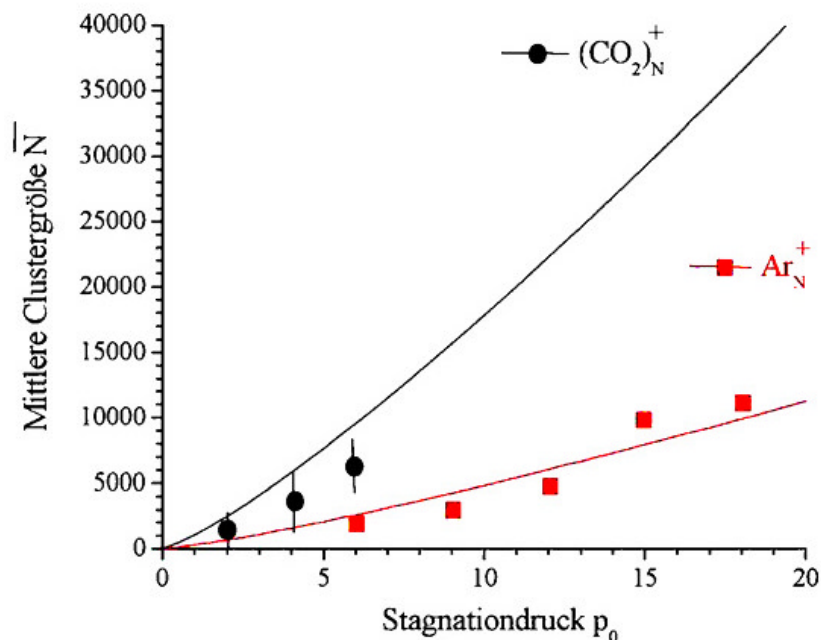


Abb.4-14: Abhängigkeit der mittleren Clustergröße \bar{N} vom Stagnationsdruck p_0 . Das Skalierungsgesetz nach Hagen ergibt durchgezogene Linien. Für Argon ist der Fall einer $100\mu\text{m}$ Düse mit 30° Öffnungswinkel dargestellt, für CO_2 der Fall einer $200\mu\text{m}$ Lochdüse. Zum Vergleich sind Meßpunkte aus den TOF-Massenspektren für Argon (Abb.4-12) und den Ionenstromspektren für Kohlendioxid (Abb.4-13) eingetragen.

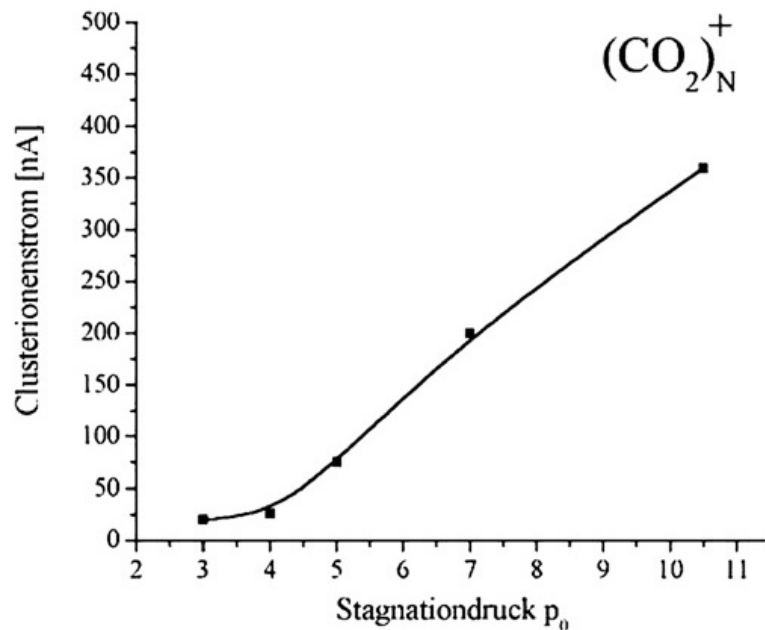


Abb.4-15: Clusterionenstrom für $(\text{CO}_2)_N^+$ in Abhängigkeit vom Stagnationsdruck p_0 bei einer Düsenöffnung von $200 \mu\text{m}$.

4.2.4 Sputterkammer

In der Sputterkammer (Abb.4-6) befindet sich das Target, welches mit Clusterionen gesputtert werden soll. Die Kammer hat die Form eines Topfes, kreisrund mit einem Durchmesser von 60 cm. Das Target wird an einem Manipulator befestigt, der eine vertikale Positionierung erlaubt.

Der Manipulator ist aus Edelstahl und sitzt auf einem Makrolonflansch, welcher vakuumdicht ist und den Manipulator elektrisch gegenüber der restlichen geerdeten Sputterkammer isoliert. Indem der Manipulator auf eine Hochspannung bis zu -60 kV gelegt wird, wird das Target ebenfalls auf dieses Potential gehoben und ist damit für die Beschleunigung der Clusterionen hinter der Blende verantwortlich. Da die Energie der Clusterionen aus der Beschleunigung über die Ionenoptik vergleichsweise gering ist, wird als Sputterenergie nur die Energie der Endbeschleunigung angesetzt. Aus Sicherheitsgründen ist der Manipulator von einem Faraday-Käfig umgeben. Öffnet man die Käfigtür, dann schaltet sich sofort das Hochspannungsnetzgerät ab.

Der Clusterionenstrom muß für Bestimmung der Sputterdosis bekannt sein. Er wird mit einem Pikoampèremeter gemessen, bevor das Target auf Hochspannung gelegt wird. Das Pikoampèremeter ist direkt mit dem Target verbunden und liegt selber auf Führungsröhrenpotential.

5 Analysewerkzeuge

In dieser Arbeit geht es um die Bestimmung der Mikrorauigkeit von Oberflächen und um die Messung von Materialabtragsraten bzw. die Sputteryield beim Clustersputtern. Dafür ist es notwendig, die Oberfläche auf einer Mikrometerskala abzubilden und das gesputterte Materialvolumen zu bestimmen.

Das Sputtervolumen läßt sich mit Hilfe eines Interferometers messen, während man zur Abbildung der Oberfläche und Bestimmung der Mikrorauigkeit ein Raster-Kraft-Mikroskop (Atomic Force Microscope) verwenden kann. Um zu untersuchen, ob beim Sputterprozeß, insbesondere beim Sputtern mit $(\text{CO}_2)_\text{N}^+$ Clusterionen, Kohlenstoff oder andere Elemente im Sputterbereich implantiert bzw. chemisorbiert werden, war es weiter in mehreren Fällen sinnvoll, mit Hilfe von Röntgenlicht-Photoelektronenspektroskopie eine Elementanalyse im Sputterbereich durchzuführen. Diese drei Analysewerkzeuge sollen nun im Detail vorgestellt werden[⊗].

5.1 Interferometrie

Das Interferometer, welches im Rahmen dieser Arbeit benutzt wurde, ist ein Fizeau-Interferometer. Man läßt kohärente Lichtstrahlen, die einerseits an der Probe und andererseits an einer für Licht halbdurchlässigen planen Referenzplatte reflektiert werden, interferieren. Das entstehende Interferenzmuster gibt dann Auskunft über Abweichungen der Probe von einer planen Oberfläche, es werden Vertiefungen und Erhebungen sichtbar.

5.1.1 Funktionsweise eines Fizeau-Interferometers

Probe und Referenz-Platte des Fizeau-Interferometers sollen einen Winkel α einschließen (Abb.5-1). So ergibt sich ein Gangunterschied h zwischen den an den Grenzflächen reflektierten Lichtstrahlen. Für eine Lichtwellenlänge λ erhält man bei senkrechtem Lichteinfall genau dann Auslöschung, wenn für Gangunterschied h gilt: $h = (n + 1/2) \cdot \lambda/2$.

[⊗] Das Interferometer und das Atomkraftmikroskop wurden beide vom Lehrstuhl Prof. Dr. P. Leiderer des Fachbereichs Physik der Universität Konstanz großzügig zur Verfügung gestellt. Die Photoelektronenanalyse wurde in der AG Prof. Dr. G. Ganteför von Herrn Dipl.-Phys. M. Grass durchgeführt.

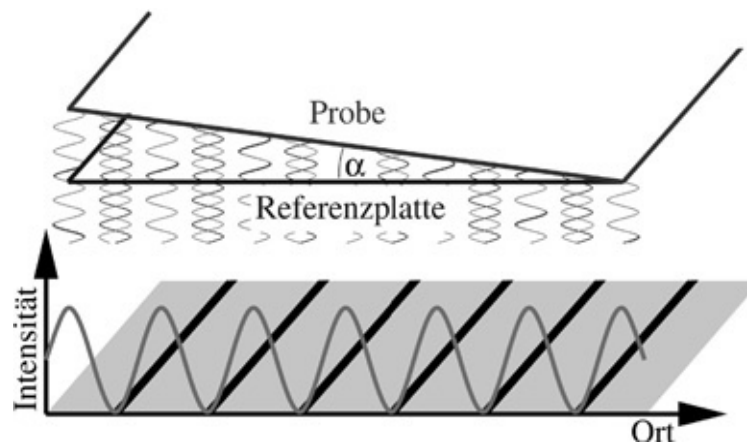


Abb.5-1: Fizeau-Interferenz [Gerh2000].

Die Interferenzstreifen, die sich ausbilden, stellen quasi „Höhenlinien“ dar, welche die Punkte mit gleichem Gangunterschied h verbinden. Der Höhenunterschied zwischen zwei Interferenzlinien beträgt $\Delta h = \lambda/2$. Bei Verwendung von weißem Licht bilden sich farbige Streifen, da der Gangunterschied von der Wellenlänge λ abhängt. Im Falle des in dieser Arbeit verwendeten Interferometers wird mit monochromatischem Licht, d.h. der grünen Thallium-Spektrallinie der Wellenlänge $\lambda = 535 \text{ nm}$ gearbeitet

Der schematische Aufbau des Interferometers ist in Abb.5-2 zu sehen. Eine Thallium-Spektrallampe (1) strahlt Licht der Wellenlänge $\lambda = 535 \text{ nm}$ ab. Ein Kollektor (2) bündelt das Licht und lenkt es auf eine Aperturblende (3). Die Aperturblende befindet sich im Brennpunkt eines Objektivs (5), so daß das Licht die Referenzplatte (6) parallel durchleuchtet und auf den „Prüfling“ (7) bzw. die Probe (in unserem Falle der Siliziumwafer) trifft. Das Licht wird sowohl vom Siliziumwafer als auch von der Referenzplatte reflektiert. Die reflektierten Lichtstrahlen interferieren. Das Interferenzbild und die Oberfläche des Siliziumwafers werden durch ein weiteres Objektiv (8) über einen Spiegel (4) im Okular (9) scharf abgebildet. Mit einer Videokamera und einem entsprechenden Videoprinter kann man das Interferenzbild zur weiteren Auswertung konservieren.

Die entstehenden Interferenzmuster lassen Rückschlüsse auf geringfügige Unebenheiten in der Oberfläche zu. In Abb.5-4 ist ein kleiner Überblick gegeben. Das Interferenzmuster für eine ebene Oberfläche z.B. besteht einfach aus parallelen Streifen über das komplette Sehfeld des Interferometers. Im Falle von geringfügigen Unebenheiten, etwa Kratzern auf der sonst ebenen Oberfläche, bilden sich kleine Ausbuchtungen an den Interferenzstreifen aus. Im Falle einer perfekten Kugeloberfläche sieht man „Newtonsche Ringe“.

Mit Hilfe der Interferenzbilder kann die Tiefe und Ausdehnung von „Sputterdellen“ festgestellt werden. Die Tiefe Δz berechnet sich als Vielfaches der halben Wellenlänge $\lambda/2$ aus der Breite der Ausbuchtung der Interferenzlinien gemäß:

$$\Delta z = \frac{b}{a} \cdot \frac{\lambda}{2} \quad (5-1)$$

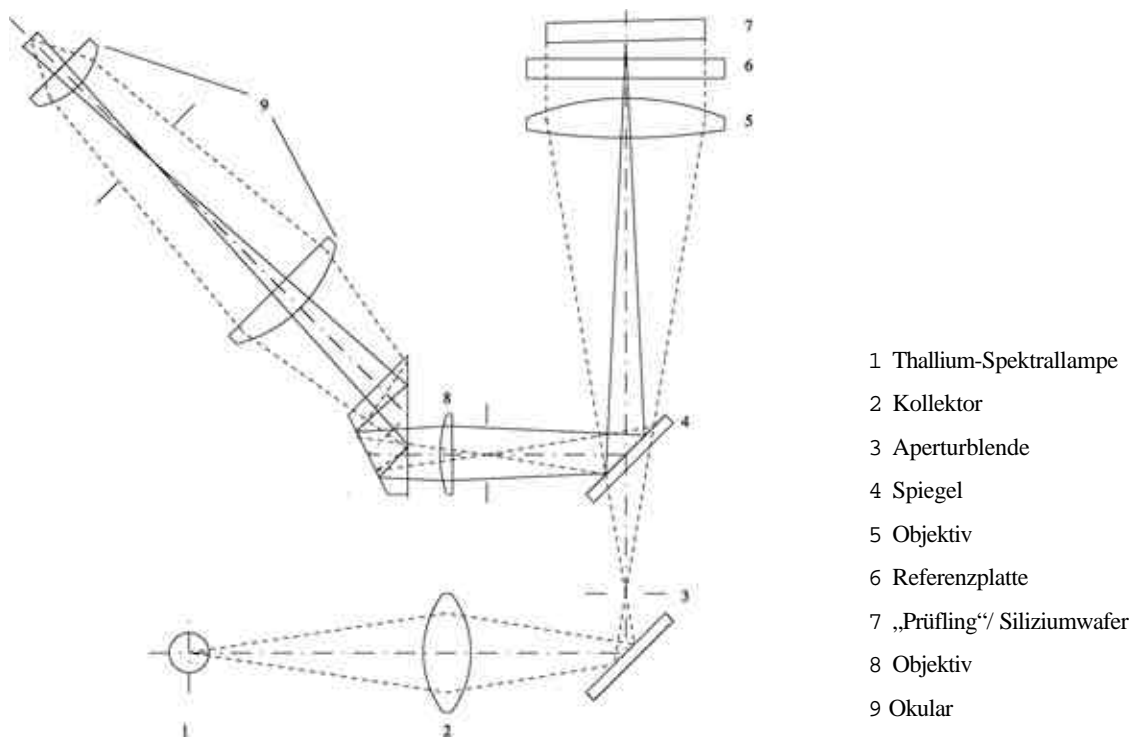


Abb.5-2: Schematischer Aufbau des Interferometers [Gerh2000].

Die Größe b ist hierbei die Breite der Ausbuchtung und a ist der Abstand zwischen zwei parallelen Interferenzstreifen. In Abb.5-3 ist am Beispiel eines typischen Interferenzbildes einer Sputtervertiefung veranschaulicht, wie die Größen a und b abzulesen sind.

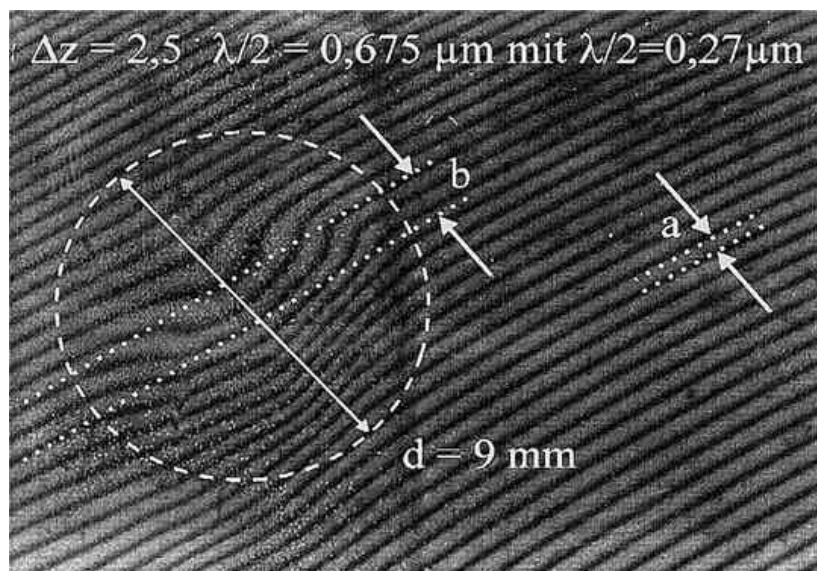


Abb.5-3: Typisches Interferenzbild einer Sputtervertiefung.

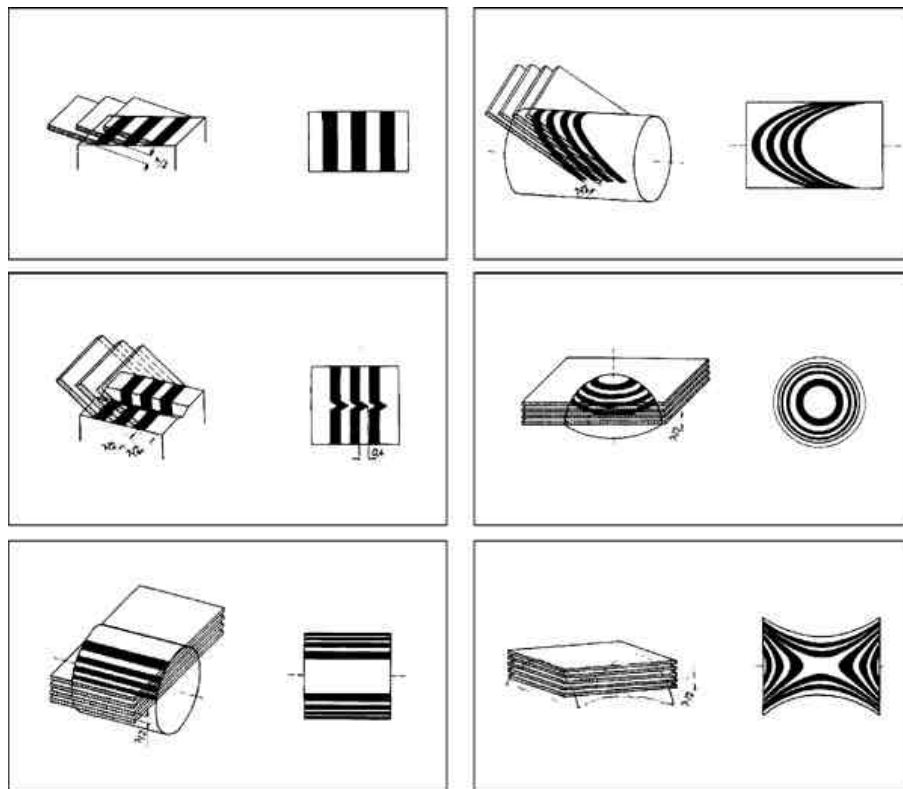


Abb.5-4: Interpretation verschiedener Interferenzmuster (aus: *Gebrauchsanweisung zum Ebenheitsprüfer*, Carl Zeiss, Oberkochen)

5.1.2 Bestimmung der Sputteryield

Die Sputteryield Y ist als Anzahl der gesputterten Targetatome pro einschlagendes Clusterion definiert. Zur ihrer Berechnung muß bestimmt werden, wieviel Targetmaterial beim Aufprall wievieler Clusterionen gesputtert wurde. Aus dem Interferenzbild kann man zunächst einmal auf das weggesputterte Targetvolumen schließen. Vereinfachend wurde in unserem Fall die Sputtervertiefung als Hälfte eines Ellipsoids bzw. meist einer Kugel angenommen. So berechnet sich das Sputtervolumen im Falle einer kreisrunden Vertiefung als:

$$V_{\text{Sput}} = \frac{2\pi}{3} \cdot \left(\frac{d}{2}\right)^2 \cdot \Delta z = \frac{\pi}{6} \cdot d^2 \cdot \Delta z \quad (5-2)$$

Aus dem Sputtervolumen kann man auf die Anzahl N_{Sput} der insgesamt gesputterten Target-Atome schließen:

$$N_{\text{Sput}} = V_{\text{Sput}} \cdot \rho \cdot \frac{N_A}{m_{\text{Mol}}} \quad (5-3)$$

Hier steht ρ für die Dichte des Targetmaterials und m_{Mol} für die Molmasse. Im Falle der untersuchten Siliziumwafer ist $\rho_{\text{Silizium}} = 2,33 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ und $m_{\text{Mol, Silizium}} = 28 \text{ g}$. N_A steht für die Avogadro-Konstante und hat den Wert $6,02 \cdot 10^{23} \text{ Mol}^{-1}$.

Zur Berechnung der Sputteryield Y fehlt nun nur noch die Clusterionenanzahl N_{Cluster} . Diese leitet man leicht aus dem Clusterionenstrom I_{Sput} und der Sputterdauer Δt_{Sput} ab:

$$N_{\text{Cluster}} = \frac{I_{\text{Sput}} \cdot \Delta t_{\text{Sput}}}{1.6 \cdot 10^{-19} \text{ C}} \quad (5-4)$$

Die Sputteryield Y ergibt sich nun als Quotient aus N_{Sput} und N_{Cluster} :

$$Y = \frac{N_{\text{Sput}}}{N_{\text{Cluster}}} = \frac{\pi}{6} \cdot \frac{\rho \cdot N_A}{m_{\text{Mol}}} \cdot \frac{d^2 \cdot \Delta z}{I_{\text{Sput}} \cdot \Delta t_{\text{Sput}}} \quad (5-5)$$

Bei der Berechnung der Ionendosis D , also der Zahl der am Target ankommenden Clusterionen pro Fläche A_{Sput} , gilt es einige Überlegungen zu A_{Sput} anzustellen:

1. Mit der Variation der Ionendosis verändert sich die Größe bzw. Fläche der Sputtervertiefung $A_{\text{Sputtervertiefung}}$ - für viele experimentelle Parameter entsteht keine interferometrisch nachweisbare Vertiefung.
2. Die Ionendichte im Clusterionenstrahl ist mit Sicherheit nicht homogen. Allerdings ließ sich anhand einer gesputterten Kolloidmaske schon für eine geringe Ionenbestrahlung mittels eines Lichtmikroskops ein ziemlich scharfer Sputterfleckrand feststellen. Der Durchmesser dieses Sputterflecks betrug $0,6 \text{ cm}$ und ist unabhängig vom angerichteten „Schaden“ am Target. Die Bezugsfläche wäre hier also $A_{\text{Sputterfleck}} = 0,3 \text{ cm}^2$.
3. Trägt man die Sputteryield Y im Vergleich einmal bezogen auf die Sputtervertiefungsfläche $A_{\text{Sputtervertiefung}}$ auf und einmal für die Sputterfleckfläche $A_{\text{Sputterfleck}}$, ergibt sich für $A_{\text{Sputterfleck}}$ die physikalisch verständlichere Kurve.

Aufgrund dieser Überlegungen scheint die Fläche des Sputterflecks die geeignete Bezugsgröße zu sein, also wählt man $A_{\text{Sput}} = A_{\text{Sputterfleck}} = 0,3 \text{ cm}^2$ und damit berechnet sich die Ionendosis D als:

$$D = \frac{N_{\text{Cluster}}}{0.3 \text{ cm}^2} \quad (5-6)$$

Um eine Größenvorstellung für die Dosis zu geben, sei erwähnt, daß sich die Bestrahlungsdosen in dieser Arbeit zwischen $5 \cdot 10^{12} \text{ Ionen/cm}^2$ und $1 \cdot 10^{17} \text{ Ionen/cm}^2$ bewegen.

5.2 Atomkraftmikroskopie (AFM)

Mit der Erfindung der Rastertunnelmikroskopie (Scanning Tunneling Microscope) durch G.Binnig und H.Rohrer [Binn1982a][Binn1982b][Binn1983] begann in der Oberflächenphysik eine neue Ära. Atomare Strukturen auf Festkörperoberflächen konnten erstmals direkt im Ortsraum abgebildet werden. Die Entwicklung einer ganzen Gruppe von sogenannten Rastersondenmikroskopen wurde angestoßen. Allen diesen Techniken ist gemeinsam, daß die abstandsabhängige Wechselwirkung einer sehr scharfen Spitze mit der Probenoberfläche gemessen wird. Die Spitze tastet die Probenoberfläche Zeile für Zeile ab. Im Jahre 1986 wurde von G.Binnig, C.F.Quate und Ch.Gerber [Binn1986] als neues Rastersondenmikroskop dann das Atomkraftmikroskop (Atomic Force Microscope) vorgestellt, welches unter den Derivaten der Tunnelmikroskopie bisher die größte Bedeutung erlangt hat. Der Grund ist einfach: das AFM ist eine vielseitig einsetzbare Technik. Die Leitfähigkeit der Probe spielt keine Rolle, weshalb es möglich ist, vielfältigste Systeme zu untersuchen. So ermöglicht das AFM erstmals die Abbildung biologischer Systeme in ihrer natürlichen physiologischen Umgebung auf der nm-Skala. Es wird möglich, Prozesse auf molekularer Skala mit der Zeitauflösung des jeweiligen Instruments (bis hinunter zu 1-2 Bildern pro Sekunde) abzubilden. Kleine Organismen, wie lebende Zellen und Prozesse auf deren Membran können studiert werden. Das AFM ist also in den verschiedensten Forschungsgebieten einsetzbar.

Ganz allgemein sind die Informationen, die eine Aufnahme mittels Rastersondenmikroskopie liefern kann, vielfältig. Zunächst einmal ergibt sich die Proben topographie, wobei in Abhängigkeit von der Art der Spitzen-Proben-Wechselwirkung Artefakte bzw. Bildfehler auftreten können und einer eigenen Interpretation bedürfen. Je nach Art der Wechselwirkung zwischen Spitze und Oberfläche kann man aber auch ganz andere Eigenschaften der Probe scannen. Mit dem STM etwa scannt man nicht die Topographie, sondern eigentlich die elektronische Zustandsdichte, die allerdings meist direkt als topographische Information gewertet werden kann. Mit dem AFM kann man außer der Proben topographie z.B. Austrittsarbeiten oder Kontaktpotentiale messen [Zimm1998]. Mit magnetischen Spitzen lassen sich weiter unterschiedlich magnetisierte Bereiche der Probenoberfläche abbilden. Schließlich kann man mit dem AFM auch den chemischen Kontrast abbilden und hydrophile von hydrophoben Bereichen unterscheiden [Bech2000].

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurden Probenoberflächen mit dem AFM abgebildet, um die Mikrorauigkeit zu bestimmen. Die Abbildung von oxidierten Siliziumwaferoberflächen wäre mit dem STM kaum möglich. Zudem ist die Handhabung eines kommerziellen AFM weit weniger aufwendig als die eines STM. Für die Bestimmung von Mikrorauigkeiten im Rahmen dieser Arbeit ist das laterale Auflösungsvermögen eines kommerziellen AFM in jedem Fall ausreichend. Betrieben im Tapping-Mode beträgt dieses für das von uns verwendete di-Nanoscope nach Herstellerangaben 1...5 nm. Hierbei wird berücksichtigt, daß sich mit der Nutzungsdauer der Spitze die Auflösung verschlechtert.

In den folgenden Abschnitten soll zunächst die Funktionsweise eines Atomkraftmikroskops und anschließend das Meßverfahren im Tapping-Mode erklärt werden. Schließlich wird noch beschrieben, wie aus einer AFM-Aufnahme die Mikrorauhigkeit bestimmt und ein Leistungsdichtespektrum extrahiert wird.

5.2.1 Prinzipielle Funktionsweise eines Atomkraftmikroskops

Die Atomkraftmikroskopie (Atomic Force Microscopy) beruht nun nicht mehr auf dem quantenmechanischen Tunneleffekt, wie das beim STM der Fall ist, sondern nutzt die attraktiven oder auch repulsiven Kräfte, die zwischen einer Spitze und einer Probenoberfläche wirken. Die Leitfähigkeit der Probenoberfläche spielt keine Rolle. Die Spitze ist an einem elastischen Balken, einer Blattfeder („Cantilever“) befestigt. Im Vergleich zum STM wird beim AFM nicht die Spitze über die Probe bewegt, sondern die Probe an der Spitze vorbeigeführt. Um die Topographie der Probenoberfläche zu erschließen, mißt man die Auslenkung des Cantilevers.

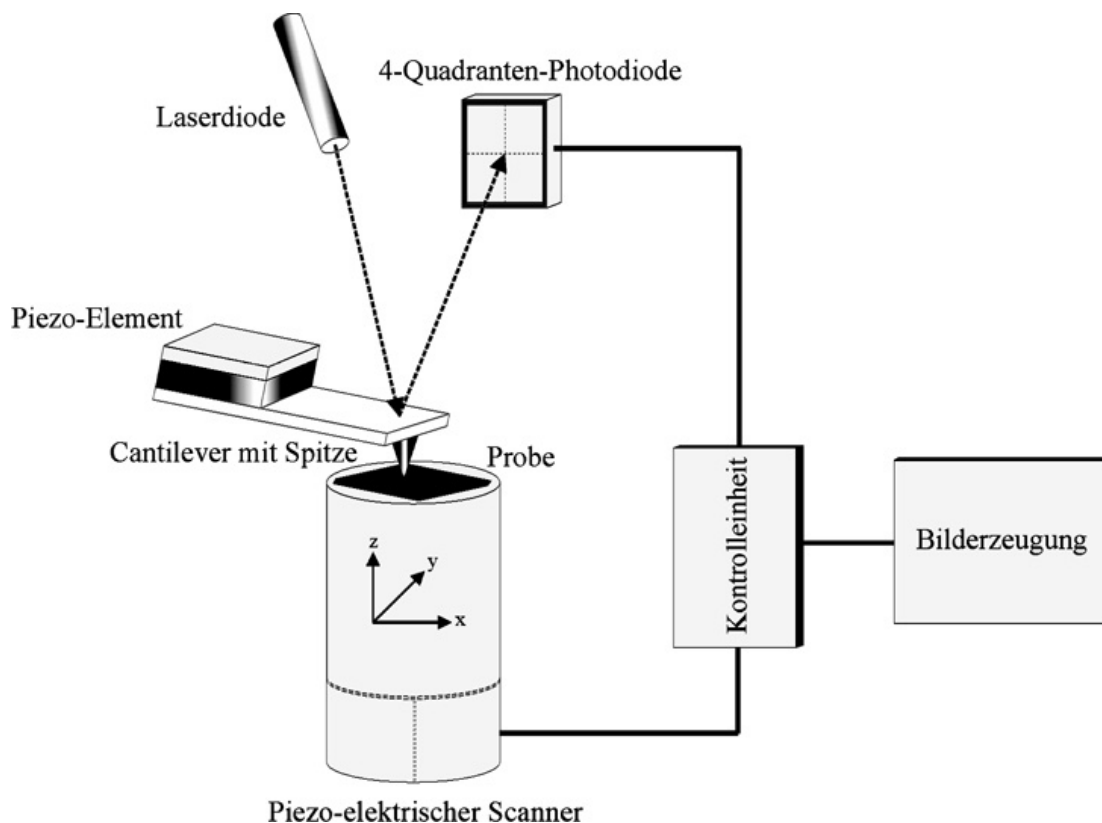


Abb.5-5: Prinzipskizze zur Funktionsweise eines AFM.

Die Erfinder des AFM, G.Binnig et al., detektierten die äußerst geringe Auslenkung von Cantilever bzw. Spitze über ein STM [Binn1986]. Mittlerweile aber haben sich verschiedene optische Detektionsmethoden durchgesetzt, insbesondere seit es Laserdioden gibt. Die Prinzipskizze in Abb.5-5 zeigt eine optische Detektionsmethode, bei der der Lichtstrahl einer Laserdiode auf den Cantilever im Bereich der Spitze gerichtet ist und das reflektierte Licht in einer Vier-Quadranten-Diode nachgewiesen wird. Von der Position des Cantilevers bzw. der Spitze hängt es ab, wieviel Intensität des Lichtsignals in welchem Bereich der Diode auftrifft. Diese Information wird in einen elektrischen Regelkreis eingespeist und in einer Kontrolleinheit einerseits in topographische Information umgesetzt und andererseits zur weiteren Steuerung der Probe im Bezug auf Cantilever bzw. Spitze genutzt. Der Scanner, der die Probe unter der Spitze wegbewegen soll, ist über drei piezoelektrische Elemente realisiert, die eine Bewegung der Probe in alle drei Raumrichtungen erlaubt, wobei die z-Richtung nur der Feinabstimmung dient. Die Grobannäherung der Probe an die Spitze erfolgt über eine Spindel mit Schrittmotor. Zur Anschauung ist in der folgenden Skizze ein AFM-Meßkopf abgebildet.

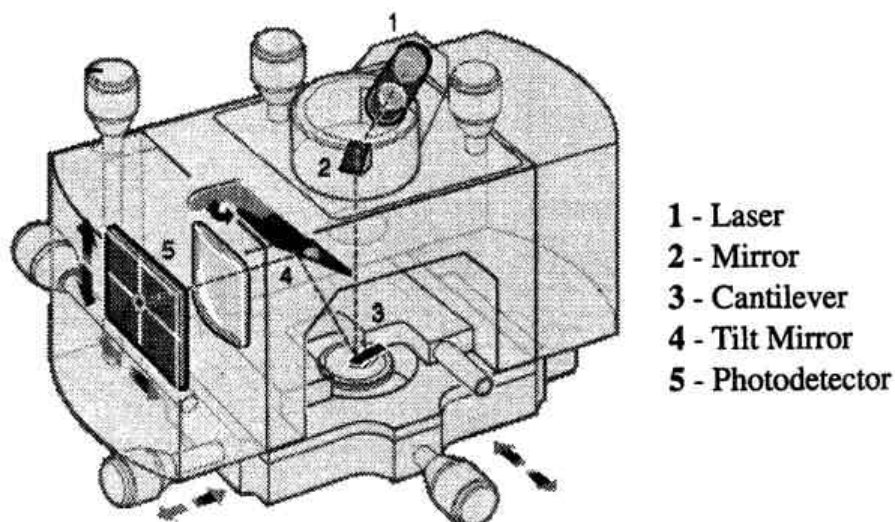


Abb.5-6: AFM-Meßkopf [Digi1997].

5.2.2 Physikalische Konzepte der Kraftmikroskopie

Auf den ersten Blick ist die Methode der Kraftmikroskopie ausgesprochen einfach. Die physikalischen Konzepte allerdings, welche die zweifellos erstaunliche Leistungsfähigkeit des Instruments ermöglichen, sind denkbar kompliziert. Hier soll nun erläutert werden, welche Arten der Wechselwirkung auftreten. Dabei ist zu diskutieren, welche dieser auftretenden Kräfte für den Bildkontrast notwendig sind und welche als Hintergrundkräfte zu betrachten sind und sich gegebenenfalls störend auswirken.

Alle Kräfte, die bei einer Annäherung von Spitze und Probe bis hinunter zu einer Distanz von 1Å auftreten, sind als rein elektromagnetische Wechselwirkungen einzuordnen. Im weiteren ist es aber sinnvoll, die Unterscheidung zwischen den kurzreichweitigen, den mittelreichweitigen und den langreichweitigen Kräften zu treffen.

Die kurzreichweitigen Kräfte entstehen beim direkten Überlapp der Elektronenhülle des Spitzen-Atoms mit der Elektronenhülle eines Oberflächenatoms. Ihre Reichweite ist scharf begrenzt und beträgt nur wenige Ångström. Der Großteil der auftretenden kurzreichweitigen Kräfte hat repulsiven Charakter. Sie resultieren zunächst aus dem Überlapp der Elektronenhüllen. Einen Beitrag liefert allerdings auch die Coulombabstoßung der positiven Atomkernladungen des Spitzen-Atoms auf der einen Seite und der Oberflächenatome auf der anderen Seite. Letztere entsteht aufgrund der Deformation der Elektronenhüllen, die die Kernladungen nicht vollständig abschirmen.

Die mittelreichweitigen Kräfte haben vorwiegend attraktiven Charakter. Sie haben eine mittlere Reichweite von 10 bis 100 Ångström. Die diesen Kräften zugrundeliegenden Wechselwirkungen involvieren eine „Handvoll“ Atome, vielleicht einige 10 auf der Spitze, der Probe und in einem etwaigen Medium dazwischen. Die Beschreibung dieser Kräfte erfordert die Betrachtung eines Vielteilchensystems und kann beliebig kompliziert werden.

Die langreichweitigen Kräfte beruhen auf Van-der-Waals-, elektrostatischen oder magnetischen Wechselwirkungen zwischen Spitze und Probe. Ihre Reichweite beträgt mehrere hundert Ångström und ist im Gegensatz zu den kurzreichweitigen Kräften nicht scharf begrenzt. Weiter ist hier noch zu erwähnen, daß sich z.B. bei Messungen an Luft zwischen Spitze und Probe eine Flüssigkeitsbrücke ausbilden kann, welche zu zusätzlichen langreichweitigen attraktiven Kapillarkräften führt.

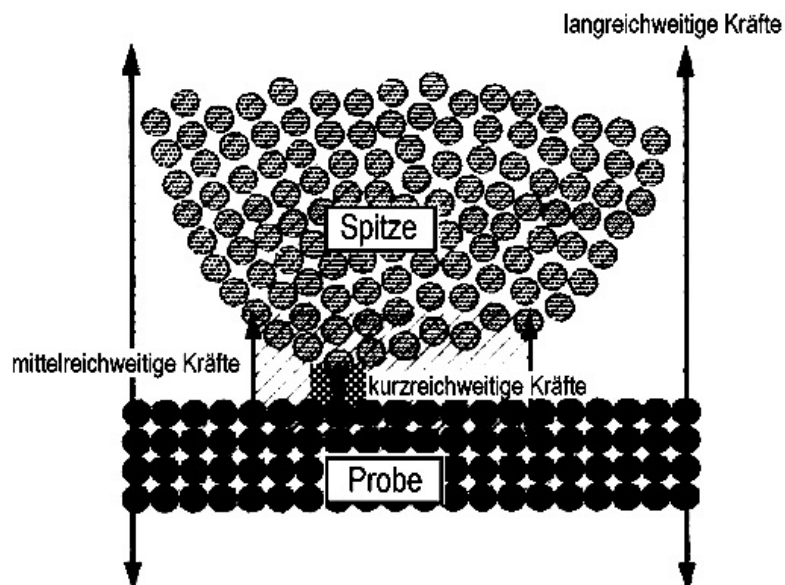


Abb.5-7: Schematische Modellvorstellung für die drei Kategorien an auftretenden Kräften zwischen AFM-Spitze und Probe [Ohne1994].

Zum Schluß ist hier noch zu beschreiben, inwieweit diese unterschiedlichen Kräfte zum Problem werden können. Im Contact-Mode, der zunächst eine atomare Bildauflösung verspricht, wird die Bildinformation aus den repulsiven kurzreichweitigen Kräften gewonnen. Diesen überlagert sind die weiterhin vorhandenen langreichweitigen, meist attraktiven Kräfte, die lateral invariant sind und an welchen typischerweise „makroskopische“ Bereiche der Spitze und der Probe mit einer Ausdehnung von bis zu 100 Ångström beteiligt sind. Die Kräfte tragen zum Bildkontrast als Hintergrundkräfte nicht bei und stören nicht, solange ihr Kraftgradient die Federkonstante des Cantilevers in keinem Spitze-Probe-Abstand überschreitet. Nur dann ist es möglich, sie durch eine Vorspannung des Cantilevers zu kompensieren und zu verhindern, daß die Blattfeder an die Probe heranschnappt. Verwendet man, um das „Hinschnappen“ der Spitze zu verhindern, Federn mit ausreichender Härte, muß man im Gegenzug einen Verlust im Bereich des Kraftauflösungsvermögens in Kauf nehmen. Richtig kompliziert wird die Frage der Kompensation der Hintergrundkräfte, wenn attraktive Kräfte mittlerer Reichweite mitberücksichtigt werden müssen. Eine detaillierte Diskussion dieses Problems würde hier allerdings zu weit führen.

Mit dem Betriebsmodus des Atomkraftmikroskops wird entschieden, welche Kräfte bildgebend sind und inwieweit die übrigen Hintergrundkräfte kompensiert werden müssen. Im nächsten Abschnitt wird der im Rahmen der vorliegenden Arbeit verwendete sog. „Tapping“-Betriebsmodus vorgestellt. Die wesentlichen theoretischen Aspekte der Kraftmikroskopie sind im Detail in [Ohne1994] beschrieben.

5.2.3 Messung im Tapping-Mode

Der „Tapping“-Betriebsmodus ist eine der neuesten Entwicklungen in der Rasterkraftmikroskopie [Zhon1993][Hans1994][Putm1994]. Der Tapping-Mode bietet wesentliche Vorteile gegenüber dem Contact-Mode. So spielen beim Tapping-Mode laterale Kräfte keine Rolle, während diese gerade beim Contact-Mode zu Bildverzerrungen führen können. Außerdem kann man im Tapping-Mode zuverlässig eine hohe laterale Auflösung von 1 nm bis 5 nm erreichen. Der Möglichkeit des Contact-Mode, daß im Gegensatz zum Tapping-Mode auch besonders rauhe Oberflächen genau vermessen werden können, ist im Rahmen dieser Arbeit zu ultraglaten Oberflächen nicht erforderlich.

Der „Tapping“-Betriebsmodus mischt zwei Meßmethoden: die sog. AC-Technik mit dem Contact-Mode. Die AC-Technik wird für Messungen im attraktiven Spitze-Probe-Wechselwirkungsbereich genutzt. Der Cantilever mit der AFM-Spitze befindet sich hier bei einem Abstand z von 50 Å bis wenigen 100 Å (stark abhängig vom umgebenden Medium) von der Probe in einem stabilen Kräftegleichgewicht. Die gesamte Spitze und auch ihr äußerstes Ende spürt eine attraktive Kraft, die als langreichweitige Kraft im Wesentlichen auf der Van-der-Waals- und der elektrostatischen Wechselwirkung beruht. Da das attraktive Wechselwirkungspotential, wie Abb.5-8 zeigt, an dieser Stelle sehr flach verläuft, wird der Cantilever von Abstandsschwankungen nur wenig beeinflusst. Diesem Problem tritt man mit der AC-Technik entgegen: Der Cantilever wird extern über einen Piezo zu Schwingungen etwa mit seiner Resonanzfrequenz ω_0 angeregt, welche sich durch

Überlagerung des harmonischen Federpotentials mit dem lokalen Wechselwirkungspotential zu einem Wert ω_0^* verschiebt. So wird also die Resonanzfrequenz $\omega_0^*(x,y)$ des Cantilevers eine Funktion der Position (x,y) der Spitze über der Probe und trägt somit die Topographieinformation. Die Resonanzverschiebung wird über die Amplitudenschwankungen und die Phasenverschiebungen der Cantilever-Schwingung gemessen. Außerdem ist das Signal-Rausch-Verhältnis bei der AC-Technik gegenüber der direkten Messung der Auslenkung des Cantilevers drastisch erhöht, da die Messung der Schwingungsamplitude mit einer kleinen Bandbreite von wenigen kHz um eine Resonanzfrequenz von wenigen 100 kHz erfolgt. Störsignale, die meist in Frequenzbereichen von weit unter 100 kHz auftreten, werden eliminiert.

Die Kombination von AC-Technik und Contact-Mode besteht beim „Tapping“-Betriebsmodus nun darin, daß der Cantilever mit ihrer Resonanzfrequenz zu Schwingungen ange regt wird, der Spitze-Probe-Abstand aber so eingerichtet ist, daß die Spitze ganz leicht auf der Probe aufschlägt. Große Amplituden (bis zu 100 nm) verschaffen dem Cantilever genügend Energie, um die Adhäsionskräfte zu überwinden. Die Topographie-Information steckt nun entweder in der mittleren Auslenkung oder in der Amplitude der oszillierenden Feder. Der Tapping-Mode ist der kontaktfreien AC-Technik durch ihre bessere vertikale Auflösung überlegen und ebenso dem reinen Contact-Mode dank der Eliminierung der Lateralkräfte durch die Probenberührung.

Im Tapping-Mode läßt sich der Cantilever als nicht-linearer gedämpfter Oszillator beschreiben (vgl. Abb.5-9). Die Bewegungsgleichung sieht wie folgt aus:

$$m \ddot{z} = -k_c z - \frac{1}{Q} m \dot{z} + F_0 \cdot \cos \omega t + F(z, z) \quad (5-7)$$

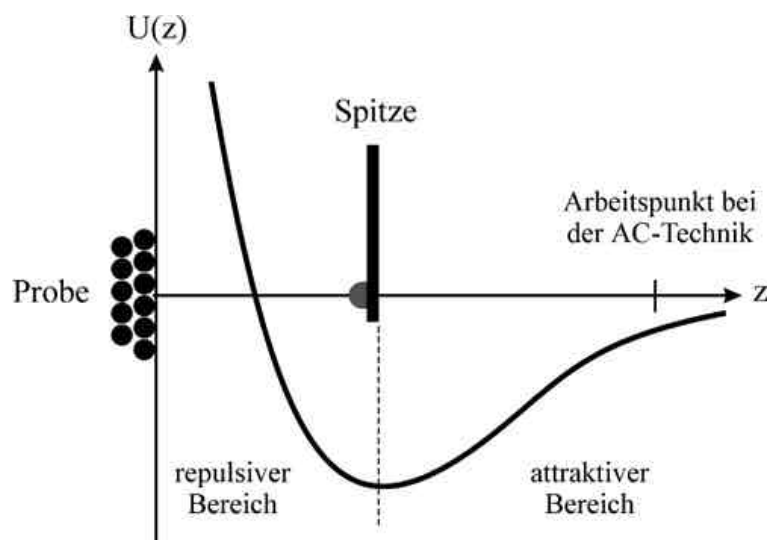


Abb.5-8: Wechselwirkungspotential $U(z)$ in Abhängigkeit von Abstand z zwischen Spitze und Probe [Ohne1994].

Die Ortsvariable z ist entsprechend Abb.5-9 gewählt. Die Konstante m steht für die Masse des Cantilevers mit AFM-Spitze, k_c für die Federkonstante, ω_0 für die Resonanzfrequenz und Q der sog. Qualitätsfaktor, der das Medium berücksichtigt, in dem das System schwingt. Mit $[F_0 \cdot \cos \omega t]$ ist in Gleichung (5-7) berücksichtigt, daß der Cantilever extern über ein Piezo-Element in eine Schwingung nahe der Resonanz ω_0 versetzt wird. Die Wechselwirkung zwischen Spitze und Probe geht in die Bewegungsgleichung als $F(z_c, z)$ ein und hängt sowohl von der Gleichgewichtslage der Spitze über z_c als auch von der Ortsvariablen z ab, die die Position der Spitze angibt.

Wie der Wechselwirkungsterm $F(z_c, z)$ aussieht, hängt davon ab, ob der Abstand s der Spitze von der Oberfläche kleiner oder größer als der mittlere Atomabstand a_0 ist. Solange die Spitze nicht auf der Probe „aufschlägt“ ($s > a_0$), ist die Van-der-Waals-Wechselwirkung maßgebend. Ist Abstand s kleiner als der mittlere Atomabstand a_0 , wird die zusätzliche repulsive Kraft über das Hertz'sche Modell in erster Näherung abgeschätzt [Tama1996] [Isra1992]. Für biologische Systeme ist $F(z_c, z)$ um einen von α abhängigen Viskositätsterm zu erweitern.

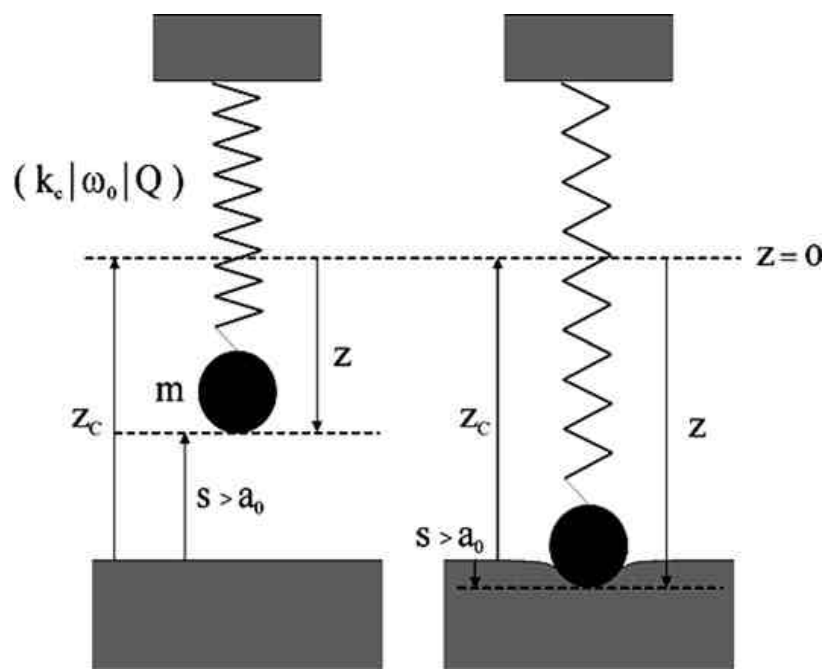


Abb.5-9: Prinzipskizze zur Cantilever-Bewegung im Tapping-Mode. Der Cantilever ist als Feder mit Federkonstante k_c , und Resonanzfrequenz ω_0 und Qualitätsfaktor Q dargestellt. z ist die Position der Spitze. In der Gleichgewichtslage des Cantilevers ist z Null und z_c der Abstand zwischen Spitze und Probe. Mit s wird der Abstand der Spitze von der Probenoberfläche bezeichnet und a_0 ist der mittlere Atomabstand. Weiter ist m die Gesamtmasse des schwingenden Systems aus Cantilever und Spitze [Tama1996].

Zum Schluß bleibt nun noch der Cantilever mit nahezu atomarer Spitze als Herzstück des AFM zu beschreiben. Je nach Betriebsmodus ist der Cantilever, wie bereits beschrieben, unterschiedlich stark wirkenden Kräften, insbesondere auch Hintergrundkräften, ausgesetzt. Deshalb muß der Cantilever eine bestimmte Mindesthärte besitzen. Gleichzeitig sollen aber ultraschwache Kräfte nachgewiesen werden[⊗]. Eine weitere Anforderung an die Abtastfeder ist eine sehr hohe natürliche Resonanzfrequenz, um die Einkopplung äußerer Störungen zu minimieren. Betrachtet man die Definition der Resonanzfrequenz $\omega_0 = \sqrt{k_c/m}$ einer Feder, so erkennt man, daß bei einer festen Mindesthärte k_c des Cantilevers die Resonanzfrequenz nur über die Reduktion der Gesamtmasse m des Systems aus Cantilever und Abtastspitze erhöht und damit optimiert werden kann. Also hält man einfach die Länge des Cantilevers unterhalb von wenigen 100 μm und damit das Gewicht unter 10^{-10} kg [Bukh1997]. Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurden Cantilever mit integrierter Abtastspitze aus unbeschichtetem Silizium verwendet, die ätztechnisch aus Wafern hergestellt werden (sog. TappingMode Etched Silicon Probes, kurz: Modell TESP). Die typischen charakteristischen Parameter für die verwendeten AFM-Spitzen sind:

Federkonstante k_c	20 ... 100 N / m
Resonanzfrequenz w_0	200 ... 400 kHz
Nomineller Spitzenradius	5 ... 10 nm
Cantileverlänge	125 μm
Reflektionsbeschichtung	keine optional Aluminium-Beschichtung

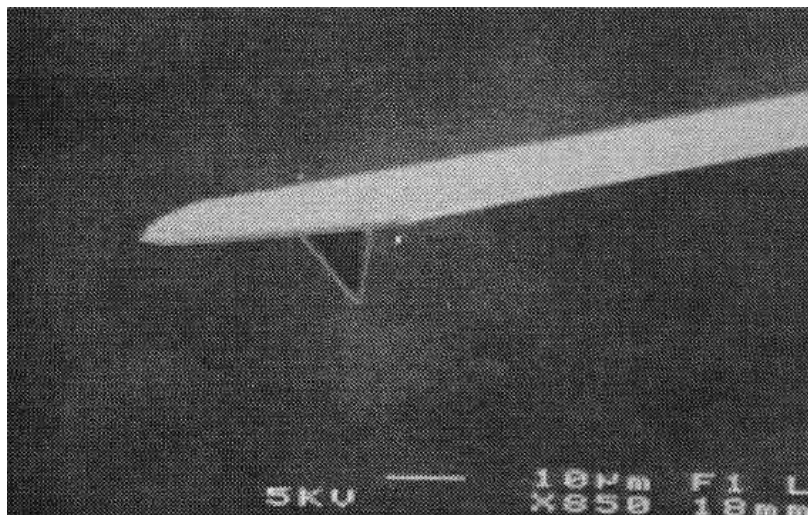


Abb.5-10: Elektronenmikroskopische Aufnahme einer TESP-Spitze [Digi1997]

[⊗] Die mittleren Kräfte zwischen Abtastspitze und Probe liegen an Luft im Bereich von 10^{-7} Newton. Im UHV oder insbesondere in Flüssigkeiten reichen sie hinunter bis 10^{-8} ... 10^{-13} Newton. Um die Größenordnung dieser Kräfte zu veranschaulichen, sei erwähnt, daß beim Plattenspieler die Auflagekräfte der Abtastnadel im Bereich von 10^{-2} Newton liegen.

5.2.4 Bestimmung von RMS-Wert und PSD-Spektrum

In Kapitel 2 wurde ausführlich diskutiert, über welche Parameter man eine optische Oberfläche im Hinblick auf ihre Lichtstreuungs-Eigenschaften am geeignetsten beschreibt. Die im Rahmen der vorliegenden Arbeit untersuchten Probenoberflächen wurden alle mit Hilfe des Atomkraftmikroskops analysiert. Ihre optischen Eigenschaften wurden ausschließlich über den RMS-Wert und das 2-dimensionale Leistungsdichtespektrum (Power Spectral Density - Spektrum) charakterisiert. Der folgende Abschnitt beschränkt sich nun auf die Wiedergabe der Definitionen dieser beiden Mikrorauigkeitsparameter. Ergänzend sind in Abb.5-11 als Beispiele die Mikrorauigkeitsanalysen von drei Proben im Vergleich wiedergegeben.

Der RMS-Wert wird als Standardabweichung von der mittleren Höhe \bar{z} der Bildpixel einer AFM-Aufnahme berechnet [Digi1997]:

$$\text{RMS} = \sqrt{\frac{1}{N} \cdot \sum_{i=1}^N (z_i - \bar{z})^2} \quad \text{mit} \quad \bar{z} = \frac{1}{N} \cdot \sum_{i=1}^N z_i \quad (5-8)$$

Die Bildpixel sind von 1 bis N durchnummeriert. Aus der gerasterten Höheninformation eines AFM-Bildes kann man also direkt den RMS-Wert ableiten. Es ist auch möglich den sog. R_a -Wert als charakterisierende Größe für die Mikrorauigkeit anzugeben. Die Definition lautet [Digi1997]:

$$R_a = \frac{1}{L_x L_y} \cdot \iint_0^{L_x L_y} |h(x, y)| \cdot dx \cdot dy \quad (5-9)$$

Dabei ist $h(x,y)$ die Höhenfunktion der Topographie, nicht aber bezogen auf eine Null-ebene, sondern auf die Mittelebene der Oberfläche mit mittlerer Höhe \bar{z} . Der R_a -Wert ist im Vergleich zum RMS-Wert erfahrungsgemäß im Bereich sehr glatter Oberflächen immer etwa eine Faktor 1.3 kleiner als der RMS-Wert.

Das PSD-Spektrum wird aus einem gepixelten AFM-Bild wie folgt ermittelt [Digi1997]:

$$\text{PSD}(f) = \frac{2D}{N} \left| \sum_{n=1}^{n=N} e^{\frac{i2\pi}{N}(n-1)m} z(n) \right|^2 \quad \text{mit} \quad f = \frac{m}{N \cdot D} \quad \text{und} \quad m = 1 \dots \frac{N}{2} \quad (5-10)$$

Dabei ist D die Auflösung des AFM-Bildes, N die Pixelzahl und $z(n)$ die Höhenfunktion. Der darstellbare Frequenz- bzw. Wellenlängenbereich bei den PSD-Spektren, die aus diskreten Oberflächeninformationen gewonnen werden, ist sowohl nach oben als auch nach unten begrenzt. Eine AFM-Aufnahme liefert als gerastertes Bild diskrete Oberflächeninformationen und unterliegt damit dieser Begrenzung. Die Grenzen liegen bei $f_{\min}=1/(N \cdot D)$ und $f_{\max}=1/(2 \cdot D)$.

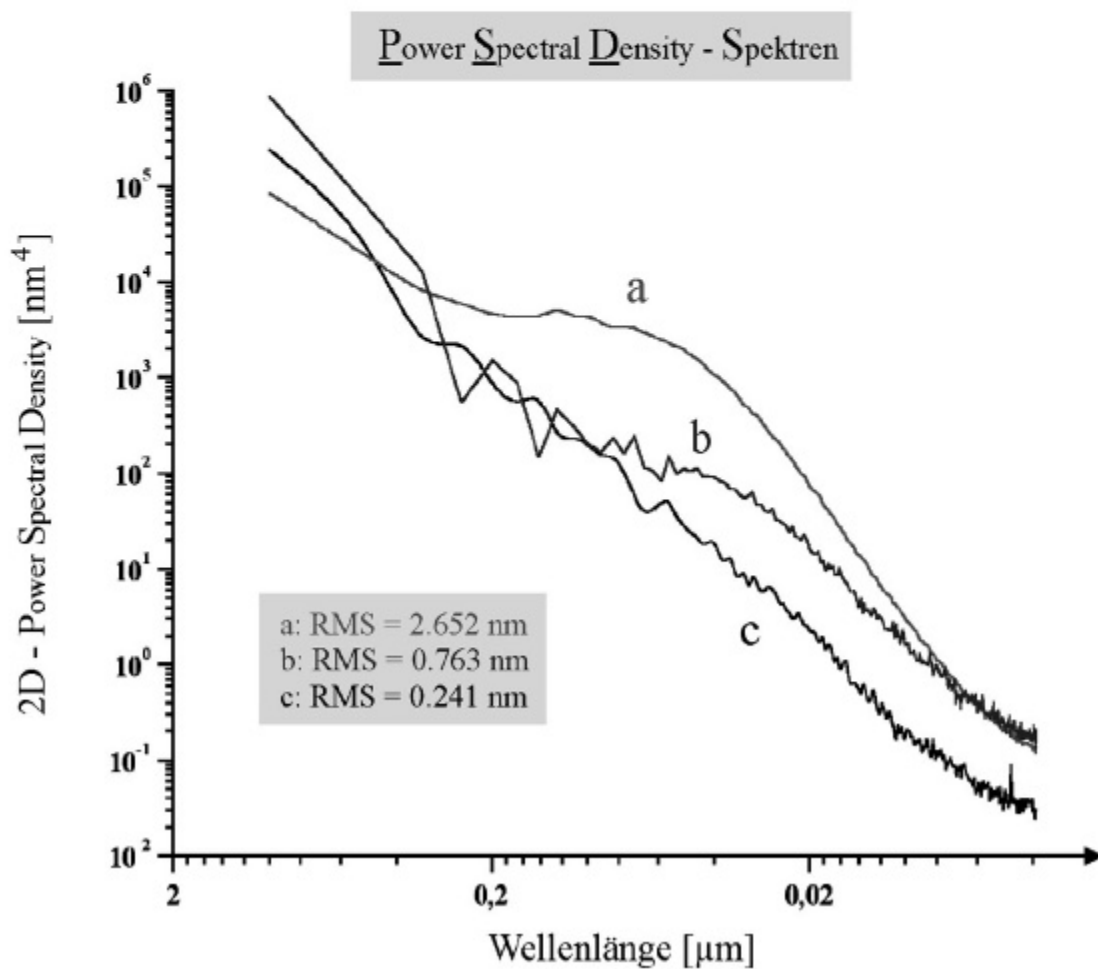
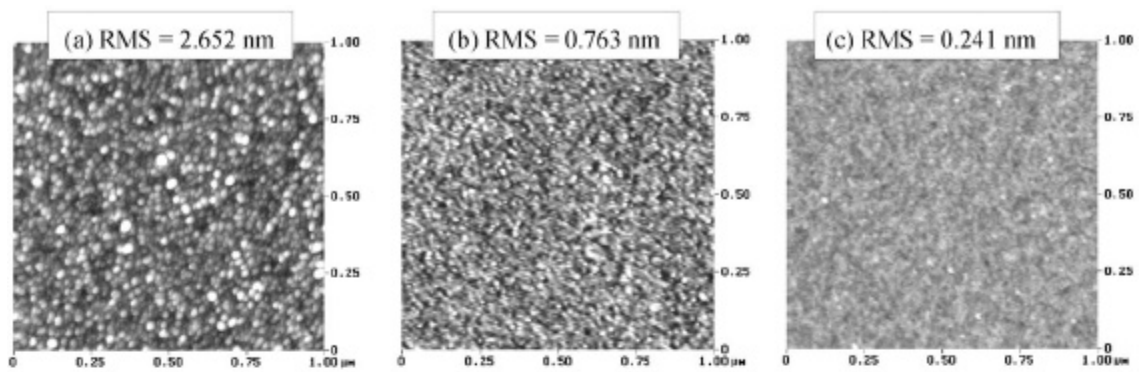


Abb.5-11: AFM-Aufnahmen und 2D-PSD-Spektren (als leicht geglättete Kurven aufgetragen) für verschiedenartig gesputterte Siliziumwafer:
 (a) stark aufgerauht durch Sputtern und Carbidgebildung („Erbsenstruktur“)
 (b) etwas aufgerauht durch Sputtern
 (c) fabrikneu aus der Packung zum Vergleich.

5.3 Photoelektronenspektroskopie (XPS)

Im Rahmen der Experimente zur vorliegenden Arbeit traten Verunreinigungsprobleme auf. Auf gesputterten Siliziumwafern waren Verfärbungen erkennbar. Beim Clustersputterprozeß trat neben einer makroskopisch meßbaren Sputterausbeute zusätzlich eine chemische Veränderung auf. Mit Hilfe von Photoelektronenspektroskopie mit Röntgenlicht (X-Ray Photoelectron Spectroscopy) an solchen Proben wurde eine Elementanalyse durchgeführt und die Beschichtung als fest gebundener Kohlenstoff in Form von Siliziumcarbid identifiziert. Die XPS-Analyse wurde in unserer Arbeitsgruppe, der AG Ganteför, von Herrn Dipl.-Phys. M.Grass durchgeführt [Klip2000]. Im folgenden Abschnitt wird aus Gründen der vollständigen Darstellung das Prinzip der XPS-Analyse beschrieben.

Die Methode der Photoelektronenspektroskopie beruht auf dem Photoeffekt. Dieser tritt auf, wenn ein Festkörper mit Licht der Energie $h\nu$ bestrahlt wird. Dann lösen nämlich die Energiequanten im Festkörper gebundene Elektronen aus. Die kinetische Energie E_{KIN} dieser Elektronen mißt man in einem Spektrometer, um daraus die Bindungsenergie E_{B} abzuleiten:

$$E_{\text{KIN}} = h\nu - E_{\text{B}} - \Phi_{\text{SP}} \quad (5-11)$$

Die Bindungsenergie E_{B} ist dabei im Bezug auf die Fermieenergie E_{FERMI} definiert. Außerdem ist die Austrittsarbeit des Spektrometers Φ_{SP} zu berücksichtigen. Die Fermieenergie ist für Probe und Spektrometer die gleiche, weil beide leitend verbunden sind.

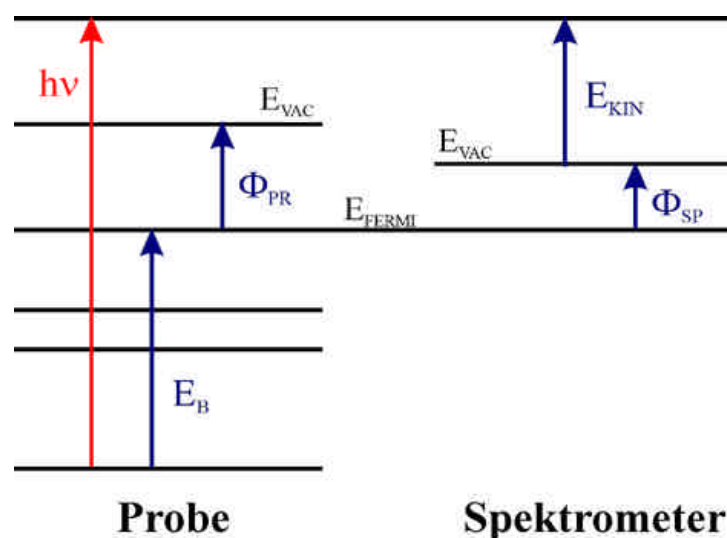


Abb. 5-12: Schematische Darstellung der Photoelektronenspektroskopie. Die Energiebilanz berücksichtigt das eingestrahelte Energiequant $h\nu$, die Austrittsarbeiten Φ_{PR} und Φ_{SP} von Probe und Spektrometer und damit den jeweiligen Level der Vakuumenergie E_{VAC} und schließlich das Niveau der Fermi-Energie E_{FERMI} [Klip2000].

Bei der Photoelektronenspektroskopie mit Röntgenlicht bzw. XPS-Analyse wird der Festkörper mit hochenergetischem Licht (z.B. $h\nu=1486,6$ eV / $Al_{\alpha_{1,2}}$ -Linie) bestrahlt. Bei solch hohen Energien werden kernnahe, stark gebundene Rumpfelektronen emittiert. Die Bindungsenergie solcher Elektronen ist elementspezifisch bzw. spezifisch für chemische Bindungen. Somit kann man die XPS-Analyse zur Elementanalyse einsetzen. Deshalb wird diese Analyse-Methode auch als ESCA (Electron Spectroscopy for Chemical Analysis) bezeichnet. Bei der Interpretation von XPS-Spektren sind verschiedene Energieverlust-Effekte zu berücksichtigen. Den Elektronen kann beispielsweise Energie durch Phonon- oder Plasmonanregung verloren gehen. Andererseits ist zu berücksichtigen, daß das Signal der Photoelektronen, die ohne Energieverlust in den Analysator gelangen, von dem Signal der Photoelektronen getrennt werden muß, die beim Verlassen der Probe auf dem Weg zur Oberfläche Energieverluste erfahren haben, dem sog. Untergrundsignal (Background). Die detaillierte Beschreibung der Interpretation von XPS-Spektren würde hier zu weit führen. Dafür sei auf die Dissertation von Björn Klipp [Klip2000] verwiesen.

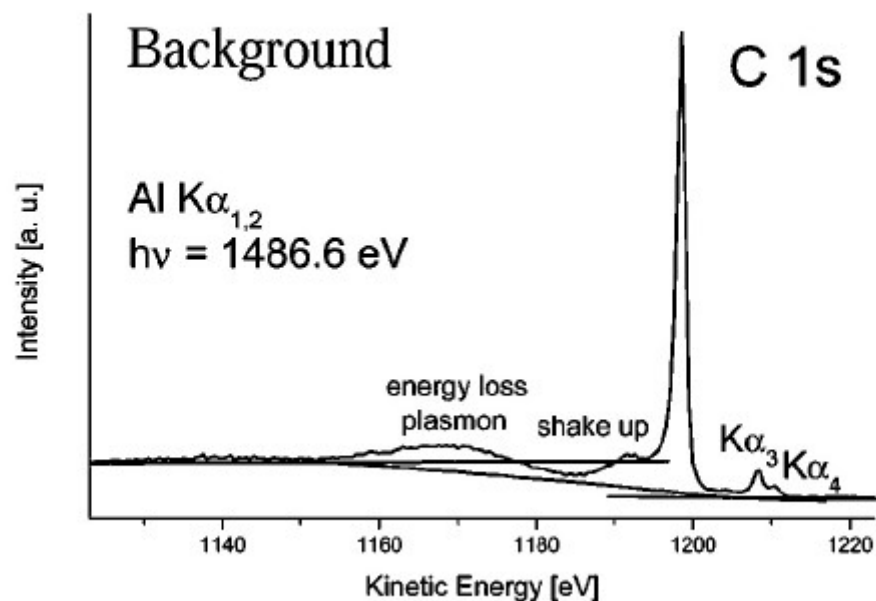


Abb.5-13: Typisches XPS-Spektrum. Das Spektrum wurde mit dem Licht der $Al K_{\alpha_{1,2}}$ -Linie, d.h. mit $h\nu=1486,6$ eV aufgenommen. Man sieht zunächst den C1s-Peak des 1s-Niveaus von Kohlenstoff. Weiter ist das Untergrund-Spektrum (Background) links vom C1s-Peak zu erkennen. Mit shake up ist eine Satellitenlinie vom C1s-Peak bezeichnet, die von Elektronen stammt, die durch die Relaxation elektronischer Strukturen angeregt waren und damit energieverschoben auftreten. Mit energy loss plasmon ist eine Struktur bezeichnet, die von einem diskreten Energieverlust durch eine Plasmonenanregung stammt. Schließlich treten als $K\alpha_3$ und $K\alpha_4$ zwei Linien auf, die entstehen, wenn die Röntgenquelle kein vollständig monochromatisiertes Licht liefert (hier eine Beimischung der $K\alpha_3$ - und der $K\alpha_4$ -Linie von Aluminium) [Klip2000].

6 Ergebnisse und Diskussion

Im Fokus des Interesses der vorliegenden Arbeit stand der Aufbau einer Clustersputterapparatur und systematische Untersuchungen an polierten Si(100)-Wafern. Sowohl die Sputteryield Y als auch die Mikrorauigkeit gesputterter Wafer sollten in Abhängigkeit von der mittleren Clusterionengröße \bar{N} , der Sputterenergie E_{Sput} und der Ionendosis D systematisch analysiert werden. Da insbesondere die Glättung von polierten Si(100)-Wafern als Modellsystem für zukünftige Spiegeloptik im Rahmen der EUVL-Technologie von Interesse war, ist hier der Schwerpunkt im Bereich der Rauigkeitsanalyse gesetzt.

Macht man eine Recherche zu Veröffentlichungen zum Thema *Clustersputtern an Siliziumoberflächen*, dann ist folgendes festzustellen:

Es gibt Untersuchungen zum Clustersputtern an polykristallinen Si-Oberflächen, die a priori recht rau ($\text{RMS} \approx 4\text{nm}$, vgl. Abb.1-4) sind. Ebenso sind Glättungserfolge an kristallinen Si-/SiO₂-Oberflächen erwähnt [Yamag1995][Fenn2000b]. Es fällt allerdings auf, daß Einzelergebnisse präsentiert werden, aber systematische Untersuchungen fehlen. Das ist nicht vollständig unverständlich. Zum einen sind nicht direkt die kristallinen Siliziumoberflächen, sondern z.B. mit Nickel oder Beryllium beschichtete Siliziumsubstrate im Bereich von Spiegeln gefragt, so daß die Glättung solcher Beschichtungen auf Siliziumbasis studiert wurde [DiFi2000]. Zum anderen stellt man zwar im Fall von Si- bzw. SiO₂-Oberflächen einen Glättungseffekt fest, doch dieser spielt sich etwa bei polierten Si(100)-Wafern im ohnehin ultraglaten Rauigkeitsbereich von $\text{RMS} \in [0.1\text{nm}, 0.3\text{nm}]$ ab, in dem die Oxidschicht bzw. die Art ihres Bildungsprozesses, wie hier im Detail zu diskutieren sein wird, einen großen Einfluß hat. Schwierig ist weiter, daß Silizium eine geringe Oberflächendiffusion hat. Der Glättungseffekt läuft deshalb gehemmter ab, wie in Kap.3.6 diskutiert.

Die Glättung von schon polierten Siliziumoberflächen muß also weiterhin systematisch untersucht werden bzw. die Grenzen einer solchen Glättung herausgefunden werden.

6.1 Glättung auf Mikrometer-Skala

Als erstes Glättungsexperiment mit der neu erbauten Clustersputterapparatur wurde der Versuch einer Glättung an einer grob aufgerauhten Aluminiumscheibe, die μm -tiefe Rillen und Furchen zeigte, unternommen. Diese Probe wurde mit einem Clusterionenstrahl aus $(\text{CO}_2)^+_{N>1000}$ mit $7.5 \cdot 10^{16}$ Ionen/cm² Dosis und 30 keV kinetische Energie bestrahlt. Es

wurde also mit Energien kleiner 30eV pro CO₂-Molekül gesputtert, mitten in dem Energiebereich, in dem eine hohe Sputteryield und der Glättungseffekt erwartet werden. Die Dosis wiederum ist zumindest ausreichend, um eine signifikante Glättung zu erzielen, die bei weiterer Dosissteigerung wachsen sollte. So wurde bei diesem ersten Sputtertest eine mit bloßem Auge sichtbare Glättung erzielt. Grobstrukturen wurden weggeglättet und so zeigt der gesputterte Bereich unter dem Lichtmikroskop eine höhere Reflektivität als die unbehandelte Aluminiumoberfläche. In Abb.6-1 sind lichtmikroskopische Aufnahmen der ursprünglich stark aufgerauten und der auf µm-Skala geglätteten Aluminiumoberfläche im direkten Vergleich abgebildet. Um diese Oberfläche auf Sub-Mikrometer-Skala glatt zu sputtern, müßte man gemäß Abb.3-27 mit einer viel höheren Dosis sputtern.

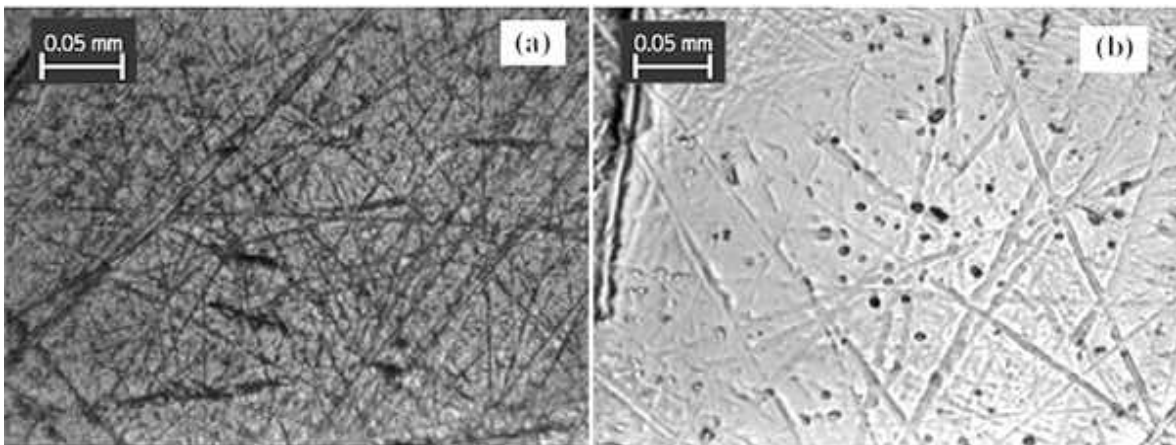


Abb.6-1: Lichtmikroskop-Aufnahmen einer grob aufgerauten Aluminium-Oberfläche:
 (a) vor dem Clustersputtern im „Original“-Zustand
 (b) nach dem Sputtern mit (CO₂)⁺_{N>1000} mit $7.5 \cdot 10^{16}$ Ionen/cm² und 30 keV.

6.2 Glättung auf Nanometer-Skala

In einem weiteren Test-Versuch wurde ein 80 nm dicker Goldfilm auf einem Glassubstrat aufgedampft. Von einem Goldfilm als „weichem“ Material wurde im Vergleich zu Silizium ein Glättungserfolg auf Nanometerskala erwartet. Vor dem Sputtern wurde mittels (1µm×1µm) AFM-Aufnahmen eine RMS-Rauhigkeit des Goldfilms von 1.5 nm ermittelt. Anschließend wurde mit (CO₂)⁺₁₁₀₀₀ Clusterionen bei einer Energie von 55 keV, also 5eV pro CO₂-Molekül am unteren Rand des Sputterregimes, gesputtert. Die Dosis wurde im Bereich von 10¹⁴ Ionen/cm² gehalten. Ein hoher Materialabtrag war daran zu erkennen, daß der Goldfilm im Sputterbereich durchscheinend wurde. Interferometrisch war diese Probe allerdings bzgl. der Sputteryield nicht zu untersuchen. Von Interesse war hier der Nachweis des Glättungseffektes. Mit AFM-Aufnahmen konnte eine Verbesserung des RMS-Werts von 1.5 nm auf 0.9 nm nachgewiesen werden. Bei dieser Dosis unterhalb von 10¹⁴ Ionen/cm², aber sonst nahezu gleichen Bedingungen, ist bei einem Siliziumwafer keine

Glättung oder eine signifikante Sputteryield nachweisbar, das heißt, daß zumindest die Schwellenenergie bei Silizium oberhalb von 5eV pro Clustermonomer liegt.

In Abb.6-2 sind AFM-Aufnahmen Oberflächen des unbehandelten und des gesputterten Goldfilms im Vergleich zu sehen. Schon der erste visuelle Eindruck beim Betrachten dieser AFM-Bilder zeigt, daß der gesputterte Goldfilm glatter und feinkörniger als der ursprünglich aufgedampfte Goldfilm ist. Die zweidimensionalen PSD-Analysen zu diesen Bildern sind in Abb.6-3 zu sehen. Die Morphologie des Goldfilms ändert sich demnach signifikant im Spektralbereich von $\lambda \in [5\text{nm}, 200\text{nm}]$. Für $\lambda \in [35\text{nm}, 200\text{nm}]$ ergibt sich eine Glättung zu Lasten einer Aufrauung im Bereich $\lambda \in [5\text{nm}, 35\text{nm}]$. Das entspricht einem Wechsel von einer gewissen Grob- zu einer eher Feinkörnigkeit.

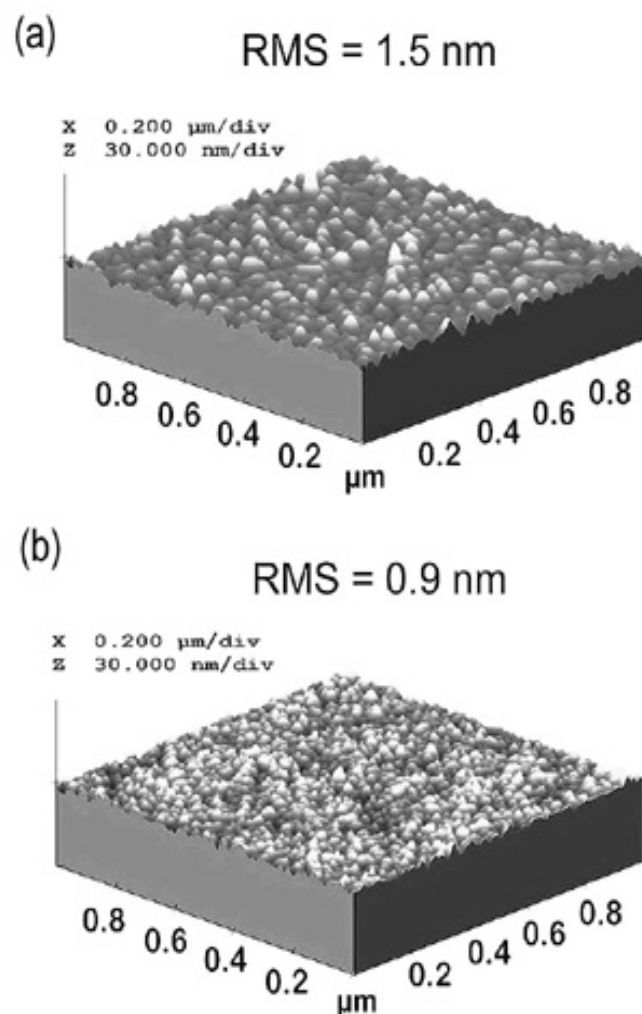


Abb.6-2: AFM-Aufnahmen eines zunächst 80 nm dicken, aufgedampften Goldfilms auf einem Glassubstrat. (a) vor dem Sputtern (b) nach dem Sputtern mit $(\text{CO}_2)^+_N$ Clusterionen mit $N=11000$ bei 55 keV, d.h. 5eV pro CO_2 -Molekül, und einer Dosis im Bereich von 10^{14} Ionen/ cm^2 .

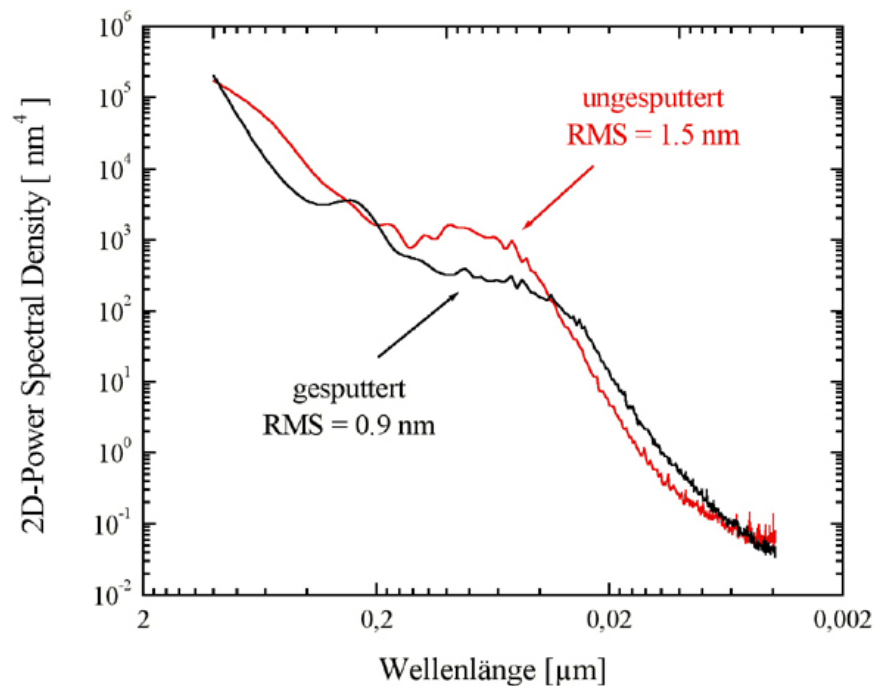


Abb.6-3: 2D-PSD-Spektren des gesputterten und ungesputterten Goldfilmes aus Abb.6-2. Für $\lambda \in [35\text{nm}, 200\text{nm}]$ ergibt sich eine Glättung zu Lasten einer Aufrauung im Bereich $\lambda \in [5\text{nm}, 35\text{nm}]$. Das entspricht dem Wechsel von Grob- zu Feinkörnigkeit.

6.3 Glättung auf Sub-Nanometer-Skala

Nach den ersten Glättungsnachweisen auf der Mikrometer-Skala für eine Aluminiumprobe bzw. auf der Nanometer-Skala für einen Goldfilm ist es gelungen, auch Glättungsnachweise für Si(100)-Wafer zu erbringen.

6.3.1 Sputtern mit $(\text{CO}_2)^+_{\text{N}}$ an Si(100)-Wafern

Die erste erfolgreiche Glättung einer SiO_2 -Oberfläche eines Si(100)-Wafers gelang mit $(\text{CO}_2)^+_{\text{N}}$ Clusterionen bei einer Ionendosis von $7 \cdot 10^{16}$ Ionen/cm². Dabei wurde eine mit bloßem Auge deutlich erkennbare Vertiefung in die Waferoberfläche gesputtert. Da die Apparatur zu diesem Zeitpunkt noch nicht mit einem Massenfiter ausgestattet war und eine hohe Fragmentation bei den Clustern aufgrund einer bis dahin zu heftigen Gasentladungsisionisierung auftrat, ist von einer breiten Massenverteilung $N = 100 \dots 10000$ auszugehen. Bei einer Energie von 30 keV heißt das, daß mit 3 ... 300 eV pro CO_2 -Molekül gesputtert wurde. Die ermittelte Sputteryield betrug 320 Targetatome pro Clusterion. Außerdem wurde eine signifikante Glättung erzielt. Die SiO_2 -Oberfläche dieses Wafers hatte eine Anfangsmikrorauigkeit von $\text{RMS} = 0.23 \pm 0.01$ nm. Nach dem Sputtern betrug die Mikrorauigkeit nur noch $\text{RMS} = 0.14 \pm 0.01$ nm.

Eine weiteren erfolgreichen Glättung gelang für einen oxidierten Si(100)-Wafer mit einer Anfangsrauigkeit von $\text{RMS} = 0.24 \pm 0.01 \text{ nm}$. Mit $(\text{CO}_2)^+_{N \approx 9000}$ Clusterionen bei einer Energie von 60keV, also 6.66 eV pro CO_2 -Molekül, und einer Dosis von $5 \cdot 10^{14}$ Ionen/cm² war eine Glättung auf $\text{RMS} = 0.19 \pm 0.01 \text{ nm}$ nachweisbar. Die ermittelte Sputteryield betrug 660 Targetatome pro Clusterion.

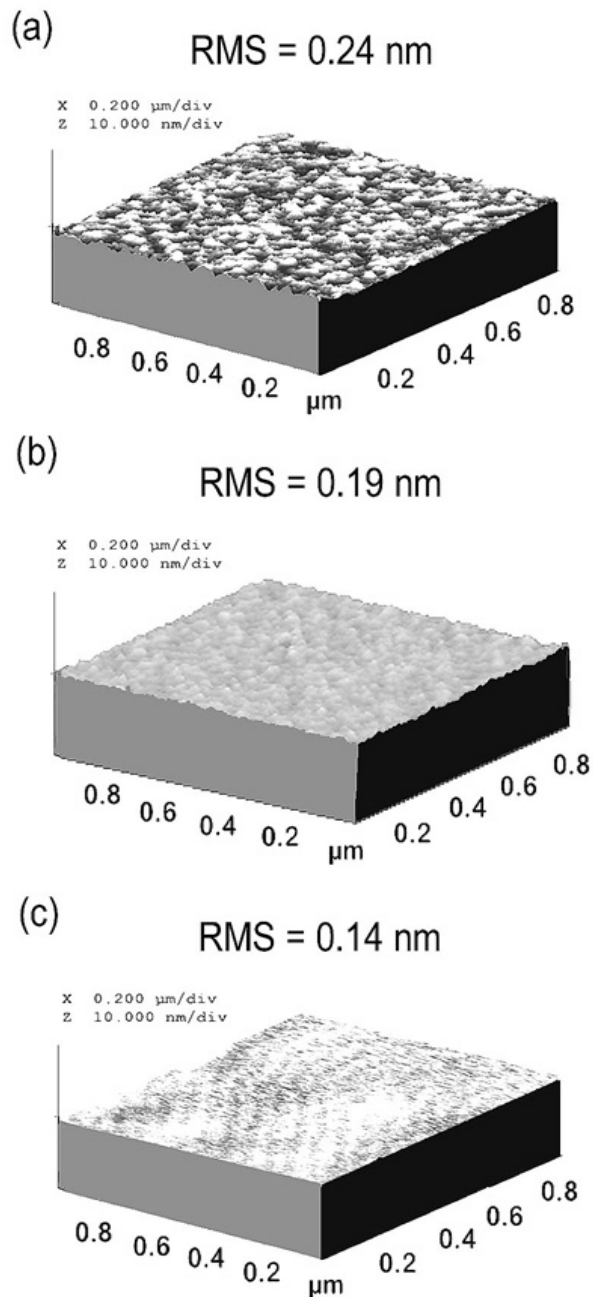


Abb.6-4: AFM-Bilder von oxidierten Si(100)-Wafeln: (a) ungesputtert (b) gesputtert mit $(\text{CO}_2)^+_N$ bei $N = 9000$ und 60keV also 6.66 eV pro Monomer (c) gesputtert mit $(\text{CO}_2)^+_N$ bei $N=100\dots10000$ und 30keV also 3...300eV pro Monomer.

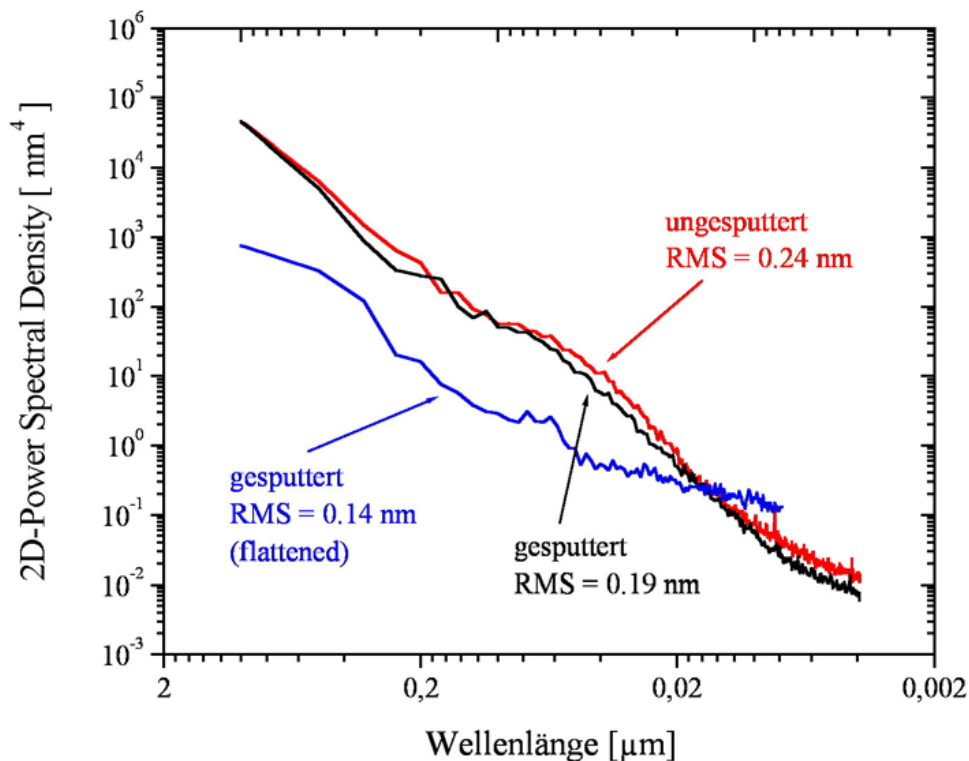


Abb.6-5: 2D-PSD-Spektren der gesputterten und ungesputterten SiO_2 -Oberflächen der Si(100)-Wafer aus Abb.6-4 im Vergleich. Glättung im Spektralbereich $\lambda > 17\text{nm}$ beim stark geglätteten Wafer signifikant, bei der geringer geglätteten Probe aber trotzdem deutlich zu erkennen.

Sowohl in Abb.6-4 als auch in Abb.6-5 erkennt man deutlich die Glättung der gesputterten Oberflächen. Probe 1, d.h. der stärker geglättete Wafer, hebt sich allerdings mit seinem PSD-Spektrum klar von Probe 2, d.h. dem schwächer geglätteten Wafer, ab. Die Glättung tritt im Spektralbereich $\lambda > 17\text{nm}$ auf. Bei Probe 1 war die PSD-Analyse des AFM-Bildes nur nach einem sog. Flatten-Bildverarbeitungsschritt möglich, was einem Tiefpaßfilter entspricht. Im oberen Spektralbereich ist deshalb die PSD gedämpft. Das Spektrum geht in einen „künstlichen“ Plateau-Bereich über, statt „linear“ anzusteigen, wie man es bei den beiden anderen Spektren fraktaler Oberflächen in Abb.6-5 sieht. Die wesentliche Aussage bleibt aber erhalten.

Schließlich fällt auch in Abb.6-5 wieder die Glättung im höheren Spektralbereich auf Kosten einer Aufrauung in niedrigeren Spektralbereich auf. Bei der Goldprobe in Abb.6-3 wurde diese Beobachtung ja auch schon gemacht. Der Clustersputterprozeß besteht nicht nur gemäß dem aktuellen theoretischen Beschreibungsmodell aus einer Materialumschichtung, sondern geht auch mit einer „Spektralumschichtung“ einher. Daß die schwächer geglättete Probe 2 in Abb.6-5 nicht dieses Phänomen deutlich zeigt, sondern im Gegenteil auch im unteren Spektralbereich eine Glättung zeigt, darf hier als statistische Schwankung und muß deshalb nicht als Widerspruch gewertet werden.

6.3.2 Diskussion

Zunächst ist festzuhalten, daß in beiden hier beschriebenen Fällen eine Glättung der SiO₂-Oberfläche gelungen ist. Dieser Diskussion der Ergebnisse ist vorzuschicken, daß gemäß Tab. 6-1 die hier dokumentierten Glättungen von oxidierten Si(100)-Waferoberflächen mit den Resultaten aus Veröffentlichungen nicht widersprechen.

In allen hier vorgestellten Fällen wurde mit vergleichbaren Sputterenergien im Bereich von 6 bis 10 eV pro Monomer gearbeitet. Zumindest ist im Falle einer großen Energieverteilung auch dieser Bereich abgedeckt. Die verwendeten Clusterionensorten sind (CO₂)⁺_N und Ar⁺_N. Der Glättungseffekt tritt in beiden Fällen auf. Bei Fenner et al. [Fenn2000b] ist die erreichte Endrauhigkeit mit RMS = 0.10 nm für das Sputtern mit Ar⁺_N Clusterionen allerdings viel geringer als in den drei anderen Beispielen mit RMS = 0.14 ... 0.19 nm für Probe 1 und Probe 2 und Yamagouchi et al. [Yamag1995], bei denen mit (CO₂)⁺_N Clusterionen gearbeitet wurde. Worin besteht der Unterschied ? Dieses Resultat ist nicht auf die Wahl der Clusterionen zurückzuführen, sondern auf die viel geringere Anfangsrauhigkeit des bei Fenner et al. verwendeten Si(100)-Wafer. Im Vergleich zu Anfangsrauhigkeiten RMS = 0.23 ... 0.26 nm liegt dort der Ausgangswafer schon bei RMS = 0.13 nm. Der relative Grad der Glättung auf RMS = 0.10 nm ist damit vergleichbar mit den anderen Proben.

	Probe 1	Probe 2	[YaYa1995]	[YaMa1996]	[FeSk2000]	[Amra1996]
Clusterionensorte	(CO ₂) ⁺ _N N = 100...10000	(CO ₂) ⁺ _N N = 9000	(CO ₂) ⁺ _N N > 250	Ar ⁺ _N N = 3000	Ar ⁺ _N N = 3000	—
Dosis D	7.6·10 ¹⁶ Ionen/cm ²	5.3·10 ¹⁴ Ionen/cm ²	1·10 ¹⁶ Ionen/cm ²	—	1·10 ¹⁶ Ionen/cm ²	—
Energie E_{Sput}	30 keV 3...300 eV pro Monomer	60 keV 6.67 eV pro Monomer	10 keV < 40 eV pro Monomer	20 keV 6.67 eV pro Monomer	26 keV 8.67 eV pro Monomer	—
Rauhigkeit RMS vor dem Sputtern ↓ nach dem Sputtern	0.23 ± 0.01nm ↓ 0.14 ± 0.01nm für (1µm×1µm)	0.24 ± 0.01nm ↓ 0.19 ± 0.01nm für (1µm×1µm)	0.26 nm* ↓ 0.19 nm für (1µm×1µm)	—	0.13 nm* ↓ 0.10 nm für ?	—
Fraktal-Dimension D	2.55 ± 0.3	2.55 ± 0.3	—	—	—	2.8
Sputteryield Y	320 Atome/Cluster	660 Atome/Cluster	—	50 Atome/Cluster	—	—

* Die angegebenen RMS-Werte sind durch Multiplikation mit dem Faktor 1.3 gemäß einer "Faustformel" aus den R_s-Werten gewonnen

Tab. 6-1: Die Ergebnisse zu den im Rahmen dieser Arbeit geglätteten SiO₂Oberflächen im Vergleich mit Resultaten aus Papern [Yamag1995][Yama1996][Fenn2000b].

Die enorm geringe Rauigkeit des von Fenner et al. verwendeten Siliziumwafers überrascht. In der Veröffentlichung fehlt leider jegliche Angabe zur Fläche, bezüglich der der RMS bzw. R_a -Wert bestimmt wurde. Wie in Kapitel 2 ausführlich begründet, macht aber gerade das Fehlen dieser Angabe den RMS-Wert aussagenlos, da es sich bei diesen ultraglaten Siliziumoberflächen um fraktale Oberflächen handelt. Ein Vergleich von RMS-Werten ist hier also nur bedingt sinnvoll. Da der RMS-Wert bei AFM-Aufnahmen empfindlich mit der z-Kalibration des Meßkopfs zusammenhängt, kann ein so enorm geringer RMS-Wert im Bereich von nur 1.3 Å auch ein Kalibrationsergebnis sein. Da zudem AFM-Aufnahmen und PSD-Spektren zu den Siliziumproben vor und nach dem Sputtern im Paper von Fenner et al. Fehlen, ist eine Bewertung der Resultate im Vergleich zu den vorliegenden Ergebnissen kaum möglich.

Die Sputteryield Y ist im Falle der Proben dieser Arbeit mit 320 bzw. 660 gesputterten Atomen pro einschlagendes Clusterion grob einen Faktor 10 größer als das bei Yamada et al. [Yama1996] veröffentlichte Ergebnis von $Y=50$ für Silizium. Da die Energien pro Monomer vergleichbar sind, ist das wieder ein Beispiel für die Nicht-Linearität des Clustersputterprozesses. Offenbar macht es einen Unterschied, ob ein Cluster der Größe $N = 9000$ mit 60 keV Gesamtenergie oder ein Cluster der Größe $N = 3000$ mit 20 keV Gesamtenergie auf einer Oberfläche auftritt. Wenn man den Cluster aus 9000 Monomeren nun anschaulich als 3 Cluster à 3000 Monomere mit jeweils 20 keV betrachtet, dann könnte man intuitiv eine höhere Sputteryield erwarten. Im Falle der Probe 2 wurde eben mit $N = 9000$ bei 60 keV gearbeitet, während [Yama1996] mit $N = 3000$ bei 20 keV sputtert.

Schließlich liegt der „kritische“ Ionendosisbereich, ab dem der Glättungseffekt auftritt, bei 10^{14} bis 10^{16} Ionen/cm². Untersuchungen zu einzelnen Kratern, die von Clustern beim Aufprall erzeugt werden, sind vergleichsweise dazu bei Dosen im Bereich von 10^{12} Ionen/cm² durchzuführen [YaSe1997].

Es fällt auf, daß die gesputterten SiO₂-Oberflächen bei vergleichbaren Sputterenergien und Ionendosen eine Fluktuation der mittleren Rauigkeit von $\Delta RMS = 0.9$ nm aufweisen. Woher kommt die Schwierigkeit systematischer Untersuchungen – nicht im Rahmen der vorliegenden Arbeit wohlbemerkt - sondern im Rahmen der gesamten Veröffentlichungslandschaft? In einem Paper von Lai et al. [LaIr1999] wird sowohl experimentell als auch theoretisch der Zusammenhang zwischen der Mikrorauigkeit einer Siliziumoxidoberfläche und der Entstehung und Dicke der Oxidschicht diskutiert. Bei der thermischen Oxidation einer Siliziumoberfläche kann mit wachsender Oxidschicht eine rauhe Ausgangsoberfläche glatter und eine glatte Ausgangsoberfläche rauher werden. In Abb.6-6 ist dies gut zu verfolgen. Die mittlere Rauigkeit einer SiO₂-Oberfläche konvergiert offenbar gegen einen RMS-Wert von etwa 0.300 nm. Man kann sagen, das thermodynamische Gleichgewicht der Oberfläche einer SiO₂-Schicht stellt sich ein. Wie diese Rauigkeitsentwicklung vor sich geht, hängt vom Oxidationsprozeß ab. Was heißt das aber für die Glättungsexperimente an oxidierten Si(100)-Wafers ?

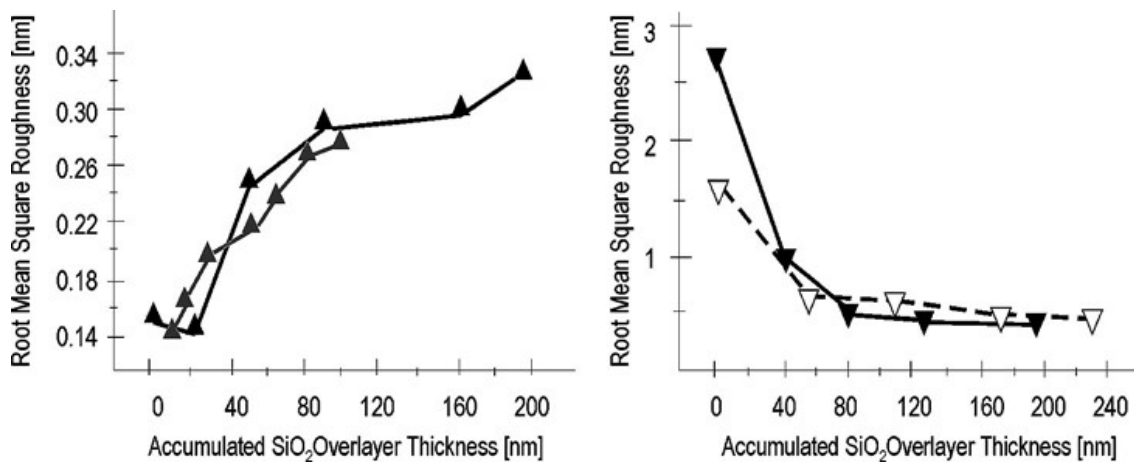


Abb.6-6: Beim Oxidationsprozeß einer Siliziumoberfläche entwickelt sich mit der Oxidschicht auch die mittlere Rauigkeit. Sie strebt auf ein thermodynamisches Gleichgewicht bei $RMS = 0.30 \text{ nm}$ zu [LaIr1999].

Da die Rauigkeit einer oxidierten Si(100)-Oberfläche allein mit der Oxidschicht schon zwischen $RMS = 0.14 \text{ nm}$ und $RMS = 0.30 \text{ nm}$ bzw. $RMS = 3.00 \text{ nm}$ und $RMS = 0.30 \text{ nm}$ schwankt, liegt die Vermutung nahe, daß im Rahmen von Clustersputterexperimenten an polierten oxidierten Siliziumoberflächen nicht der Siliziumglättungeffekt untersucht wird, sondern unterschiedliche Oxidationsprozesse, die durch das Clustersputtern quasi katalysiert werden. Schließlich gibt es in jeder Sputterkammer genügend Sauerstoff, so daß schon während des Sputterns gleichzeitig Materialabtrag und Oxidation stattfinden. Da aber der Sauerstoff-Partialdruck und die Oxidationsbedingungen weder in der vorliegenden Arbeit und noch in anderen Veröffentlichungen zum Clustersputtern an Siliziumtargets berücksichtigt werden, mißt man Rauigkeitsfluktuation, die in erster Linie weniger mit den Sputterparametern korrelieren, sondern mehr mit den Oxidationsbedingungen, die natürlich vom Clustersputterprozeß beeinflusst werden. Systematische Untersuchungen werden fast unmöglich gemacht, da sich kaum definierte Bedingungen herstellen lassen und die Reproduzierbarkeit zum Problem wird. Das könnte den Mangel an erfolgreichen systematischen Untersuchungen erklären.

6.4 Systematische Untersuchungen an polierten und oxidierten Si(100)-Wafern

Nach den ersten erfolgreichen Glättungen, die u.a. als Beweis für die prinzipielle Funktionstüchtigkeit der aufgebauten Apparatur gelten können, wurden systematische Untersuchungen an polierten, oxidierten Si(100)-Wafern vorgenommen. Von Interesse sind hier natürlich zunächst die Abhängigkeit der Sputteryield Y und der mittleren Mikrorauigkeit RMS von der Größe der Clusterionen bzw. deren Energie. Anschließend ist die Dosisabhängigkeit derselben Parameter zu untersuchen.

6.4.1 $(\text{CO}_2)_N^+$ -Sputtern unter Variation von Clustergröße N

Bei der hier zu referierenden Meßreihe wurde durchgängig mit $(\text{CO}_2)_N^+$ Clusterionen unterschiedlicher Größe aber immer einer kinetische Energie von 30 keV gesputtert. Die verwendeten kommerziell polierten Siliziumwafer hatten alle eine mittlere Anfangsrauhigkeit von $\text{RMS} = 0.235 \pm 0.48 \text{ nm}$. Mit der Variation der Clustergröße $N = 8000 \dots 19000$ variiert man die Energie pro Monomer im Bereich 1.6 eV bis 3.8 eV - bedingt durch apparative Gegebenheiten wurde zunächst mit diesen großen Clusterionen experimentiert, später mit kleineren. In Abb.6-7 ist die mittlere Rauigkeit der beschossenen Siliziumoxidtargets gegen die mittlere Clustergröße bzw. die Energie pro Monomer aufgetragen. Die Proben werden im vermessenen Energiebereich rauher bis zu einer $\text{RMS} = 0.58 \pm 0.05 \text{ nm}$. Dieses Resultat ist gut verstehbar. Die Energien pro Monomer bewegen sich mit 1.6 eV bis 3.8 eV nicht im eigentlichen Sputterregime. Die Energie reicht nicht für eine Oberflächenglättung aus. Auch eine signifikante Sputteryield ist nicht nachweisbar. Deshalb sollte diese Meßreihe zu kleineren Clustergrößen bzw. Energien weitergeführt werden. Dies ist bisher nicht möglich, weil experimentelle Probleme mit Kohlenwasserstoffen aufgetreten sind, die im Folgenden diskutiert werden.

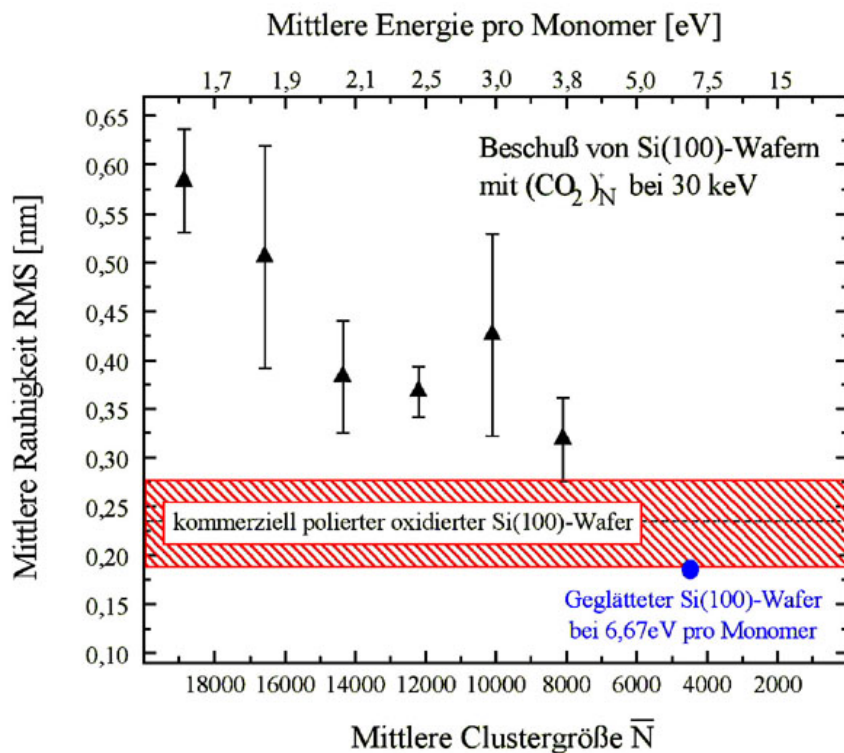


Abb.6-7: Entwicklung des mittleren Rauigkeitswertes RMS in Abhängigkeit von der Clustergröße bzw. der Sputterenergie pro Monomer. Gesputtert wurde bei dieser Meßreihe mit $(\text{CO}_2)_N^+$ immer bei einer Gesamtenergie von 30 keV. Die beschossenen Siliziumoxidoberflächen wurden bei Energien von 1.6 eV bis 3.8 eV mit 10^{14} Ionen/cm² bestrahlt. Extrapoliert man die Meßreihe, dann liegt die geglättete Probe 2 im Trend.

Man kann in Abb.6-7, wenn man die Meßpunkte extrapolatiert, vermuten, daß im Bereich von Energien oberhalb von 5 eV der Glättungseffekt und eine enorm hohe Sputteryield auftreten sollten. Die geglättete Probe 2, die unter sehr definierten Bedingungen gesputtert wurde, ist im Diagramm ergänzend eingetragen und paßt sehr gut in die Meßreihe hinein.

6.4.2 Reaktives Sputtern mit Kohlenwasserstoffen Aufrauh-Effekte

Als Schlußfolgerung aus der ersten Meßreihe wurde in einer weiteren Meßreihe die Energie pro Monomer zwischen 5eV und 10 eV gewählt und jeweils eine Meßserie in Abhängigkeit von der Ionendosis durchgeführt.

In Abb.6-8 ist das Ergebnis einer Dosisvariationsmeßreihe dargestellt. Bei drei verschiedenen Sputterenergien wurde die Sputterdauer bei gleicher Höhe des Ionenstroms variiert. Man stellt eine starke Aufrauhung um eine Größenordnung im RMS-Wert fest. Die Rauigkeiten bewegen sich ab etwa 10^{15} Ionen/cm² in einen „Sättigungsbereich“. Diese Aufrauhung ist zunächst vollständig rätselhaft. Sie ist nur durch weiterführende Analysen zu verstehen. So läßt sich die Bildung einer Siliziumcarbidschicht nachweisen, zum Teil als Verfärbung mit bloßem Auge erkennbar, d.h. es handelt sich nicht mehr um SiO₂-Oberflächen sondern um SiC-Oberflächen mit rauher Morphologie! Nicht zuletzt eine sehr hohe Sputteryield Y deutet auf einen reaktiven Sputterprozeß hin. Die Sputteryield Y liegt im Bereich von 200 gesputterten Atomen pro Clusterion bis zu 9000 gesputterten Atomen pro Clusterion. Das sind vergleichsweise hohe Sputterraten – bis zu zwei Größenordnungen höher als veröffentlichte Werte. Da für die hier referierte Meßreihe über XPS-Analysen nachgewiesen werden konnte, daß sich beim Clustersputtern eine SiC-Schicht gebildet hat und keine SiO₂-Oberfläche mehr vorliegt, ist diese hohe Sputteryield nicht weiter verwunderlich. Man kann von einem reaktiven Sputterprozeß ohne Glättungseffekt und mit erhöhtem Materialabtrag ausgehen.

Daß es sich bei den aufgerauhten Stellen der Meßreihe zur Dosisabhängigkeit um keine SiO₂-, sondern wohl um SiC-Oberflächen handelt, zeigt sich schon in der veränderten Morphologie, welche die AFM-Bilder offenbaren. So sticht im Vergleich zu den Proben aus der ersten Meßreihe (Kap.6.4.1), die als „sauber“ angenommen werden dürfen, ins Auge, daß bei den SiC-Proben eine Art „Erbsenstruktur“ zu finden ist, während die SiO₂-Oberflächen eher „vernarbt“ aussehen. In Abb.6-9 sind solche AFM-Bilder vergleichend gezeigt.

Um die Siliziumcarbidschicht weiter zu charakterisieren, wurden unterschiedliche Untersuchungsmethoden erwogen. Da die gebildeten Beschichtungen aber wohl dünner als 100nm sind, scheiden SEM-Aufnahmen aus. Ellipsometrie zur Schichtdickenbestimmung ist aufgrund zu geringen Kontrastes ebenfalls nicht möglich. Schließlich wurde die Suche nach der Ursache für diese Siliziumcarbidschichtbildung und eine mögliche Behebung des Problems im Gegensatz zur weiteren Charakterisierung der Beschichtung favorisiert.

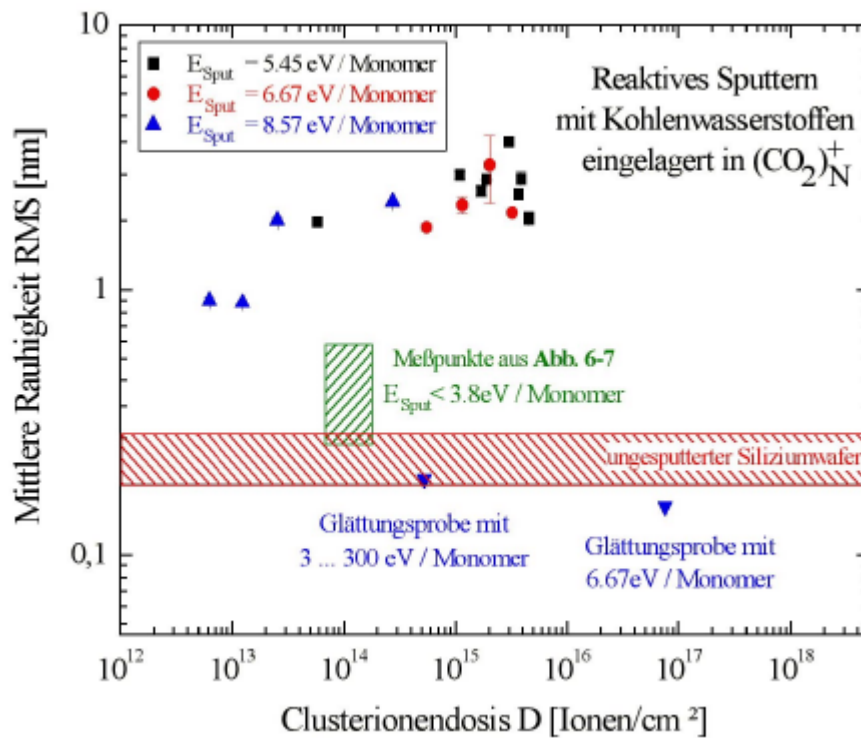


Abb.6-8: RMS-Wert in Abhängigkeit von der Clusterionendosis. Statt Glättung ist eine starke Aufrauung festzustellen. Die Aufrauung ist mit einer Verfärbung der Oberfläche verknüpft – der reaktive Prozeß führt zur Bildung einer Siliziumcarbidbildung.

Um die Vermutung, daß es sich um Siliziumcarbid handelt zu bestätigen, wurde eine XPS-Analyse durchgeführt[⊗]. Dabei stellte sich heraus, daß die Verfärbungen aus fest gebundenem Kohlenstoff besteht, was auf eine Siliziumcarbidschicht schließen läßt. In Abb.6-10 sind die entsprechenden XPS-Spektren zu sehen. Der Kohlenstoff 1s Peak ist im Verfärbungsbereich signifikant höher als bei einem „frischen“ Siliziumwafer. Daß der Kohlenstoff wirklich fest gebunden ist, zeigt sich darin, daß der C1s Peak nach dem Heizen der Probe sogar noch höher geworden ist.

In einer dritten Meßreihe wurde zunächst von $(\text{CO}_2)_N^+$ auf Ar_N^+ Clusterionen umgestellt, um sicherzustellen, daß der Kohlenstoff nicht direkt von den Clustern kommt, selbst wenn das unwahrscheinlich ist, da mit $(\text{CO}_2)_N^+$ bereits erfolgreich gearbeitet wurde. Siliziumwafer wurden also mit Ar_N^+ Clusterionen einer mittleren Größe von $N = 500$ bis zu $N = 5000$ bei einer Sputterenergie von 60 keV bestrahlt. Es wurde mit Energien von 12eV bis 120 eV pro Argonatom gearbeitet. Das Ergebnis blieb aber gleich: Verfärbungen und damit Bildung von Siliziumcarbidschichten ! In Abb.6-11 sind die mittleren Rauigkeiten dieser Meßreihe dargestellt. Es scheint eine energieunabhängige Verteilung im Bereich von $\text{RMS} = 0.4 \dots 3.0 \text{ nm}$ zu sein.

[⊗] Die XPS-Analyse wurde von Herrn Dipl.Phys.M.Grass, Mitarbeiter der AG Ganteför durchgeführt.

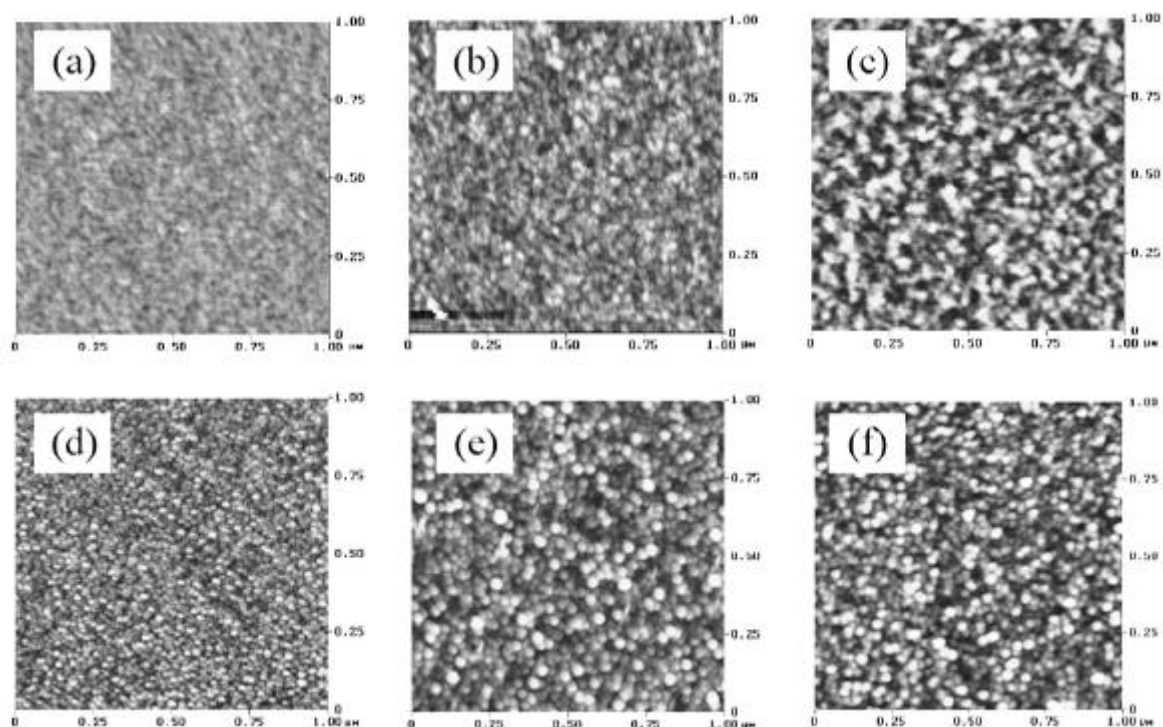


Abb.6-9: AFM-Bilder: (a),(b),(c) physikalisch gesputterte SiO_2 -Oberflächen mit Rauigkeiten $\text{RMS} \approx 0.24 \text{ nm} / 0.38 \text{ nm} / 0.62 \text{ nm}$ – „Narbenstruktur“ (d),(e),(f) SiC-Schicht mit Rauigkeiten $\text{RMS} \approx 0.78 \text{ nm} / 1.80 \text{ nm} / 2.13 \text{ nm}$ – „Erbsenstruktur“.

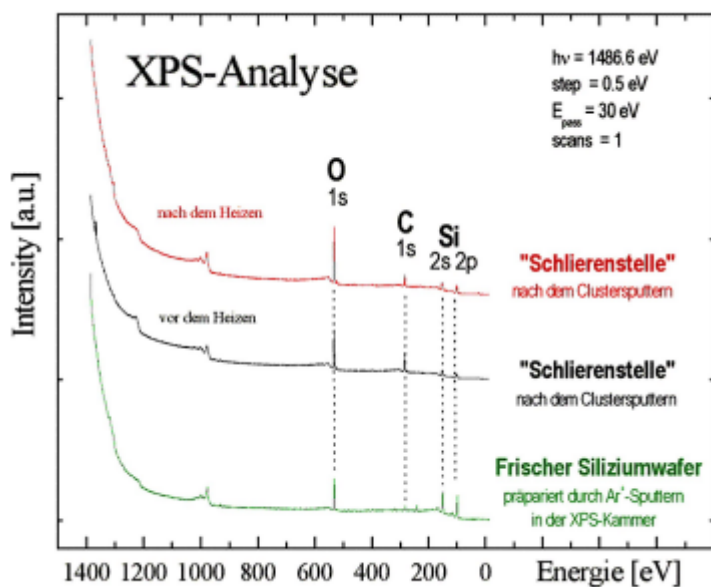


Abb.6-10: XPS-Analysen. Siliziumwafern. Der Kohlenstoff C1s Peak ist bei den „Schlieren,, bzw. Verfärbungen signifikant. Die Spektren vor und nach dem Heizen zeigen, daß es sich um festgebundenen Kohlenstoff handelt. Die XPS-Analyse ergibt damit, daß es sich bei den Schlieren vermutlich um eine Siliziumcarbidschicht handelt.

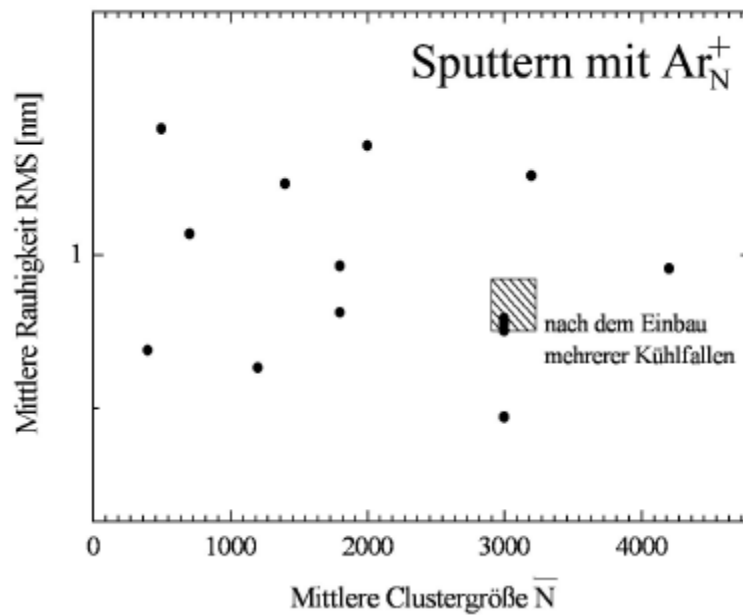


Abb.6-11: Ergebnis der dritten Meßreihe. Es wurde im Energiebereich 12eV ... 120eV pro Argonatom gesputtert. Weiterhin erfolgte Siliziumcarbidbildung. Die mittlere Rauigkeit der Siliziumcarbidschichten fluktuiert unabhängig von der Sputterenergie im Bereich von RMS = 0.4 ... 3.0 nm – selbst nach dem Einbau mehrerer Kühlfallen, d.h. die Kohlenwasserstoffe können nicht aus dem Hintergrundgas stammen.

Als Quelle für die Siliziumcarbidbildung werden Kohlenwasserstoffe angesehen. In der Sputterkammer wurde nun insbesondere ein erhöhter Partialdruck an Kohlenwasserstoffen festgestellt. Durch gezieltes Ausheizen dieser Kammer und ebenso weiterer Apparaturkomponenten wurde diese Restgaskonzentration an Kohlenwasserstoffen aber unter die Nachweisgrenze gedrückt. Durch den Einbau mehrerer Kühlfallen in verschiedenen Kammern wurde das Vakuum weiter verbessert. Trotzdem ist es bisher nicht gelungen, die Siliziumcarbidbildung vollständig zu unterdrücken. Nach derzeitiger Meinung werden im Bereich des Sputtertargets beim Clustersputterprozeß Kohlenwasserstoffe im Wechselwirkungsbereich zwischen Clustern und Target bei den dort extremen Druck- und Temperaturverhältnissen aufgebrochen. Die extrem reaktionsfreudigen Siliziumatome reagieren, sobald die schützende Oxidschicht abgetragen ist, mit den Produkten dieser Prozesse unter Bildung von Siliziumcarbid.

In Abb.6-11 sind auch die Ergebnisse nach apparativen Verbesserungen eingetragen. Inzwischen werden nur noch „halbwegs“ glatte, kaum sichtbare Siliziumcarbidfilme festgestellt mit Rauigkeiten von RMS = 0.5 nm ... 0.9 nm. Solange allerdings irgendeine Art von Siliziumcarbidschicht – sei sie noch so dünn – gebildet wird, sind systematische Untersuchungen an Siliziumwafern bezüglich des Glättungseffektes ausgeschlossen. Inzwischen gehen wir davon aus, daß die Cluster die Kohlenwasserstoffe im Ionenstrahl mitbefördern – direkt zum Target hin. Der „Pickup“ derselben wird im Bereich von Kammer III vermutet, wo eine hohe Kohlenwasserstoffkonzentration im Restvakuum vorhan-

den ist. Schließlich wird Kammer III mit Öldiffusionspumpen evakuiert. Vermutlich muß bei weiterem Mißerfolg hier angesetzt werden. Es sollte allerdings über kurz oder lang möglich sein, dieses Kohlenwasserstoffproblem zu lösen, so daß einer erfolgreichen Fortsetzung der bisherigen Untersuchungen nichts mehr im Wege steht.

7 Zusammenfassung & Ausblick

Als von der Optikindustrie (Carl Zeiss, Oberkochen) gefördertes Projekt ist die vorliegende Arbeit stark anwendungsorientiert motiviert. Zielvorgabe waren Clustersputter-Experimente an polierten Siliziumwafer-Oberflächen als Modellsystem für zukünftige Spiegeloptik im Rahmen der EUVL-Technologie. Im Fokus des Interesses stand die Untersuchung des Glättungseffektes, der beim Clustersputtern auftritt. Systematisch sollte die Abhängigkeit dieses Effektes von der Ionendosis, der Clustergröße, der Sputterenergie und dem Einschußwinkel untersucht werden. Mit Betonung auf „optische“ Oberflächen war insbesondere die Untersuchung der PSD-Spektren gesputterter Oberflächen von Interesse, da erst diese eine Auskunft über den Wellenlängenbereich der Rauigkeitstrukturen geben.

Neben dieser vollständig anwendungsbezogenen Motivation gibt es aber auch ein Grundlagen-Interesse am Clustersputtern. Es gibt es viele Simulationen zum Clustersputterprozeß, die in guter Übereinstimmung mit Experimenten sind. Dennoch ist die Richtigkeit des aktuellen Modells nicht direkt experimentell bestätigt. So gilt es neben anwendungsorientierter Forschung weiterhin Grundlagenforschung zur Klärung des Clustersputterprozesses zu betreiben. Außerdem gibt es allgemein im Bereich der Sub-Nanometer-Glättung kaum systematische Studien, so daß sich gerade hier ein Arbeitsfeld ergibt.

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurde eine Clustersputterapparatur aufgebaut, die über folgende Parameter kurz charakterisiert werden kann:

Es ist möglich, mittels adiabatischer Düsenstrahlexpansion $(\text{CO}_2)^+_N$ und Ar^+_N Clusterionen einer mittleren Größe $\bar{N} = 100 \dots 10000$ bei Ionenströmen von bis zu 300 nA zu erzeugen. Mit einem Sektormagneten erfolgt die Ausblendung atomarer Ionen, denn man will das reine Clustersputtern und kein Atomputtern untersuchen. In der Sputterkammer erreicht man unter Last Drücke in der Größenordnung von 10^{-8} mbar – man kann mithin nicht von einer UHV-Apparatur reden. In der Sputterkammer wird das zu sputternde Target auf bis zu - 60 keV Potential gelegt. Über dieses kann man die Sputterenergie einstellen. Nach dem Sputtern wird über Interferometrie der Materialabtrag bestimmt, um anschließend eine AFM-Analyse zur Rauighkeitsanalyse durchzuführen.

Zunächst ist es gelungen, Glättungseffekte auf Mikrometer-Skala an rauhen Aluminiumoberflächen nachzuweisen. Anschließend wurden Goldfilme auf Nanometer-Skala geglättet - von $\text{RMS} = 1.5$ nm nach $\text{RMS} = 0.9$ nm. Dann wurde mit Experimenten an Siliziumwafern begonnen. Es ist gelungen, Siliziumwafer signifikant zu glätten. In einem Fall wurde eine Glättung auf eine Restrauigkeit von $\text{RMS} = 0.14 \pm 0.01$ nm, in einem anderen Fall von $\text{RMS} = 0.19 \pm 0.01$ nm erreicht. Diese Ergebnisse sind in guter Übereinstimmung mit

bereits veröffentlichten Resultaten. Eine Glättung auf Sub-Nanometer-Skala ist also gelungen. Die Glättung tritt gemäß den PSD-Analysen im Spektralbereich $\lambda > 17\text{nm}$ auf. Quasi zum Ausgleich scheint dafür die spektrale Rauigkeit unterhalb von 17 nm zuzunehmen.

Die systematischen Untersuchungen im Rahmen dieser Arbeit konnten allerdings nicht in dem ursprünglich geplanten Umfang durchgeführt werden. Zunächst wurde eine Meßreihe aufgenommen, bei der die Clustergröße von $N = 8000$ bis $N = 19000$ variiert und die Gesamtenergie konstant bei 30 keV gehalten wurde. D.h. die Energie pro Monomer liegt im Bereich von 1.6 eV bis 3.8 eV. Die Siliziumwaferproben wurden in diesem Energiebereich rauher bis zu einer $\text{RMS} = 0.58 \pm 0.05 \text{ nm}$, also etwa das Zweieinhalbfache der Ausgangsrauigkeit. Das ist nicht überraschend, denn man bewegt sich mit 1.6 eV bis 3.8 eV Energie pro Monomer nicht im eigentlichen Sputterregime. Die Energie reicht nicht für eine Oberflächenglättung aus. Auch eine signifikante Sputteryield ist nicht nachweisbar. Deshalb muß diese Meßreihe zu kleineren Clustergrößen bzw. größeren Energien pro Monomer weitergeführt werden. Das ist aber bisher nicht möglich gewesen, weil experimentelle Probleme mit Kohlenwasserstoffen aufgetreten sind.

Es hat den Anschein, daß bei einer Pickup-Prozess Kohlenwasserstoffe in den Clusterionen eingebaut werden. So kommt es zu reaktiven Sputterprozessen. Bei diesen treten sehr große Materialabtragsraten auf, aber der Glättungseffekt wird verhindert. Im Sputterbereich bildet sich auf dem Wafer eine Siliziumcarbidschicht. Da aber auch die geringste Siliziumcarbidschicht den Nachweis von Glättung an einer SiO_2 -Oberfläche unmöglich macht, hat trotz vieler apparativer Fortschritte und Verbesserungen dieses bisher nicht gelöste Problem weiterreichende systematische Meßreihen unmöglich gemacht. Es sollte aber prinzipiell möglich sein, dieses Problem in absehbarer Zeit zu beseitigen.

Schließlich fällt auf, daß beim Vergleich von veröffentlichten Ergebnissen die gesputterten SiO_2 -Oberflächen bei vergleichbaren Sputterenergien und Ionendosen eine Fluktuation der RMS von $\Delta\text{RMS} = 0.9 \text{ nm}$ aufweisen. Es gibt bei SiO_2 -Oberflächen nachgewiesenermaßen eine starke Korrelation zwischen Oberflächenbeschaffenheit und Oxidschichtdicke bzw. deren Entstehungsprozeß. Bei der thermischen Oxidation einer Siliziumoberfläche kann mit wachsender Oxidschicht eine rauhe Ausgangsoberfläche glatter und eine glatte Ausgangsoberfläche rauher werden. Es zeigt sich, daß die mittlere Rauigkeit einer SiO_2 -Oberfläche gegen einen RMS-Wert von etwa 0.3 nm konvergiert. Man kann sagen, das thermodynamische Gleichgewicht der Oberflächenstruktur einer SiO_2 -Schicht stellt sich ein. Wie diese Rauigkeitsentwicklung vor sich geht hängt vom Oxidationsprozeß ab. Das heißt aber, daß bei Glättungsexperimenten an SiO_2 -Oberflächen die Oxidbildung unbedingt berücksichtigt werden muß, da es ja um Glättung in genau diesem Rauigkeitsbereich geht. Die Oxidschichtbildung überdeckt also gegebenenfalls die Glättung durch das Sputtern.

Als Resümee und zugleich Ausblick bleibt zu sagen, daß mit der Entwicklung der Clustersputter-Apparatur in der vorliegenden Arbeit und den ersten erfolgreichen Ergebnissen eine Basis geschaffen ist, mit dieser Maschine vollständige systematische Untersuchungen zum Glätten von Oberflächen auf der Sub-Nanometer-Skala zu machen. Das ist wichtig,

ZUSAMMENFASSUNG & AUSBLICK

weil hierfür ein großes technologisches Interesse besteht. Hier bleibt nämlich die Frage zu klären, ob das Clustersputtern als Polierwerkzeug für zukünftige EUVL-Optikkomponenten eingesetzt werden kann. Doch auch in der Grundlagenforschung sind weiterhin systematische Studien notwendig, da eine experimentelle Bestätigung der aktuellen Modellvorstellung vom Clustersputterprozeß als Materialumverteilung noch aussteht. Bisher wurden experimentell immer die aus dem Clustersputterprozeß resultierenden Effekte studiert. So scheint es nun sinnvoll, die Größen Druck und Temperatur während des Sputterprozeßes zu beobachten. Es ist zu überlegen, ob man über Lichtspektroskopie – während des Clustersputterns leuchtet es sichtbar – diese Parameter messen kann. Schließlich ist das bisherige Bild vom Clustersputtern doch sehr mechanisch. Man würde eigentlich eine thermodynamische Beschreibung intuitiv bevorzugen.

Literaturverzeichnis

- [Abra1981] O.Abraham et al. Phys. Fluids **24**(6) (1981) 1017
- [Aoki1997] T.Aoki, J.Matsuo, Z.Insepov, I.Yamada. Nucl. Instrum. and Meth. in Phys. Res. **B 121** (1997) 49
- [Aoki1998] T.Aoki, T.Seki, J.Matsuo, Z.Insepov, I.Yamada. Material Chemistry and Physics **54** (1998) 139
- [Aoki2000] T.Aoki. Dissertation, Kyoto University (2000)
- [Bech2000] C.Bechinger, H.Muffler, C.Schäfle, O.Sundberg, P.Leiderer. Thin Solid Films **366** (2000) 135
- [Beck1963] P.Beckmann and A.Spizzichino. Pergamon Press, Oxford, (1963)
- [Beuh1986] R.Beuhler, L.Friedman. Chem. Rev. **86** (1986) 521
- [Binn1982a] G.Binnig, H.Rohrer, Ch.Gerber, E.Weibel. Appl. Phys. Lett. **40** (1982) 178
- [Binn1982b] G.Binnig, H.Rohrer, Ch.Gerber, E.Weibel. Phys. Rev. Lett. **49** (1982) 57
- [Binn1983] G.Binnig, H.Rohrer, Ch.Gerber, E.Weibel. Phys. Rev. Lett. **50** (1983) 120
- [Binn1986] G.Binnig, C.F.Quate, Ch.Gerber. Phys. Rev. Lett. **56** (1986) 930
- [Boeh1999] G.Boehm, W.Frank, A.Schindler, A.Nickel, H.-J.Thomas, F.Bigl, M.Weiser. Y.Furukawa, Y.Mori and T.Kataoka (Eds.) Precision Science and Technology for Perfect Surfaces. Jpn. Soc. for Prec. Eng. Tokyo (1999) 231 Proc. of the 9th ICPE
- [Brow1995] W.L.Brown, M.Sosnowski. Nucl. Instrum. and Meth. in Phys. Res. **B 102** (1995) 305
- [Buck2001] http://buckminster.physics.sunysb.edu/images/endohedral_yellowball.jpg
- [Bukh1997] A.A.Bukharaev, D.V.Ovchinnikov, A.A.Bukharaeva. Industrial Laboratory (Diagnostic of Materials) **63**(5) (1997) 10
- [Chur1989] E.L.Church and P.Z.Takacs. SPIE X-Ray/EUV Optics for Astronomy and Microscopy, **1160** (1989) 323
- [Chur1991] E.L.Church and P.Z.Takacs. SPIE Optical Scatter: Applications, Measurements and Theory, **1530** (1991) 71
- [Chur1995] E.L.Church and P.Z.Takacs. Handbook of Optics Vol.1 (McGraw-Hill, 1995)
- [deKo1979] P.A.J. de Korte and R.Lainé. Applied Optics **18**(2) (1979) 236
- [Demt1987] W.Demtröder, H.Foth. Physikal. Blätter, **43**(1) (1987)
- [Dett1988] G.Dettlef and C.Dankert. Aerodynamische Versuchsanstalt Göttingen (1988)
- [Deum1996] C.Deumié, R.Richier, P.Dumas and C.Amra. Applied Optics **35**(28) (1996) 5583

LITERATURVERZEICHNIS

- [Dres2001] M.S.Dresselhaus. *Carbon nanotubes: synthesis, structure, properties, and applications*. Berlin, Heidelberg, New York; Tokyo: Springer (2001)
- [Digi1997] *Nanoscope Command Reference Manual*, Version 4.22ce. Digital Instruments, Inc. (1997)
- [DiFi2000] V.DiFilippo, A.Saigal, B.M.Zide. The Third World Congress on Intelligent Manufacturing Processes & Systems, Cambridge, Massachusettes/USA, Proceedings (2000)
- [Elso1978] J.M.Elson and J.M.Bennett. Applied Optics and Optical Engineering edited by R.R.Shannon and J.C.Wyant. Academic Press, New York, Vol.7 (1978)
- [Elso1979] J.M.Elson and J.M.Bennett. Optical Engineering **18**(2) (1979) 116
- [Echt1982] O.Echt, K.Sattler and E.Recknagel. Am. Phys. Soc. **49**(25) (1982) 1857
- [Fenn2000a] D.B.Fenner, R.P.Torti, L.P.Allen, N.Toyoda, A.R.Kirkpatrick, J.A.Greer, V.DiFillipo, J.Hautala. Material Research Society Symposium Proceedings, Volume **585** (2000)
- [Fenn2000b] D.B.Fenner, J.Hautala, L.P.Allen, J.A.Greer, W.J.Skinner. Material Research Society Symposium Proceedings, Volume **614** (2000)
- [Gall1991] G.M.Gallatin. J. Opt. Soc. Am. **A 8**(1) (1991) 97
- [Gant1998] G.Ganteför. Skript zur Vorlesung. Universität Konstanz (1998)
- [Gao2000] M.Gao, C.Lesser, S.Kirstein, H.Möhwald, A.L.Rogach, H.Weller. J. Appl. Phys. **87** (2000) 2297
- [Gerh2000] P.W.Gerhardt. Diplomarbeit. Fachbereich Physik, Universität Konstanz (2000)
- [Hans1994] P.K.Hansma, J.P.Cleveland et al. Appl. Phys. Lett. **64** (1994) 1738
- [Habe1994a] H.Haberland, M.Mall, M.Moseler, Y.Qiang, T.Reiners and Y.Thurner. J. Vac. Sci. Technol. **A 12**(5) (1994) 2925
- [Habe1994b] H.Haberland. *Clusters of Atoms and Molecules*. Springer Ser.Chem.Phys. Springer Verlag, Berlin, Heidelberg (1994)
- [Habe1995] H.Haberland, Z.Insepov and M.Moseler. Phys. Rev. **B 51**(16) (1995) 11061
- [Habe1996] H.Haberland, M.Moseler, Y.Qiang, O.Rattunde, T.Reiners and Y.Thurner. Surf. Rev. and Lett., **3**(1) (1996) 887
- [Hage1987] O.F.Hagena. Z.Phys. D – Atoms, Molecules and Clusters **4** (1987) 291
- [Hage1992] O.F.Hagena. Rev. Sci. Instr. **63**(4) (1992) 2374
- [Henk1989] W.Henkes, R.Klingelhofer. Vacuum **39** (1989) 541
- [Henk1995] W.Henkes, B.Krevet. J. Vac. Sci. Technol. **A 13**(4) (1995) 2133
- [Holz1978] J.A.Holzer, C.C.Sung. J. Appl. Phys. **49** (1978) 1002
- [IBM2001a] <http://www.research.ibm.com/nanoscience/fet.html>
- [IBM2001b] <http://www.research.ibm.com/nanoscience/rings.html>
- [Inse1995] Z.Insepov, I.Yamada. Nucl. Instrum. and Meth. in Phys. Res. **B 99** (1995) 248
- [Inse1996] Z.Insepov, I.Yamada. Nucl. Instrum. and Meth. **B 112** (1996) 16

LITERATURVERZEICHNIS

- [Inse1997a] Z.Insepov, M.Sosnowski, I.Yamada. Nucl. Instrum. and Meth. in Phys. Res. **B 127/128** (1997) 269
- [Inse1997b] Z.Insepov, I.Yamada, M.Sosnowski. J. Vac. Sci. Technol. **A 15**(3) (1997) 981
- [Inse1998] Z.Insepov, I.Yamada, M.Sosnowski. Material Chemistry and Physics **54** (1998) 234
- [Inse1999] Z.Insepov, I.Yamada. Nucl. Instrum. and Meth. in Phys. Res. **B 148** (1999) 121
- [Isra1992] J.Israelachvili. *Intermolecular and surface forces*. Academic Press. New York (1992)
- [Kana1973] K.Kanaya, K.Houjou, K.Koga, F.Toki. Jpn. J. Appl. Phys. **12** (1973) 1297
- [Kim1999] C.-K.Kim, A.Kubota, D.J.Economou. J. Appl. Phys., Vol. **86**(12) (1999) 6758
- [Kita1997] H.Kitani, N.Toyoda, J.Matsuo, I.Yamada. Nucl. Instrum. and Meth. in Phys. Res. **B 121** (1997) 489
- [Klip2000] B.Klipp. Dissertation, Fachbereich Physik, Universität Konstanz (2000)
- [Krät1990] W.Krätschmer, L.D.Lamb, K.Fostiropoulos, D.R.Huffman. Nature **347** (1990) 354
- [Krot1985] H.W.Kroto, J.R.Heath, S.C.O'Brian, R.F.Curl, R.E.Smalley. Nature **318** (1985) 162
- [Land1959] L.D.Landau, E.M.Lifshitz. *Fluid Mechanics*. Pergamon Press (1959)
- [Lead1971] J.C.Leader. J. Appl. Phys. **42** (1971) 4808
- [Mats1997] J.Matsuo, N.Toyoda, M.Akizuki, I.Yamada. Nucl. Instrum. and Meth. in Phys. Res. **B 121** (1997) 459
- [Matt1986] M.W.Matthew, R.J.Beuhler, M.Ledbetter, L.Friedman. J. Phys. Chem. **90** (1986) 3152
- [Mose1998] M.Moseler, O.Rattunde, J.Nordiek and H.Haberland. Comp. Mat. Sci. **10** (1998) 452
- [Mose2000] M.Moseler, O.Rattunde, J.Nordiek, H.Haberland. Nucl. Instrum. and Meth. in Phys. Res. **B 164-165** (2000) 522
- [Müll2001] J.Müller. Dissertation, Fachbereich Physik, Universität Konstanz (2001)
- [Murp1988] Murphy. Vol.1, G.Scoles et al. Eds., Oxford University Press (1988)
- [Nolt1994] W.Nolting. *GRUNDKURS: THEORETISCHE PHYSIK. Band 6*. 1.Auflage. Verlag Zimmermann-Neufang, Ulmen (1994)
- [Noma1955] G.Nomarki and A.R.Weill. Rev.Metall **LII2** (1955) 121
- [Ober1979] W.Obert, R.Campargue ed. 11.Symposium on Rarefied Gas Dynamics (1979) 1181
- [Ohne1994] F.Ohnesorge. Dissertation, Fakultät für Physik, LMU München (1994)
- [Okad1998] Y.Okada, S.Isomura, K.Ashimine, K.Takeuchi. Appl.Phys. **B 67** (1998) 247
- [Putm1994] C.A.J.Putman, K.O.Van der Werf, B.G.De Grooth, N.F.Van Hulst. Appl. Phys. Lett. **64** (1994) 2454

LITERATURVERZEICHNIS

- [Qian1998] Y.Qiang, Y.Thurner, T.Reiners, O.Rattunde and H.Haberland. Surface and Coatings Technology **100-101** (1998) 27
- [Reck1995] E.Recknagel. *Clusterphysik*. Skript zur Vorlesung. Universität Konstanz (1995)
- [Roga1999] A.L.Rogach, A.Eychmüller, J.Rockenberger, A.Kornowski, H.Weller, L.Tröger, M.Gao, M.T.Harrison, S.V.Kershaw, M.G.Burt. MRS Symp.Proc., Vol. **536**, p.365, Ed.:M.J.Sailor, C.C.Tsai, L.T.Canham, K.Tanaka, Materials Research Society, Pittsburgh (1999)
- [Roga2000] A.L.Rogach. Mater. Sci. Eng. **B 69-70** (2000) 435
- [Schm2001] G.Schmahl, D.Rudolph, B.Lengeler, C.Schroer. Physikal. Blätter **57**(1) (2001) 43
- [Schü1992] S.Schütte. Diplomarbeit, Universität Göttingen (1992)
- [Schü1996] S.Schütte. Dissertation, Universität Göttingen (1992)
- [Sigm1969] P.Sigmund. Phys. Rev. **184** (1969) 383
- [Sigm1973] P.Sigmund. J. Mater. Sci. **8** (1973) 1545
- [Stea1992] D.G.Stearns. J. Appl. Phys. **71** (1992) 4286
- [Stol1998] D.Stolcic. Diplomarbeit. Fakultät für Physik, Universität Konstanz (1998)
- [Stol2000] D. Stolcic. Persönliche Mitteilung (2000)
- [Sung1978] C.C.Sung, W.D.Eberhardt. J. Appl. Phys. **49** (1978) 994
- [Tama1996] J.Tamayo, R.Garcia. Langmuir **12**(18) (1996) 4430
- [Take1997] D.Takeuchi, N.Shimada, J.Matsuo, I.Yamada. Nucl. Instrum. and Meth.in Phys. Res. **B 121** (1997) 345
- [Toyo1997] N.Toyoda, H.Kitani, J.Matsuo, I.Yamada. Nucl. Instrum. and Meth. in Phys. Res. **B 121** (1997) 484
- [Toyo1998a] N.Toyoda, H.Kitani, N.Hagiwara, J.Matsuo, I.Yamada. Material Chemistry and Physics **54** (1998) 106
- [Toyo1998b] N.Toyoda, H.Kitani, N.Hagiwara, T.Aoki, J.Matsuo, I.Yamada. Material Chemistry and Physics **54** (1998) 262
- [Toyo2000a] N.Toyoda, K.K.Lee, H.-C.Luan, D.R.Lim, A.M.Agarwal, K.Wada, L.C.Kimerling, L.P.Allen, D.B.Fenner, A.R.Kirkpatrick. Material Research Society Symposium Proceedings, Volume **597** (2000)
- [Toyo2000b] N.Toyoda, N.Hagiwara, J.Matsuo, I.Yamada. Nucl. Instrum. and Meth. in Phys. Res. **B 161-163** (2000) 980
- [Welf1977] W.T.Welford. Optical and Quantum Electronics **9** (1977) 269
- [Well2001] <http://www.chemie.uni-hamburg.de/pc/Weller>
- [Wind1994] D.L.Windt, W.K.Waskiewicz, J.E.Griffith. Applied Optics **33**(10) (1994) 2025
- [Yama1995] I.Yamada, J.Matsuo, Z.Insepov, M.Akizuki. Nucl. Instrum. and Meth. in Phys. Res. **B 106** (1995) 165
- [Yamag1995] T.Yamaguchi, J.Matsuo, M.Akizuki, C.E.Ascheron, G.H.Takaoka, I.Yamada. Nucl. Instrum. and Meth. in Phys. Res. **B 99** (1995) 237

LITERATURVERZEICHNIS

- [Yama1996] I.Yamada, J.Matsuo, Z.Insepov, D.Takeuchi, M.Akizuki, N.Toyoda. J. Vac. Sci. Technol. **A 14**(3) (1996) 781
- [Yama1999] I.Yamada. Eur.Phys.J.**D 9** (1999) 55
- [Yama2000] I.Yamada, J.Matsuo, Z.Insepov, T.Aoki, T.Seki, N.Toyoda. Nucl. Instrum. and Meth. in Phys. Res. **B 164-165** (2000) 944
- [Zeis2001a] <http://www.zeiss.de>
- [Zeis2001b] <http://www.zeiss.de/de/semicon/home.nsf>
- [Zhon1993] Q.Zhong, D.Innis, K.Kjoller, V.Elings. Surf.Sci. **290** (1993) L688
- [Zier1993] J.Zierep. *Grundzüge der Strömungslehre*. 4.Auflage, Springer Verlag (1993)
- [Zimm1998] J.Zimmermann. Diplomarbeit, Fakultät für Physik, Universität Konstanz (1998)

Danksagung

- Bei Herrn Prof. Dr. Gerd Ganteför bedanke ich mich zunächst für die Aufnahme in seine Arbeitsgruppe und die Stellung eines Promotionsthemas an einem Industrie-Projekt. Gerade die Einbindung in eine Kooperation mit einer Firma war für mich eine wertvolle Erfahrung. Weiter möchte ich mich für die unkonventionelle Arbeitsatmosphäre, seine direkte Ansprechbarkeit bei Problemen und die Unterstützung in einigen kritischen Phasen bedanken.
- Bei Herrn Prof. Dr. Paul Leiderer bedanke ich mich für die großzügige Bereitstellung des Interferometers und des Atomkraftmikroskops seines Lehrstuhls. Darüberhinaus möchte ich mich bei ihm für beratende Gespräche, sowie seine Bereitschaft, Gutachter dieser Arbeit zu sein, bedanken.
- Der Firma Carl Zeiss in Oberkochen danke ich für die finanzielle Förderung des Clusterspitter-Projektes über drei Jahre hinweg. An dieser Stelle ist aber besonders Herr Dr. Martin Weiser als „Kontaktmann“ zu nennen, der uns durch Diskussionen und seinen unumstößlichen Optimismus sehr unterstützt hat.
- Der gesamten Arbeitsgruppe AG Ganteför mit allen ehemaligen und den derzeitigen Mitarbeitern danke ich für die gute Atmosphäre und die große gegenseitige Hilfsbereitschaft bei allen möglichen Labor- und Computerproblemen. Da habe ich jede Menge gelernt. Hier möchte ich mich namentlich auch bei Herrn Dipl.-Phys. Martin Grass für die XPS-Analysen bedanken.
- Den hilfsbereiten und zugleich gnadenlosen Korrektoren dieser Arbeit, Herrn Dipl.-Phys. Davor Stolić und Herrn Dipl.-Phys. Peter Gerhardt, danke ich für ihre Detailkritik und daß sie den gewaltigen Leseaufwand bei diesem *großen* Werk auf sich genommen haben. Außerdem bedanke ich mich bei beiden für die etwas mehr als drei Jahre dauernde gute und freundschaftliche Laborgemeinschaft (*oder Schicksalsgemeinschaft?*).
- Mein Dank gilt auch Claudia Schäfle vom LS Prof. Leiderer, die mir beim Arbeiten am AFM oftmals zur Seite stand. Auch gerade das *persönliche Gespräch unter Frauen* war stets ein Grund AFM-Aufnahmen zu machen. Dem gesamten LS Leiderer sei an dieser Stelle für die ausgesprochen gute Atmosphäre in P9 gedankt.
- Bei den Mitarbeitern der Werkstätten bedanke ich mich für die gute Zusammenarbeit, auch fachliche Beratung und den stets freundlichen Umgangston - schließlich und vor allem aber für die prompte Erledigung ständiger Eilaufträge.

- Von meinen *sozialen Kontakten* innerhalb der Universität möchte ich ganz besonders Frau Dipl.-Phys. Marianne Pleines erwähnen. *Was wäre, wenn wir nicht gemeinsam Kernphysik-Übungen abgehalten hätten ...* bei ihr bedanke ich mich für die besonders herzliche und intensive Anteilnahme in der Schlußphase meines Zusammenschreibens und denke gerne an die unsere Arbeitsfrühstücke.
- Dankbar darf ich auch für ein ausgesprochen großes soziales Umfeld während der Promotion sein. Dieses umfaßt viele gute Bekannte, einige sehr gute Freunde und viel Musik. Insbesondere dem kirchenmusikalischen Umfeld mit einigen für mich wichtigen Personen verdanke ich nicht nur meine musikalische Entfaltungsmöglichkeit, sondern auch, daß ich in mancherlei Krisen durchgehalten habe.
- Schließlich gilt ein großer Dank meiner Familie. Wären meine Eltern und meine Zwillingschwester während der Promotionszeit nicht so hinter mir gestanden und hätten sie mich nicht immer wieder ermutigt und unterstützt, dann gäbe es diese Arbeit hier vermutlich nicht