

Einfluss von Alkalikoabsorption auf die Chemie von Wasser und Stickoxiden auf Siliziumoberflächen

Zusammenfassung

Im Rahmen dieser Arbeit wurde der Einfluss einer durch Alkalikoabsorption induzierten Veränderung der elektronischen Struktur des Substrates auf die Photochemie der adsorbierten Moleküle D_2O und NO untersucht. Dazu wurden zunächst die Systeme $Si(100)-(2 \times 1):H/D_2O$ und $Si(100)-(2 \times 1)/NO$ bezüglich ihrer thermodynamischen Eigenschaften, im Sinne von Desorptionsenergien, bezüglich ihrer schwingungsspektroskopischen und photochemischen Eigenschaften untersucht.

Für die mit Cäsium bedeckte Oberfläche konnten TPD- und EELS-Spektren erhalten werden, die über einen Vergleich zu dem aus der Literatur bekannten $K/Si(100)-(2 \times 1)(H)$ -System Ähnlichkeiten, aber auch Unterschiede offenbarten. Die Adsorption von D_2O auf die alkalibedeckte Oberfläche führt zur Ausbildung von D_2O -Dissoziationsprodukten, welche mit Cäsium einen Komplex der Form $Cs_xO_y(OD)_z$ bilden. Weiterhin bilden sich D_2O -Hydrathüllen und für höhere Wasserbedeckungen amorphe Eisfilme aus. Es konnte die Bildung einer Spezies mit $m/e = 17$ im TPD nachgewiesen werden, die einer Reaktion einer Cäsiumoxidstruktur mit der Wasserstoffpassivierung der Siliziumoberfläche zugesprochen wurde. Die wasserstoffpassivierte Siliziumoberfläche zeigte auch mit zusätzlicher Alkalikoabsorption, bezogen auf das Adsorbat D_2O , keine photochemische Aktivität. Dieses korrespondierte mit einer Nichtexistenz elektronischer Übergänge, wie sie im Bereich der elektronischen Anregung im EELS in einem Energiebereich bis 10 eV beobachtbar sind.

Für die Adsorption von NO auf der $Si(100)-(2 \times 1)$ -Oberfläche konnte die aus der Literatur bekannte teilweise molekulare und dissoziative Adsorption des NO bestätigt werden. Für die NO -Adsorption auf eine mit Cäsium bedeckte $Si(100)-(2 \times 1):H$ -Oberfläche wurde teilweise NO -Dissoziation gefunden. Es wurde die Ausbildung eines $Cs_xN_yO_z$ -Komplexes postuliert, der die Cäsiumschicht gegen Desorption stabilisiert, d. h. die Cäsiumdesorption zu höheren Temperaturen verlagert.

Die Rekombination der NO Dissoziationsprodukte liefert im wesentlichen N_2 und N_2O und zu einem geringeren Anteil NH_3 und NO_2 . Ein Teil des durch Dissoziation des NO entstehenden Sauerstoffs oxidiert die Siliziumoberfläche, was erkennbar ist an der Intensitätszunahme des Desorptionssignals bei ~ 980 K, welches der Desorption der Siliziumoxidschicht zuzuordnen ist, und an der Sauerstoffbilanz für das $Cs/Si(100)-(2 \times 1):H/NO$ -System.

Für die Oberflächen $Cs/Si(100)-(2 \times 1):H/D_2O$ und $Cs/Si(100)-(2 \times 1):H/NO$ übersteigt der Cäsiumgehalt der gebildeten Cäsiumkomplexe den Gehalt an Sauerstoff bzw. Sauerstoff und Stickstoff um fast eine Größenordnung.

Die durch Cäsiumadsorption induzierte Veränderung der Substratbandstruktur äußerte sich in der Bildung eines Oberflächenplasmonenpeaks im Bereich elektronischer Anregung im EELS. Dieser verschwindet allerdings im Falle sowohl der D_2O - als auch der NO -Adsorption. Für das $Cs/Si(100)-(2 \times 1):H/NO$ -System zeigt sich die Bildung eines Verlustes bei einer Energie von ~ 4.6 eV.

Das Bestrahlen der $Cs/Si(100)-(2 \times 1):H/NO$ Oberfläche führt zur Oxidation des Siliziumsubstrates, was aus den EELS-Spektren im Bereich der Schwingungsanregung aus einer Peakverschiebung der NO -Streckschwingung geschlossen werden konnte.

Bezüglich der photoneninduzierten Desorption zeigte ein Vergleich der Geschwindigkeitsverteilung photodesorbierender Teilchen von der $Si(100)-(2 \times 1)/NO$ -Oberfläche zum einen und von der $Cs/Si(100)-(2 \times 1):H/NO$ -Oberfläche zum anderen keinen Unterschied. Ein aus TPD-Daten gewonnener Vergleich der Photowirkungsquerschnitte offenbarte allerdings eine grössere Effizienz für die Photodesorption im Falle des cäsiumbedeckten Systems. Der Desorptionsprozess wird in beiden Fällen einem substratinduzierten Loch-Mechanismus zugesprochen.