

4 Filmwachstum

Wenn Teilchen auf einer Oberfläche adsorbieren und Schichten bilden, interessiert insbesondere die Art des Filmwachstums. Für viele Anwendungen wünscht man sich eine glatte, homogene und möglichst dünne Schicht. Die Parameter, mit denen das Filmwachstum kontrolliert werden kann, sind die Substrattemperatur, die Auswahl des Substrates und seiner Oberflächenorientierung sowie der Teilchenfluss des Adsorbates. Der Einfachheit halber wird in der folgenden Betrachtung angenommen, dass die Desorption vernachlässigbar ist und ein auftreffendes Teilchen auch haften bleibt, mithin der Haftkoeffizient (als Wahrscheinlichkeit des Haftenbleibens) eins beträgt. Streng genommen gelten die folgenden Ausführungen nur für homoatomare Adsorbatphasen (z.B. Metalle auf Metallen), sind aber im weiten Sinne auf oxidische Systeme übertragbar. Eine gute Übersicht über das Wachstum von Oxidfilmen bietet der Artikel von S.A. Chambers [44].

4.1 Thermodynamische Betrachtung des Filmwachstums

Betrachtet man das Filmwachstum rein thermodynamisch [45], so entscheiden fünf wesentliche Größen über die Art des Filmwachstums: das chemische Potential der einzelnen Adsorbatatome auf der Oberfläche μ_0 , das chemische Potential eines Adsorbat-Kristalls μ , die Oberflächenenergie des Substrates σ_s und des Adsorbates σ_A sowie die Grenzflächenenergie σ_I . Beschränkt man sich darauf, dass die Phase der einzelnen Adsorbatatome übersättigt sein soll, d. h. $\mu_0 > \mu$ gilt, kann man drei Fälle unterscheiden:

- a) $\sigma_s > \sigma_A + \sigma_I$: Hierbei entscheidet das Größenverhältnis von σ_A und σ_I darüber, ob zuerst eine monoatomare oder eine mehratomare Schicht aufwächst, auf der dann dreidimensionales Kristallwachstum einsetzt.
- b) $\sigma_s = \sigma_A + \sigma_I$: Hier können sich zweidimensionale Flächenkeime ausbilden, nach Bildung der ersten monoatomaren Lage wächst nur bei $\sigma_I = 0$ wieder eine monoatomare Schicht, bei $\sigma_I \neq 0$ entstehen dreidimensionale Inseln.
- c) $\sigma_s < \sigma_A + \sigma_I$: Es wachsen dreidimensionale Inseln auf.

Dies führt zu den drei unterschiedlichen thermodynamischen Wachstumsmodi, die in Abbildung 4.1-1 dargestellt sind:

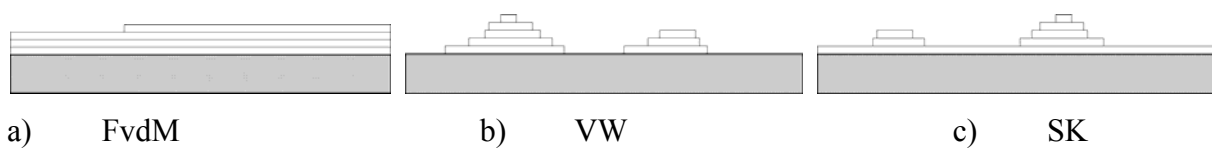


Abbildung 4.1-1: Die drei thermodynamischen Wachstumsmodi

Frank-van der Merwe (FvdM) ist das Lagenwachstum (Lage für Lage; Fall b), Volmer-Weber (VW) das Inselwachstum (Fall a oder c) und Stranski-Krastanov (SK) das anfängliche Lagen- und dann Inselwachstum (Fall a oder b).

Die Grenzflächenenergie σ_f kann experimentell nicht ermittelt werden, aber einige Abschätzungen können vorgenommen werden: Kommt es während des Aufdampfens der Adsorbatphase zu einer Reaktion zwischen Substrat und Adsorbat, dann ist $\sigma_f < 0$. Für Adsorbatphasen, die sich nur im Gitterparameter unterscheiden, kann man davon ausgehen, dass die Grenzflächenenergie der Phase mit der besseren Gitteranpassung kleiner ist.

4.2 Mikroskopisch kinetische Betrachtung des Filmwachstums

Für die thermodynamische Betrachtungsweise ist es Voraussetzung, dass sich das System nahe am thermodynamischen Gleichgewicht befindet. Mikroskopisch gesehen findet Filmwachstum durch Auftreffen der Teilchen auf der Oberfläche und anschließende Diffusion dieser Teilchen statt. Diese Diffusion muss im thermodynamischen Fall ungehemmt und schneller als der Teilchenfluss sein. Dies ist aber eher selten der Fall. Die Diffusion auf Oberflächen wird im Wesentlichen durch die Temperatur und die Stärke der Bindung der Adsorbatteilchen an unterschiedliche Adsorptionsplätze bestimmt. Zum ersten muss man zwischen intrinsischer Diffusion und transitorischer Mobilität der Adsorbatteilchen unterscheiden. Letztere ist durch die kinetische Energie (Temperatur) der ankommenden Teilchen, die Adsorptionsenergie sowie die Substrattemperatur bestimmt. Nachdem diese äquilibriert sind, findet nur noch intrinsische Diffusion statt. Diese wird nach den unterschiedlichen Adsorbatplätzen eingeteilt in Oberflächendiffusion (zweidimensionale Diffusion auf Terrassen), Stufenkantendiffusion (sowohl eindimensional entlang der Stufenkanten als auch über eine solche auf die nächste Terrasse) sowie Volumendiffusion. Letztere spielt insbesondere bei Oxiden eine große Rolle [46]. Für die Oberflächendiffusion erhält man unter Annahme einer Boltzmann-Verteilung für Platzwechselwahrscheinlichkeiten

mit Einbeziehung der Theorie des Übergangszustandes und des mittleren Verschiebungsquadrates nach Einstein den Diffusionskoeffizienten D:

$$D = \frac{\nu_0 a^2}{2\alpha} e^{-\frac{\Delta E_{Diff}}{kT}}, \quad (1)$$

mit dem Adsorptionsplatzabstand a , dem Frequenzfaktor ν_0 , der Platzwechselenergie ΔE_{Diff} und der Symmetriezahl α (im eindimensionalen Fall gleich 2) [47]. Ist $\Delta E_{Diff} \ll kT$, so kann sich das Adsorbateilchen frei auf der Oberfläche bewegen.

Ist die Diffusion auf der Oberfläche durch äquivalente Adsorptionsplätze gekennzeichnet, so sind diese entlang einer Stufenkante bzw. quer zu einer Stufenkante nicht gleich. Im Allgemeinen sind die Adsorbateilchen an höher koordinierten Plätzen stärker gebunden. Einen Sonderfall stellt die Diffusion über eine Stufenkante dar. Sie wurde 1966 von Ehrlich und Hudda experimentell beobachtet [48] und von Schwoebel theoretisch gedeutet [49]. In Abbildung 4.2-1 ist der Potentialverlauf über eine solche Ehrlich-Schwoebel-Barriere dargestellt:

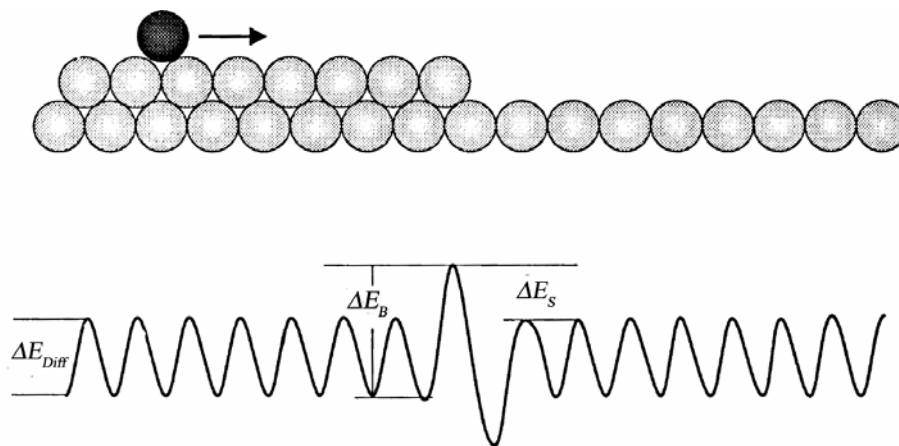


Abbildung 4.2-1: Potentialverlauf der Ehrlich-Schwoebel-Barriere

Die Platzwechselenergie ist ΔE_{Diff} , ΔE_B die Energie der Stufenbarriere. Die Ehrlich-Schwoebel-Barriere ist als $\Delta E_S = \Delta E_B - \Delta E_{Diff}$ definiert. Die Folge ist ein Adsorptionsplatz höherer Bindungsenergie direkt vor der Stufenkante und eine erhöhte Barriere sowohl von der Terrasse nach unten als auch nach oben. Dieses Bild sieht man auch, wenn in der Rastertunnelmikroskopie (STM, siehe Kap. 5.4) der Potentialverlauf über eine Stufenkante vermessen wird. Gilt $\Delta E_{Diff} < kT < \Delta E_B$, kann Diffusion nur auf den Terrassen erfolgen, aber nicht über die Stufenkanten. Die Folge ist dreidimensionales Wachstum, genauer noch, es liegt ein Spezialfall des Wachstums ohne Diffusion vor [50]. Dies führt zu einer Poisson-

Verteilung der Inselflächen in Abhängigkeit von ihrer Höhe, wie später noch ausgeführt werden soll.

4.3 Volumendiffusion im Rutil

Eine wichtige Rolle im Filmwachstum von Titanoxiden spielt die Volumendiffusion, welche durch Diffusion von Gitterdefekten erfolgt.

Man unterscheidet zwischen Punktdefekten und mehrdimensionalen Defekten. Punktdefekte sind im Titanoxid Sauerstoff- und Titanfehlstellen, sowie Sauerstoff und Titan auf Zwischengitterplätzen. Wie Henderson [46] mittels massenmarkierter Experimente an gesputterten Rutiloberflächen zeigte, diffundieren keineswegs nur Sauerstoff und Sauerstofffehlstellen, sondern in hohem Maße auch Titankationen. Eine Besonderheit der Titanoxide ist die Bildung einer Vielzahl von kristallographischen Scherungsflächen (siehe Kap. 3). Diese Flächen sind Beispiel für mehrdimensionale Gitterdefekte, an denen Volumendiffusion stattfindet [51].

4.4 Modelle zum Schichtwachstum

Die ideale Methode zur Bestimmung des Wachstumsmodus ist die Rastertunnelmikroskopie (Kap. STM 5.4). Aber auch der Intensitätsverlauf eines XPS-Signals des Adsorbats während des Filmwachstums kann Aufschluss über den Wachstumsmodus geben:

Die Intensität des XPS-Signals des Adsorbats ist von der Schichtdicke (bzw. deren Verteilung) abhängig (Kap. 5.3.5.1). Die Schichtdickenverteilung sei definiert als die Verteilung der gesamten exponierten (unbedeckten) Fläche* auf Flächen mit jeweils gleicher Schichtdicke. In diesem Abschnitt sollen zwei Wachstumsmodelle vorgestellt werden, mit deren mathematischer Formulierung eine Berechnung der Schichtdickenverteilung und damit des Intensitätsverlaufs des XPS-Signals zu jedem Zeitpunkt des Schichtwachstums möglich ist. Während das erste Modell den physikalisch einfachen Gedanken des Wachstums ohne Diffusion verfolgt [52] (unter gewissen Einschränkungen ist allerdings laterale Diffusion erlaubt [53]), kann im zweiten Modell unter Veränderung nur eines Parameters die Filmmorphologie vom Lagenwachstum (Frank - van der Merwe - Wachstum) über gering ausgeprägtes dreidimensionales Wachstum bis zum fast ausschließlichen dreidimensionalen Wachstum (hohe „Adsorbattürme“) simuliert werden. Basis beider Modelle ist das simultane

* In der Literatur wird zur mathematischen Formulierung eher die gesamte Fläche (exponierte plus bedeckte) einer Lage genutzt [52,53].

Wachstum mehrerer Lagen. Diese Lagen sind uniform in dem Sinne, dass die Dicke jeder Lage gleich ist, und jede vollständig gefüllte Lage dieselbe Anzahl an Atomen enthält. Diese phänomenologische Betrachtung des Multilagenwachstums geht auf Kashchiev zurück [50]. Obwohl verschiedene Modelle für das Multilagenwachstum denkbar sind, wird in der Literatur der Spezialfall des Wachstumsmodells ohne Diffusion SM-Modus genannt (für *simultaneous multilayer growth*) [54].

Zur mathematischen Formulierung werden folgende Parameter eingeführt: t_{ML} sei die Zeit zum Füllen der ersten Monolage unter der Voraussetzung, dass ausschließlich die erste Lage gefüllt wird (d.h. Lagenwachstum, FvdM-Wachstum). Jede vollständige Lage soll immer aus n Atomen bestehen, die zusammen die Fläche A_{ML} besitzen. Die Schichtdicke einer Lage sei d_{ML} . Der (konstante) Teilchenfluss ist durch

$$\frac{\delta N}{\delta t} = \frac{n}{t_{ML}} \square \frac{A_{ML}}{t_{ML}} . \quad (2)$$

gegeben. Die einzelnen Lagen werden mit dem Index k vom Substrat aus gezählt, d.h. $k = 0$ ist das Substrat selbst, $k = 1$ die erste Schicht, k_{max} die oberste Schicht (mit größtem k) usw. $A^{exp}(d_k)$ ist die exponierte Fläche ($A^{ges}(d_k)$ die Gesamtfläche) der k -ten Lage mit der Schichtdicke $d_k = d_{ML} \cdot k$. Für die Summe aller exponierten Flächen gilt:

$$\sum_{k=0}^{k_{max}} A^{exp}(d_k) = A_{ML} . \quad (3)$$

4.4.1 Wachstumsmodell ohne Diffusion: Poisson-Verteilung

Wie bereits erwähnt, hat das erste Modell einen einfachen Gedankengang als Grundlage: Jedes Adsorbteilchen bleibt an dem Ort seines Auftreffens haften, es gibt also keinerlei Art von Diffusion. Der Ort des Auftreffens muss ein Adsorptionsplatz sein, und die Lagen sollen so gestapelt sein, dass die einzelnen Atome benachbarter Lagen direkt übereinander liegen, der Adsorptionsplatz also als „on top“ bezeichnet werden muss. Unter diesen Voraussetzungen folgt die Schichtdickenverteilung einer Poisson-Verteilung, wie nachfolgend gezeigt werden soll:

Beobachtet man einen Adsorptionsplatz innerhalb eines genügend kleinen Zeitfensters, so dass nur ein Teilchen auf die gesamte Fläche des Substrates auftrifft, dann ist $1/n$ die Wahrscheinlichkeit, dass dieses ankommende Teilchen auf dem beobachteten

Adsorptionsplatz landet. Entsprechend ist $(1 - 1/n)$ die Wahrscheinlichkeit, dass der Platz frei bleibt. Wenn N Teilchen ankommen, ist die Wahrscheinlichkeit, dass k Teilchen auf der beobachteten Stelle auftreten, gleich $P_N(k)$ mit:

$$P_N(k) = \binom{N}{k} \left(\frac{1}{n}\right)^k \left(1 - \frac{1}{n}\right)^{(N-k)}, \quad (4)$$

da es N über k Möglichkeiten gibt, in welcher Reihenfolge die k Atome ankommen und die Wahrscheinlichkeiten wegen der Unabhängigkeit der Einzelereignisse multipliziert werden dürfen. Es liegt also eine Binomialverteilung vor. Die Wahrscheinlichkeit $1/n$ ist eine sehr kleine Zahl, und N bewegt sich in der Größenordnung von n , ist also eine sehr große Zahl. Damit kann die Binomialverteilung näherungsweise durch deren Grenzwert für große n und N , die Poisson-Verteilung, ersetzt werden:

$$P_N(k) = \left(\frac{1}{n} N\right)^k \frac{e^{-\left(\frac{1}{n} N\right)}}{k!}. \quad (5)$$

Betrachtet man nun alle n Adsorptionsplätze, so ist es intuitiv verständlich, dass die exponierte Fläche $A^{\text{exp}}(d_k)$ der Schichtdicke $d_k = d_{ML} \cdot k$ genau n_k Adsorbateilchen enthält*:

$$n_k = n \cdot \left(\frac{1}{n} N\right)^k \frac{e^{-\left(\frac{1}{n} N\right)}}{k!}. \quad (6)$$

Daraus folgt unmittelbar für die exponierte Fläche $A^{\text{exp}}(d_k)$:

$$\frac{A^{\text{exp}}(d_k)}{A_{ML}} = \left(\frac{1}{n} N\right)^k \frac{e^{-\left(\frac{1}{n} N\right)}}{k!}. \quad (7)$$

Unter Berücksichtigung des (konstanten) Flusses (Gleichung (2)) ergibt sich nun zu einem beliebigen Zeitpunkt t des Aufdampfens für die exponierte Fläche $A^{\text{exp}}(d_k, t)$:

$$\frac{A^{\text{exp}}(d_k, t)}{A_{ML}} = \left(\frac{t}{t_{ML}}\right)^k \frac{e^{-\left(\frac{t}{t_{ML}}\right)}}{k!}. \quad (8)$$

In Abbildung 4.4-1 ist ein Beispiel der Schichtdickenverteilung für die aufgedampfte Menge von insgesamt drei Monolagen gezeigt:

* Mathematisch gesehen sind die n beobachteten Adsorptionsplätze so genannte unvereinbare Ereignisse, d.h. sie besitzen keine (nichtleere) Schnittmenge. Die kleinste (nichtleere) Schnittmenge wäre, dass ein und dasselbe Teilchen auf zwei beobachteten Adsorptionsplätzen landet. Deshalb dürfen die Wahrscheinlichkeiten der Einzelereignisse (Beobachtungsort) zum Gesamt ereignis addiert werden.

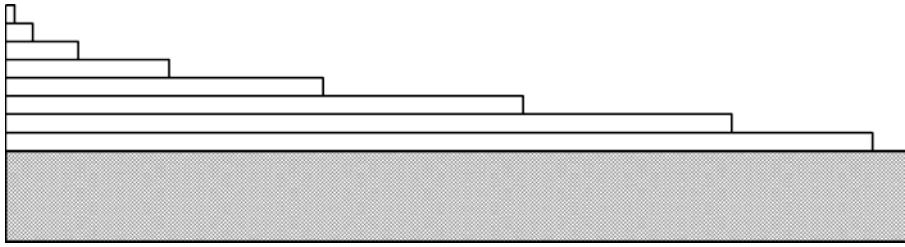


Abbildung 4.4-1: Schichtdickenverteilung für das Wachstum ohne Diffusion

Dieses Bild ist idealisiert in dem Sinne, dass sicherlich nicht nur *eine* Insel aufwachsen wird. Im Gegenteil, jede beliebige Inselverteilung, die in der Summe zu Abbildung 4.4-1 führt, besitzt diese Schichtdickenverteilung.

Kann man zu jedem Zeitpunkt t die noch unbedeckte (exponierte) Fläche des Substrates bestimmen, ist darüber $\frac{t}{t_{ML}}$ in Gleichung (8) ersetzbar, man ist also vom Fluss unabhängig

[55]:

$$\frac{A^{\text{exp}}(d_0, t) = A_s^{\text{exp}}(t)}{A_{ML}} = \left(\frac{t}{t_{ML}}\right)^0 \frac{e^{-\left(\frac{t}{t_{ML}}\right)}}{0!} = e^{-\left(\frac{t}{t_{ML}}\right)} \Rightarrow \frac{t}{t_{ML}} = -\ln\left(\frac{A_s^{\text{exp}}(t)}{A_{ML}}\right). \quad (9)$$

Unter geringen Einschränkungen gilt die Herleitung auch noch, wenn laterale Diffusion (Terrassendiffusion) zugelassen wird:

Das diffundierende Adsorbteilchen muss als Adsorptionsplatz zur Verfügung stehen und darf keine Adsorptionsplätze abschatten. Die zweite Forderung ist aber bereits in der ursprünglichen Voraussetzung enthalten, dass der Auftreffort des neu ankommenden Adsorbteilchens ein Adsorptionsplatz ist. Die eigentliche Einschränkung ist in der ersten Forderung enthalten: ein diffundierendes Teilchen muss nach Adsorption eines Teilchens „on top“ als „Doppeldecker“ einen Adsorptionsplatz erreichen, ohne zu zerfallen. Dies erscheint aber gegenüber der Voraussetzung des Adsorptionsplatzes als „on top“ vernachlässigbar. Es darf also lediglich keine Diffusion mit Teilchentransport von einer Lage zu einer anderen erlaubt sein [53].

4.4.2 Wachstumsmodell „Gleichmäßiges simultanes Multilagenwachstum“

Innerhalb dieses Modells wachsen alle noch nicht vollständigen Lagen lateral mit gleicher Geschwindigkeit (deshalb gleichmäßiges simultanes Multilagenwachstum). Die pro Zeitintervall aufgedampfte Stoffmenge wird also gleichmäßig auf alle nicht abgeschlossenen Lagen verteilt. Eine neue (oberste) Lage beginnt erst dann zu wachsen, wenn die direkt darunter liegende Lage eine durch den Parameter m bestimmte, auf die Monolage A_{ML}

bezogene Fläche erreicht hat. Es werden wiederum die Lagen vom Substrat aus beginnend mit k indiziert, ein Superindex w am Index k soll andeuten, dass k eine noch nicht abgeschlossene (wachsende) Lage ist, entsprechend bedeuten k_{\max}^w , k_{\min}^w die wachsende Lage mit größtem bzw. kleinstem k^w . Damit gilt für die Differenz der *Gesamtflächen* (A^{ges}) zweier aufeinander folgender, *wachsender* Lagen:

$$A^{\text{ges}}\left(d_{(k+1)^w}\right) = A^{\text{ges}}\left(d_{k^w}\right) - \frac{1}{m} \cdot A_{ML}, \quad (10)$$

wobei $A^{\text{ges}}\left(d_k\right)$ hier die *gesamte* Fläche der k^w -ten Lage mit der Schichtdicke $d_{k^w} = d_{ML} \cdot k^w$ meint. Diese einfache Gleichung (10) genügt als Definitionsgleichung des Modells des gleichmäßigen simultanen Multilagenwachstums. In Abbildung 4.4-2 ist für $m = 5$ das Wachstum der exponierten und der Gesamtfläche der ersten Lage in Abhängigkeit vom Fluss dargestellt. Die Anzahl der simultan wachsenden Lagen S_w ist durch:

$$S_w = \left(k_{\max}^w - k_{\min}^w + 1\right) \quad (11)$$

gegeben. Die Bedeutung des Parameters m besteht insbesondere darin, dass m die maximale Anzahl simultan wachsender Lagen darstellt: $1 \leq S_w \leq m$, diese wird in Abbildung 4.4-1 nach drei verdampften Monolagen erreicht.

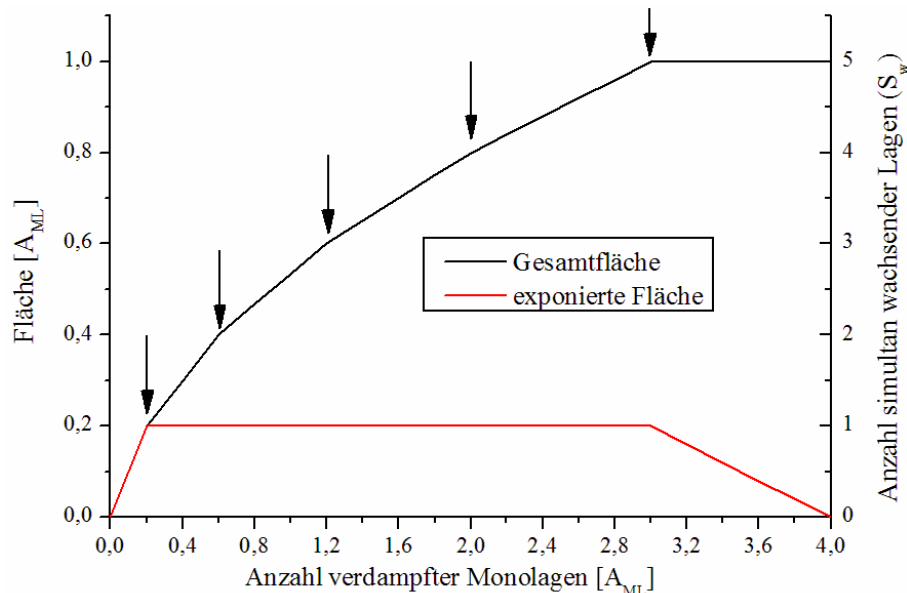


Abbildung 4.4-2: Verlauf der exponierten und Gesamtfläche der ersten Lage für $m = 5$. Die Anzahl simultan wachsender Lagen (S_w) ist immer aufzurunden, der Beginn des Wachstums einer neuen Lage ist mit Pfeilen markiert.

4.4.2.1 Beispiele für das gleichmäßige simultane Multilagenwachstum

In Abbildung 4.4-3 ist zur Veranschaulichung ein Beispiel für die Schichtdickenverteilung gezeigt:

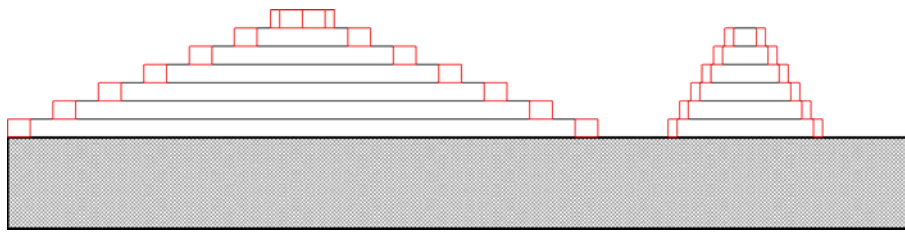


Abbildung 4.4-3: Schichtdickenverteilungsmodell für $m = 8$, schwarz gezeichnet sind die bereits entstandenen Inseln mit $S_w = 6$, rot die neu aufgedampfte Stoffmenge innerhalb eines bestimmten Zeitintervalls zu $S_w = 7$ führend.

In diesem Beispiel wachsen maximal acht Lagen simultan ($m = 8$). Die oberste Lage der bereits entstandenen Inseln $k_{\max}^w = 6$ hatte gerade die kritische Größe von $(1/8 A_{ML})$ erreicht, deshalb begann die nächste Lage zu wachsen. Es sei noch einmal daran erinnert, dass dies eine eher idealisierte Darstellung ist (nur zwei Inseln). Sie verdeutlicht aber, dass die entstehenden Inseln nicht notwendigerweise uniform aussehen, d.h. weder in der Höhe noch in der Terrassenbreite übereinstimmen müssen, Hauptsache für die Summe aller Flächen mit gleichem k^w gilt die Definitionsgleichung (11).

Dieses Modell beinhaltet mit $m = 1$ das Lagenwachstum (Frank-van der Merwe-Wachstum): Eine Lage beginnt erst zu wachsen, wenn die darunter liegende abgeschlossen ist. Die Variation der maximalen Anzahl der Lagen, die simultan wachsen, ist für eine jeweils verdampfte Stoffmenge von drei Monolagen für $m = 5$ bzw. $m = 10$ sowie die Poisson-Verteilung in Abbildung 4.4-4 dargestellt.

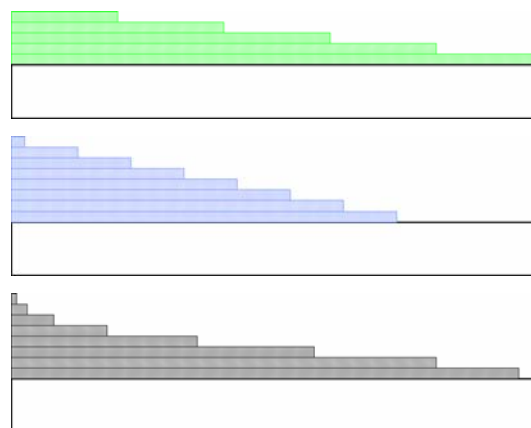


Abbildung 4.4-4: Für drei verdampfte Monolagenäquivalente sind die Schichtdickenverteilungen mit $m = 5$ (grün, erste Lage ist gefüllt, $S_w = m = 5$) und $m = 10$ (blau, $S_w = 8$) für das gleichmäßige simultane Multilagenwachstum und zum Vergleich für die Poisson-Verteilung (schwarz, $S_w = 8$) gezeigt.

Für $m > 1$ findet Inselwachstum (Volmer-Weber-Wachstum) statt. Je größer m ist, desto stärker ist das dreidimensionale Wachstum ausgeprägt. Eine Kombination aus zwei verschiedenen $m_{1,2}$ mit $m_1 = 1$ liefert das Stranski-Krastanov-Wachstum.

4.4.2.2 *Mathematische Formulierung des gleichmäßigen simultanen Multilagenwachstums*

Das Ziel der mathematischen Beschreibung ist es, zu jedem Zeitpunkt t des Filmwachstumsmodells für jede Schicht einer bestimmten Dicke die exponierte Fläche angeben zu können. Diese Fläche ist für alle *wachsenden* Lagen bis auf die oberste (k_{\max}^w -te Lage) konstant, wie man unmittelbar der Definitionsgleichung (10) entnimmt. Nach dem Füllen der ersten Lage nimmt die exponierte Fläche der jeweils gerade vollendeten Schicht allerdings ab und erreicht Null mit Wachstumsbeginn der nächsten Lage (siehe Abb. Wachstum 02). Damit ändert sich nach dem Füllen der ersten Lage immer die Größe zweier Flächen. Deshalb wird zuerst die Zeit zur Vollendung der ersten Lage t_{veL} bestimmt:

Betrachtet man das Wachstum vom Zeitpunkt Null an, stellt man für die Geschwindigkeit des lateralen Wachstums der ersten Lage $\frac{\delta A^{ges}(d_{1^w})}{\delta t}$ (das ist bei konstantem Fluss der jeweilige Anstieg in Abb. Modell 02) in Abhängigkeit vom Fluss (siehe Gl. (2)) und der Zahl der insgesamt gerade wachsenden Lagen S_w (Gl. (11)) fest:

$$\frac{\delta A^{ges}(d_{1^w})}{\delta t} = \frac{1}{S_w} \cdot \frac{A_{ML}}{t_{ML}}, \quad (12)$$

denn es müssen S_w Anteile des Flusses auf S_w simultan wachsende Lagen verteilt werden. Die Geschwindigkeit folgt einer Stufenfunktion: sie ist für ein festes S_w konstant, nimmt mit steigendem S_w ab und erreicht ihr Minimum für $S_w = m$. Die Zeitdauer vom Beginn des Wachstums von S_w Lagen bis zum Beginn des Wachstums von $(S_w + 1)$ Lagen erfordert das Verdampfen von S_w/m Anteilen der Fläche einer Monolage, das geschieht nach dem Zeitintervall:

$$\Delta t = \frac{S_w}{m} t_{ML}. \quad (13)$$

Aufsummieren dieser Zeitintervalle ergibt die Gesamtzeit, die vergeht, bis S_w Lagen simultan wachsen. Noch gilt $S_w = k_{\max}^w$ (siehe Gl. (11)), deshalb ist die Gesamtzeit auch die bis zum Wachstumsbeginn der k_{\max}^w -ten Lage:

$$t_{k_{\max}^w} = t_{S_w} = \sum_{t=0}^{t_{S_w}} \Delta t = \sum_{S_w=1}^{S_w-1} \frac{S_w}{m} t_{ML} = \frac{1}{m} t_{ML} \sum_{S_w=1}^{S_w-1} S_w = \frac{1}{m} t_{ML} \frac{(S_w-1)(S_w)}{2}. \quad (14)$$

Die Zeitdauer des Wachstums der ersten Lage ist gleichbedeutend dem Beginn des Wachstums der (m+1)-ten Lage (nach dem Verdampfen von drei ML in Abb. Modell 02), demzufolge durch

$$t_{veL} = \frac{m(m+1)}{2} \cdot \frac{1}{m} \cdot t_{ML} = \frac{(m+1)}{2} \cdot t_{ML} \quad (15)$$

gegeben. Diese Zeit wird im Folgenden t_{veL} (Zeit zur vollendeten ersten Lage) genannt. Bis zu dieser Zeit ändert sich *nur* die *exponierte* Fläche der obersten Lage. Alle anderen wachsenden Lagen haben laut Definition (Gl. (10)) die konstante *exponierte* Fläche:

$$A^{\text{exp}}(d_{k^w}, t \leq t_{veL}, k^w < k_{\max}^w) = \frac{1}{m} \cdot A_{ML}. \quad (16)$$

Nach dieser Zeit t_{veL} ändert sich auch die exponierte Fläche der geschlossenen Lage, sie verringert sich linear mit der Zeit, bis die *noch wachsende* Schicht mit kleinstem Index k^w die geschlossene Lage darstellt. Gleichzeitig ist ab diesem Zeitpunkt t_{veL} die Geschwindigkeit des lateralen Wachstums konstant. Wegen dieser Variabilität der Wachstumsgeschwindigkeit ist es sinnvoll, das Wachstum in Zeiten vor und nach t_{veL} einzuteilen.

1) Zuerst sei die Wachstumsgeschwindigkeit nicht konstant, also $t \leq t_{veL}$.

Aus Gl. (14) erhält man die oberste zu der Zeit t wachsende Lage $k_{\max}^w = S_w$:

$$k_{\max}^w(t \leq t_{veL}) = 1 + \text{int} \left(\frac{1}{2} + \sqrt{\frac{1}{4} + 2m \frac{t}{t_{ML}}} \right), \quad (17)$$

wobei die Funktion $\text{int}(x)$ das größte Ganze der Zahl x liefert. Diese Lage beginnt zum Zeitpunkt $t_{k_{\max}^w}$ zu wachsen und erreicht ihre maximale *exponierte* Fläche $((1/m)A_{ML})$ zum

Zeitpunkt $t_{k_{\max}^w+1}$. Es gilt also:

$$A^{\text{exp}}(d_{k_{\max}^w}, t \leq t_{veL}) = \frac{1}{m} \cdot A_{ML} \left(\left(\frac{t - t_{k_{\max}^w}}{t_{k_{\max}^w+1} - t_{k_{\max}^w}} \right) - \text{int} \left(\frac{t - t_{k_{\max}^w}}{t_{k_{\max}^w+1} - t_{k_{\max}^w}} \right) \right). \quad (18)$$

Für die Zeiten sind die entsprechenden Summen aus Gl. (14) einzusetzen, Vereinfachen resultiert in der zugehörigen Flächenzunahme pro Zeit bis zum Wachstumsbeginn der nächsten Lage:

$$A^{\text{exp}}\left(d_{k_{\text{max}}^w}, t \leq t_{\text{veL}}\right) = \frac{1}{m} \cdot A_{ML} \left(\left(\frac{t}{\frac{k_{\text{max}}^w}{m} t_{ML}} - \frac{k_{\text{max}}^w - 1}{2} \right) - \text{int} \left(\frac{t}{\frac{k_{\text{max}}^w}{m} t_{ML}} - \frac{k_{\text{max}}^w - 1}{2} \right) \right). \quad (19)$$

2) Für die Zeit nach t_{veL} ($t > t_{\text{veL}}$) ist die laterale Wachstumsgeschwindigkeit konstant, es ergibt sich für die oberste, wachsende Lage k_{max}^w :

$$k_{\text{max}}^w(t > t_{\text{veL}}) = m + 1 + \text{int} \left(\frac{t - \frac{(m+1)}{2} \cdot t_{ML}}{t_{ML}} \right) \quad (20)$$

und damit für *exponierte* Fläche der obersten, wachsenden Lage:

$$A^{\text{exp}}\left(d_{k_{\text{max}}^w}, t > t_{\text{veL}}\right) = \frac{1}{m} \cdot A_{ML} \left(\frac{t - \frac{m+1}{2} t_{ML}}{t_{ML}} - \text{int} \left(\frac{t - \frac{m+1}{2} t_{ML}}{t_{ML}} \right) \right). \quad (21)$$

Eine analoge Überlegung liefert für die Abnahme der *exponierten* Fläche der obersten, vollendeten Lage $k = k_{\text{max}}^w - m$ (k ohne Index w):

$$A^{\text{exp}}\left(d_{k=k_{\text{max}}^w-m}, t > t_{\text{veL}}\right) = \frac{1}{m} \cdot A_{ML} \left(1 - \left(\frac{t - \frac{m+1}{2} t_{ML}}{t_{ML}} - \text{int} \left(\frac{t - \frac{m+1}{2} t_{ML}}{t_{ML}} \right) \right) \right). \quad (22)$$

Zusätzlich müssen noch die zugehörigen Schichtdicken bestimmt werden. Es gilt für die maximale Schichtdicke (der obersten, *wachsenden* Lage k_{max}^w) und die minimale Schichtdicke (der obersten, *vollendeten* Lage $k = k_{\text{max}}^w - m$):

$$d_{\text{max}} = d(k_{\text{max}}^w) = d_{ML} \cdot k_{\text{max}}^w \quad (23)$$

und

$$d_{\text{min}} = d(k_{\text{max}}^w - m) = d_{ML} \cdot (k_{\text{max}}^w - m). \quad (24)$$

Berücksichtigt man noch, dass für Schichtdicken zwischen d_{max} und d_{min} die Fläche konstant ist:

$$A(d_{\text{max}} > d > d_{\text{min}}) = \frac{1}{m} A_{ML}, \quad (25)$$

ist die Schichtdickenverteilung des Modells des gleichmäßigen simultanen Wachstums zu jedem Zeitpunkt t durch die Gleichungen (19) und (21) bis (25) beschrieben.