

Untersuchungen zur Keimbildung von Gold auf Kohlenstoffschichten

M. Paunov

Bulgarische Akademie der Wissenschaften,
Institut für Physikalische Chemie Sofia, Bulgarien *

M. Harsdorff

Institut für Angewandte Physik der Universität Hamburg

(Z. Naturforsch. **29 a**, 1311–1318 [1974]; eingegangen am 18. Juni 1974)

Investigations to the Nucleation of Gold on Carbon Layers

In the present paper, the nucleation of gold on thin carbon layers is investigated. By means of an image analysing computer it was possible to evaluate many electron micrographs with regard to nucleation rate, growth of crystallites, induction time and fractional part of the surface covered by crystallites. The comparison of the experimental results with nucleation theories shows that the explanation is possible by use of a simple atomic model.

In der Vergangenheit sind eine Reihe von Arbeiten über die Keimbildung von Gold auf Alkalihalogeniden erschienen **. Die Verwendung von Ionenkristallen vom NaCl-Typ als Unterlage bot sich deshalb an, weil die für den Keimbildungsprozeß benötigten hochreinen und wenig gestörten Oberflächen durch Kristallspaltung im Ultrahochvakuum zu erhalten sind. Die vorliegenden Ergebnisse ließen sich ohne Einschränkung durch die kinetische Keimbildungstheorie^{2–4} erklären.

Die Einseitigkeit bei der Auswahl der Unterlagen ist deshalb unbefriedigend, weil nicht mit letzter Sicherheit ausgeschlossen werden kann, daß die Anwendbarkeit der kinetischen Theorie unter Umständen auf diese Fälle beschränkt ist.

Es erscheint daher wünschenswert, zunächst unter Beibehaltung des chemisch wenig aktiven Goldes als Aufdampfsubstanz, Unterlagen mit anderem Bindungstyp der Gitterbausteine zu verwenden. Da der statistische Charakter des Keimbildungsprozesses die Durchführung einer großen Zahl von Experimenten erfordert, mußte gefordert werden, daß die Unterlagen mit vernünftigem Zeitaufwand in großer Zahl bei guter Reproduzierbarkeit der physikalischen Daten präparierbar sein müßten.

Ein weiterer, genauso wichtiger Gesichtspunkt ist die Forderung, daß die Keimschichten durch einfache Präparationsverfahren ohne zusätzliche Artefakte in dünne Schichten überführt werden müssen, beispielsweise durch Weglösen der Unterlage, um

die Untersuchung im Transmissionselektronenmikroskop zu ermöglichen.

Die Abwägung aller experimenteller Nebenbedingungen ließ Kohlenstoffschichten als geeignete Unterlagen erscheinen. Auch auf Kohlenstoffschichten wurden bereits Keimbildungsexperimente durchgeführt, allerdings mit anderen Aufdampfungs-materialien^{5,6}. Diese frühen Untersuchungen haben allerdings den auch vielen anderen Experimenten anhaftenden Mangel, daß eine völlig unzureichende Zahl von Experimenten ausgewertet wurde. Dies ist einerseits durch die zeitraubende Experimentiertechnik, vor allem aber durch die visuell manuelle Auswertung der elektronenmikroskopischen Bilder verursacht. Nachdem der Mangel der umständlichen, mit großen Fehlern behafteten manuellen Auswertung durch den Einsatz eines Bildanalyse-Computers *** behoben werden konnte, erschien die Durchführung der im folgenden beschriebenen Experimente erfolgversprechend.

I. Durchführung der Untersuchungen

Die Experimente wurden in einer Viton-gedichteten Bedampfungsanlage durchgeführt, in der bei Verwendung einer mit flüssigem Stickstoff gekühlten Dampfsperre ein Enddruck von $p < 3 \cdot 10^{-8}$ Torr erreicht werden konnte.

Zur Präparation der für die Keimbildungsexperimente benötigten Kohlenstoffschichten wurden jeweils 10–15 in Luft gespaltene Steinsalzkristalle

* Stipendiat der Alexander-von-Humboldt-Stiftung am Institut für Angewandte Physik der Universität Hamburg.

** Eine Bibliographie der neueren Arbeiten findet sich bei Bauer und Poppa¹.

*** Imanco, Quantimet 720.



Dieses Werk wurde im Jahr 2013 vom Verlag Zeitschrift für Naturforschung in Zusammenarbeit mit der Max-Planck-Gesellschaft zur Förderung der Wissenschaften e.V. digitalisiert und unter folgender Lizenz veröffentlicht:
Creative Commons Namensnennung-Keine Bearbeitung 3.0 Deutschland Lizenz.

Zum 01.01.2015 ist eine Anpassung der Lizenzbedingungen (Entfall der Creative Commons Lizenzbedingung „Keine Bearbeitung“) geplant, um eine Nachnutzung auch im Rahmen zukünftiger wissenschaftlicher Nutzungsformen zu ermöglichen.

This work has been digitized and published in 2013 by Verlag Zeitschrift für Naturforschung in cooperation with the Max Planck Society for the Advancement of Science under a Creative Commons Attribution-NoDerivs 3.0 Germany License.

On 01.01.2015 it is planned to change the License Conditions (the removal of the Creative Commons License condition "no derivative works"). This is to allow reuse in the area of future scientific usage.

simultan bei einem Druck von etwa 10^{-5} Torr mit 200 Å Kohlenstoff bedampft. Die Kohlensublimation wurde durch Elektronenstoßverdampfung spektralreinen Kohlenstoffs durchgeführt. Die bei jeder Bedampfungscharge jeweils an einer Kohlenstoffschicht durchgeführte elektronenmikroskopische Untersuchung zeigte, daß die Schichten, abgesehen von den üblichen Phasenkontrasterscheinungen praktisch strukturlos waren.

Die mit Kohle bedampften Steinsalzkristalle wurden dann mit einer Bohrung zur Aufnahme eines Pt-Pt/Rh-Thermoelements versehen, um eine möglichst genaue Messung der Unterlagentemperatur bei den nachfolgenden Keimbildungsexperimenten zu ermöglichen.

Da der Keimbildungsprozeß nicht *in situ* beobachtet werden konnte, wurde die zur Bestimmung der Keimbildungsrate erforderliche zeitliche Auflösung des Keimbildungsvorgangs dadurch erreicht, daß bei konstanter Unterlagentemperatur und Aufdampfrate jeweils Serien mit von Schicht zu Schicht ansteigender Bedampfungszeit hergestellt wurden.

Die Einstellung der Unterlagentemperatur erfolgte durch Stromregelung einer U-förmigen direkt geheizten Tantalschiene, in die der Steinsalzkristall mit der zu bedampfenden Kohlenstoffschicht eingespannt war.

Die Goldbedampfung erfolgte aus einem durch Elektronenstoß beheizten Molybdäntiegel. Die Aufdampfrate wurde vor jedem Experiment über die mit einem Pt-Pt/Rh-Thermoelement gemessene Tiegeltemperatur eingestellt und mit einem Schwingquarzsichtdickenmeßgerät kontrolliert (Granville Phillips).

In den ersten Serien wurden die Kohlenstoffschichten mit Gold bedampft, die so erzeugten Keimschichten mit Kohle fixiert, das Sandwich, bestehend aus Steinsalzkristall-Kohle-Gold-Keimschicht-Kohle durch destilliertes Wasser vom Steinsalz befreit und die C-Au-C-Schicht im Elektronenmikroskop untersucht (Philips EM 200). Die elektronenmikroskopischen Bilder wurden anschließend in einem quantitativen Bildanalysegerät (Imanco, Quantimet 720) hinsichtlich der Merkmale Teilchenzahl pro Fläche, mittlerer Kristallitätdurchmesser und Bruchteil der mit Aggregaten bedeckten Fläche untersucht.

Da Parallelversuche bei den höchsten verwendeten Unterlagentemperaturen und niedrigsten Aufdampfraten ohne nachfolgende Fixierung der Keimschichten mit Kohlenstoff bei der nachfolgenden elektronenmikroskopischen Untersuchung das gleiche Ergebnis lieferten wie bei fixierten Schichten, wurde in einem Teil der Experimente auf eine Schichtfixierung verzichtet.

II. Theorie

Bei der Materialverdampfung im Ultrahochvakuum und Kondensation auf mäßig erhitzten artfremden Unterlagen treten, von speziellen Materialkombinationen abgesehen, sehr hohe Übersättigungen auf. Der kritische Keim wird in diesem Fall außerordentlich klein und der Keimbildungsprozeß läßt sich an Hand eines einfachen kinetischen Modells beschreiben. In einigen Fällen konnte gezeigt werden, daß bereits der Atomzwillling stabil, das Einzelatom also „Kritischer Keim“ ist^{5,7}.

Die von Frenkel erstmals formulierte und von Zinsmeister weitergeführte Theorie führt unter der Annahme stabiler Zwillinge zu folgendem Differentialgleichungssystem:

$$\begin{aligned} \frac{dN_1}{dt} &= N_D - \frac{N_1}{\tau_1} - 2 K_1 N_1^2 - N_1 \sum_{i=2}^{\infty} K_i N_i, \\ \frac{dN_2}{dt} &= K_1 N_1^2 - K_2 N_1 N_2, \\ &\vdots \\ \frac{dN_i}{dt} &= K_{i-1} N_1 N_{i-1} - K_i N_1 N_i. \\ &\vdots \end{aligned} \quad (1)$$

N_1 ist die Adatomkonzentration, N_i die Konzentration der Aggregate mit i -Atomen, N_D die Aufdampfrate.

Die mittlere Verweilzeit von Atomen auf der Oberfläche ist mit der Adsorptionsenergie E_1 durch

$$\tau_1 = \tau_0 \exp \{E_1/kT\} \quad (2)$$

verknüpft. τ_0 ist dabei die reziproke Debye-Frequenz und von der Größenordnung 10^{-13} sec. Die K_i sind die Zerfallskonstanten, die als Produkt aus Diffusionsgeschwindigkeit der Atome und dem Wirkungsquerschnitt für den Stoß eines diffundierenden Atoms mit einem Aggregat der Größe i definiert sind. Beachtet man die Voraussetzung, daß nur Einzelatome auf der Oberfläche beweglich sein sollen, so gilt für die Zerfallskonstanten:

$$K_1 = \frac{8}{\pi} a d_1 \frac{1}{\tau_0} \exp \left(-\frac{E_p}{kT} \right) \quad (3a)$$

und unter der Annahme halbkugelförmiger Kristallite

$$K_i = (\sqrt[3]{2} i + 1) a d_1 \frac{1}{\tau_0} \exp \left(-\frac{E_p}{kT} \right), \quad (3b)$$

a = Sprungweite beim Atomplatzwechsel, d_1 Atomdurchmesser, E_p = Aktivierungsenergie für den Platzwechsel.

1. Keimbildungsrate

Aus dem Differentialgleichungssystem (1) kann man unmittelbar die Keimbildungsrate, d. h. die Bildungsrate der als stabil angenommenen Atomzwillinge entnehmen

$$J = K_1 N_1^2. \quad (4)$$

Zu Beginn des Bedampfungsprozesses dominiert als Verlustreaktion die Wiederverdampfung von Einzelatomen. Der ersten Gleichung des Gleichungssystems (1) entnimmt man für diesen quasistationären Fall

$$N_1 = \text{const} = N_D \tau_1.$$

Für die Keimbildungsrate ergibt sich damit unter Berücksichtigung der Definitionsgleichungen für τ_1 und K_1

$$J = \frac{8}{\pi} a d_1 \tau_0 N_D^2; \exp\left(\frac{2 E_1 - E_p}{k T}\right). \quad (5)$$

2. Wachstum der Aggregate

Nach der Keimbildung wachsen die entstandenen Aggregate durch ständige Addition von Einzelatomen. Die Anlagerungsrate an Aggregate der Größe i lässt sich darstellen als Produkt aus der Adatomkonzentration N_1 und der Zerfallskonstante K_i des betreffenden Aggregates.

$$di/dt = K_i N_1. \quad (6)$$

Daraus ergibt sich für den Volumenzuwachs

$$dV = di \cdot V_1, \quad (7)$$

wobei V_1 das Atomvolumen ist.

Dem Volumenzuwachs entspricht eine Kristallitradiuszunahme dR_i

$$dV = \frac{4}{3} \pi [(R_i + dR_i)^3 - R_i^3]. \quad (8)$$

Dabei sind, wie schon in Gl. (3 b), halbkugelförmige Kristallite angenommen worden.

Setzt man in (6) die Beziehungen für K_i und N_1 ein, so ergibt sich aus (6), (7), (8) :

$$R_i(t) = \left(\frac{3}{\pi} V_1 N_D a \right)^{1/2} \exp\left(\frac{E_1 - E_p}{2 k T}\right) \cdot t^{1/2}. \quad (9)$$

3. Induktionszeit

Die bisher als kleinste stabile Aggregate angenommenen diatomaren Moleküle liegen in ihrer

Ausdehnung weit unter dem Auflösungsvermögen des zur Beobachtung verwendeten Elektronenmikroskops. Es ist daher zu erwarten, daß nach der Keimbildung eine bestimmte Zeit vergeht, bis Kristallite hinreichender Größe im Elektronenmikroskop beobachtet werden. Da alle neugebildeten Zwillinge unter gleichen Bedingungen wachsen, verursacht dieser Effekt eine Parallelverschiebung der Kurven, die die zeitliche Zunahme der Kristallitkonzentration beschreiben, längs der Zeitachse in Richtung größerer Zeiten. Diese Zeitverschiebung zwischen Bedampfungsbeginn und Auftauchen sichtbarer Aggregate soll im folgenden als Induktionszeit bezeichnet werden.

Definieren wir D_0 als den Durchmesser des kleinsten sichtbaren Aggregats, so ergibt sich für die Induktionszeit aus Gl. (9) :

$$\tau_D = \frac{\pi D_0^2}{3 a V_1 N_D} \exp\left(\frac{E_p - E_1}{k T}\right). \quad (10)$$

4. Bruchteil der von Kristalliten bedeckten Fläche

Die zeitliche Entwicklung der Flächenbedeckung soll nur während des ersten Stadiums der Schichtentstehung, dem Keimbildungsstadium, betrachtet werden, da bisher eine umfassende quantitative theoretische Beschreibung des nachfolgenden Kaleszenzstadiums nicht möglich ist.

Die insgesamt bedeckte Fläche ist unter dieser Voraussetzung gleich der Kristallitzahl, gegeben durch Keimbildungsrate multipliziert mit der Aufdampfzeit und der mittleren Fläche eines Kristalliten. Berücksichtigt man die Gleichungen für die Keimbildungsrate [Gl. (5)] und die zeitliche Entwicklung der Kristallitdurchmesser [Gl. (9)], so erhält man für die zeitliche Entwicklung der von Kristalliten bedeckten Fläche:

$$S = J t \frac{\pi}{4} \bar{d}^2 = \frac{6}{\pi} a^2 \tau_0 d_1 V_1 N_D^3 t^2 \exp\left(\frac{3 E_1 - 2 E_p}{k T}\right) \quad (11)$$

III. Vergleich der Meßergebnisse mit der Theorie

In Reihenuntersuchungen wurden Serien von Aufdampfschichten mit jeweils ansteigender Bedampfungszeit bei konstanter Unterlagetemperatur und Aufdampfrate hergestellt. In Abb. 1 ist die gemessene Kristallitdichte über der Bedampfungszeit für vier verschiedene Aufdampfraten und die Unterlage-

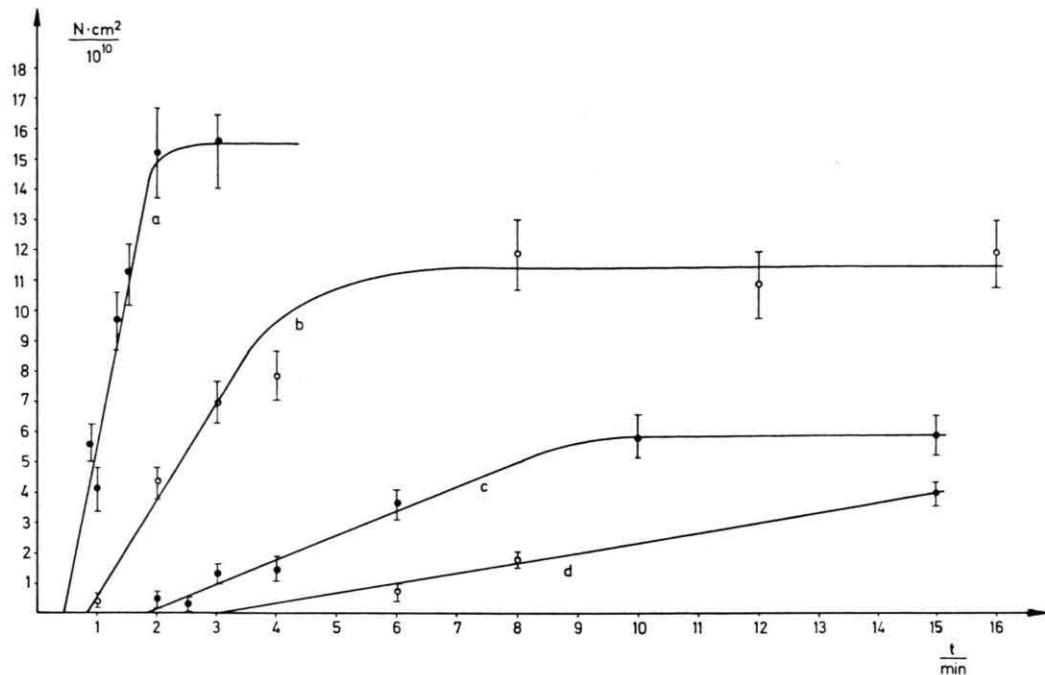


Abb. 1. Abhängigkeit der Kristallitdichte von der Bedampfungszeit für eine Unterlagetemperatur von $T = 916$ K. Aufdampfraten: a) $4 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-2} \text{ sec}^{-1}$; b) $2 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-2} \text{ sec}^{-1}$; c) $1 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-2} \text{ sec}^{-1}$; d) $6,5 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-2} \text{ sec}^{-1}$.

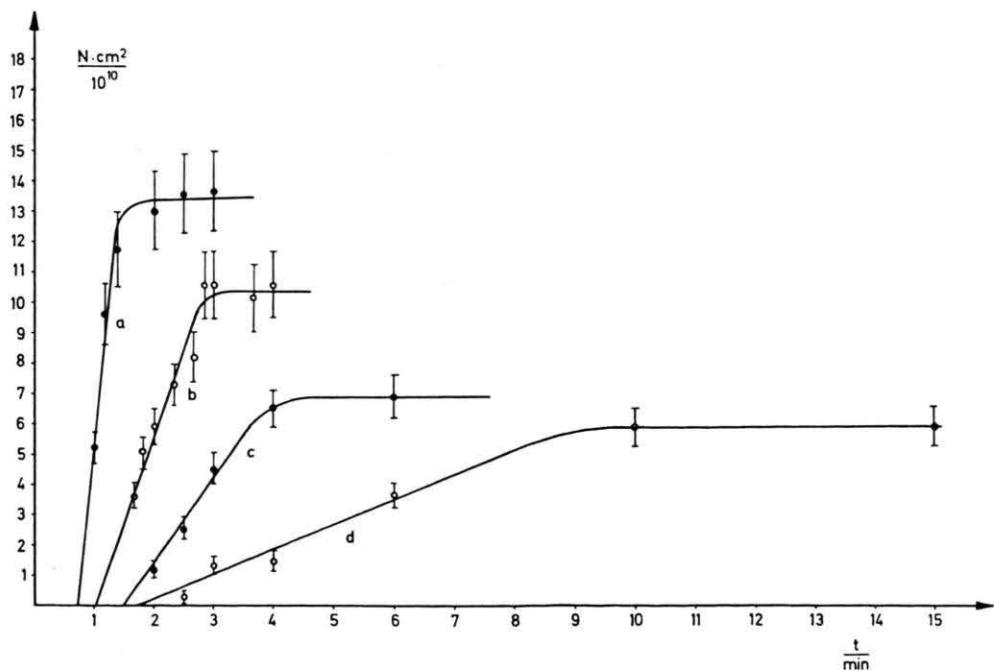


Abb. 2. Abhängigkeit der Kristallitdichte von der Bedampfungszeit für eine Aufdampfrate von $N_D = 10^{13} \text{ cm}^{-2} \text{ sec}^{-1}$. Unterlagetemperaturen: a) 827 K; b) 857 K; c) 886 K; d) 916 K.

temperatur $T = 916\text{ K}$ aufgetragen. Die $N(t)$ -Kurven zeigen den typischen Verlauf: Nach einer Induktionszeit werden Kristallite im Elektronenmikroskop sichtbar. Zunächst steigt die Kristallitkonzentration zeitlinear an, um dann in einen Sättigungswert einzumünden. Legt man die kinetische Keimbildungstheorie für die Diskussion zugrunde, so ist der zeitlineare Anstieg durch Keimbildung mit konstanter Geschwindigkeit zu erklären. Analoge Kurven erhält man, wenn die Aufdampfrate konstant gehalten und die Unterlagetemperatur von Serie zu Serie verändert wird. Abbildung 2 zeigt den Zusammenhang $N(t)$ für vier verschiedene Unterlagetemperaturen bei einer Aufdampfrate von $N_D = 10^{13}\text{ cm}^{-2}\text{ sec}^{-1}$.

Aus den Abb. 1 und 2 lassen sich nun die Aufdampfrate- und Temperaturabhängigkeit der Keimbildungsrate und der Induktionszeit mit der Theorie vergleichen.

1. Keimbildungsrate

Trägt man die aus den Kurvensteigungen in Abb. 1 ermittelten Keimbildungsraten gegen die

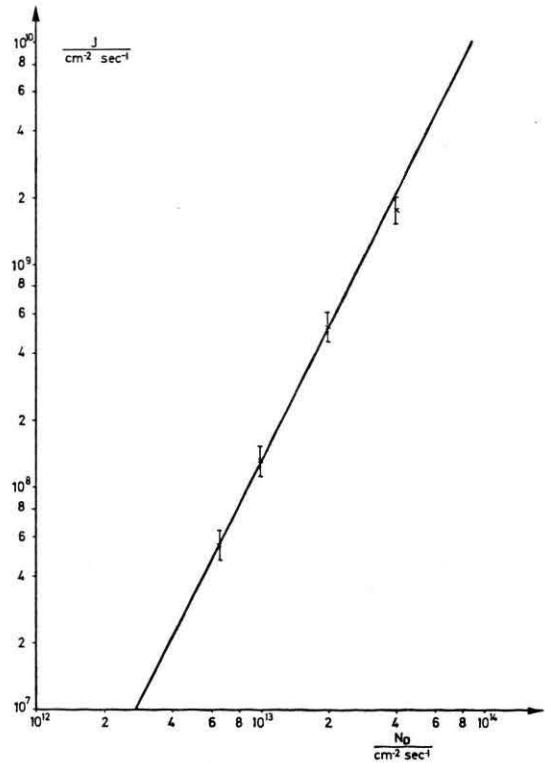


Abb. 3. Auftragung der Keimbildungsrate als Funktion der Aufdampfrate.

Aufdampfrate doppeltlogarithmisch auf, so erhält man den in Abb. 3 dargestellten linearen Zusammenhang. Die Steigung der Geraden ist gleich 2; damit ist aber die von der kinetischen Theorie für den Fall des stabilen Zwillings geforderte quadratische Abhängigkeit der Keimbildungsrate von der Aufdampfrate bestätigt.

Nach Gl. (5) sollte die Auftragung des Logarithmus der Keimbildungsrate gegen die reziproke absolute Unterlagetemperatur eine Arrheniusgerade ergeben. Die Abb. 4 zeigt, daß der von der Theorie geforderte Zusammenhang auch tatsächlich beobachtet wird. Die Steigung der Geraden bestimmt den

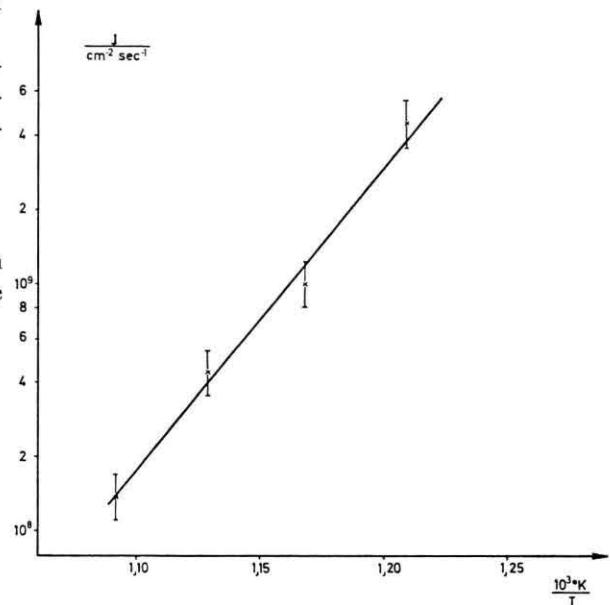


Abb. 4. Auftragung der Keimbildungsrate als Funktion der reziproken Unterlagetemperatur.

Wert $(2E_1 - E_p)/k$, erlaubt also eine erste Abschätzung der Differenz aus doppelter Adsorptionsenergie und der Aktivierungsenergie für den Einzelatomplatzwechsel. Es ergibt sich:

$$2E_1 - E_p = 2,24\text{ eV}.$$

Diese Energiedifferenz kann man natürlich auch direkt aus Gl. (5) bei Annahme plausibler Vorfaktoren berechnen. Mit den Größen $d_1 = a_0 = 3 \cdot 10^{-8}\text{ cm}$ und $\tau_0 = 10^{-13}\text{ s}$ sowie den aus Abb. 1 ermittelten Keimbildungsraten erhält man:

$$2E_1 - E_p = 1,90\text{ eV}$$

in befriedigender Übereinstimmung mit dem aus der Arrhenius-Gerade ermittelten Wert.

2. Wachstum der Aggregate

Um Gl. (9) zu überprüfen, wurde die zeitliche Entwicklung des mittleren Kristallitdurchmessers verfolgt, der aus Messungen mit dem Bildanalysegerät direkt ermittelt werden kann. Dabei darf nicht übersehen werden, daß Gl. (9) das Wachstum individueller Kristallite beschreibt. Da dieser Wert aber grundsätzlich nicht aus den experimentellen Daten zu entnehmen ist, mußte der mittlere Durchmesser, der in seiner zeitlichen Entwicklung zumindest im Keimbildungsstadium einen ähnlichen funktionellen Zusammenhang zeigen sollte, zum Vergleich mit der Theorie herangezogen werden. Abbildung 5 zeigt die zeitliche Entwicklung des mittleren Kristallitdurchmessers.

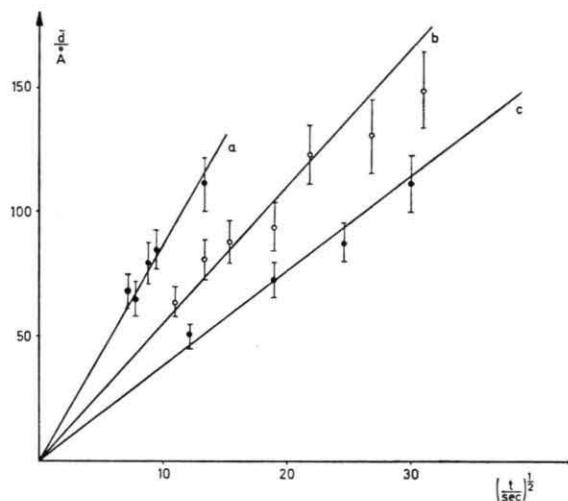


Abb. 5. Zeitliche Entwicklung des mittleren Kristallitdurchmessers bei einer Unterlagetemperatur von $T = 916$ K. Aufdampfraten: a) $4 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-2} \text{ sec}^{-1}$; b) $2 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-2} \text{ sec}^{-1}$; c) $1 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-2} \text{ sec}^{-1}$.

ren Kristallitdurchmessers für drei verschiedene Aufdampfraten. Zunächst entnimmt man der Abbildung, daß die Proportionalität des mittleren Kristallitdurchmessers zur Quadratwurzel der Aufdampfzeit, wie von der Theorie gefordert, bestätigt wird. Aus den Steigungen der Geraden kann man den Wert für die Differenz der Adsorptionsenergie des Einzelatoms und der Aktivierungsenergie für den Platzwechsel berechnen. Es ergibt sich:

$$E_1 - E_p = 0,46 \text{ eV}.$$

3. Induktionszeit

Nach Gl. (10) sollte die Induktionszeit umgekehrt proportional zur Aufdampfrate sein. Die

Abb. 6 zeigt, daß diese Voraussage im Rahmen der Meßgenauigkeit durch die Experimente bestätigt wird. Weiterhin ist zu fordern, daß der Logarith-

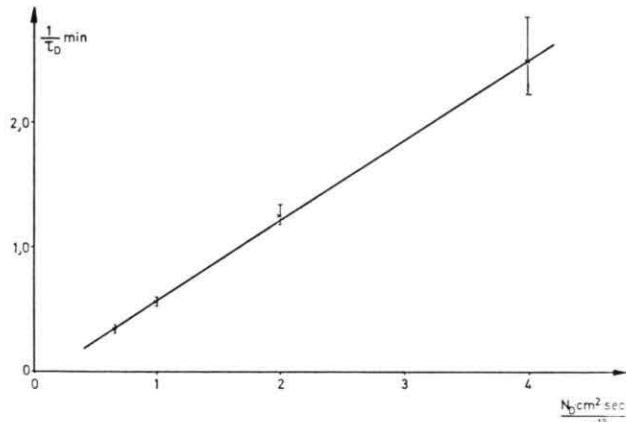


Abb. 6. Abhängigkeit der reziproken Induktionszeit von der Aufdampfrate.

mus der Induktionszeit, aufgetragen über der reziproken absoluten Temperatur, eine Arrhenius-Gerade ergibt, deren Steigung $(E_p - E_1)/k$ beträgt. Zunächst zeigt Abb. 7, daß der funktionelle Zusammenhang von der Theorie offenbar richtig dargestellt wird.

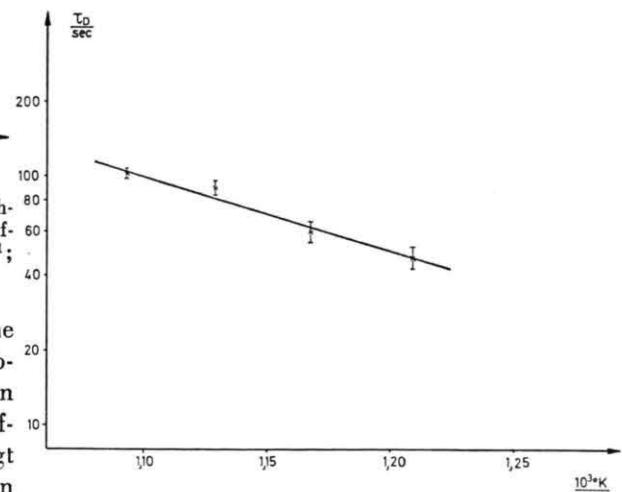


Abb. 7. Abhängigkeit der Induktionszeit von der reziproken Unterlagetemperatur.

Der aus der Steigung der Geraden formal zu ermittelnde Wert für die Energieparameterdifferenz steht in guter Übereinstimmung mit der aus der zeitlichen Entwicklung des mittleren Durchmessers erhaltenen Größe:

$$E_p - E_1 = -0,44 \text{ eV}.$$

4. Bruchteil der von Kristalliten bedeckten Fläche

Gleichung (10) weist aus, daß die von Kristalliten bedeckte Fläche quadratisch mit der Aufdampfzeit ansteigen sollte. Die Abb. 8 a, b, c zeigen, daß diese Voraussage zutrifft, solange man sich auf das Keimbildungsstadium beschränkt. Die Pfeile in der

Platzwechsel berechnen:

$$3E_1 - 2E_p = 2,20 \text{ eV}.$$

Aus Gl. (10) ist weiterhin zu entnehmen, daß die von Kristalliten bedeckte Fläche mit der dritten Potenz der Aufdampfrate ansteigen sollte. Die Abb. 9 zeigt, daß die Experimente den geforderten Verlauf bestätigen.

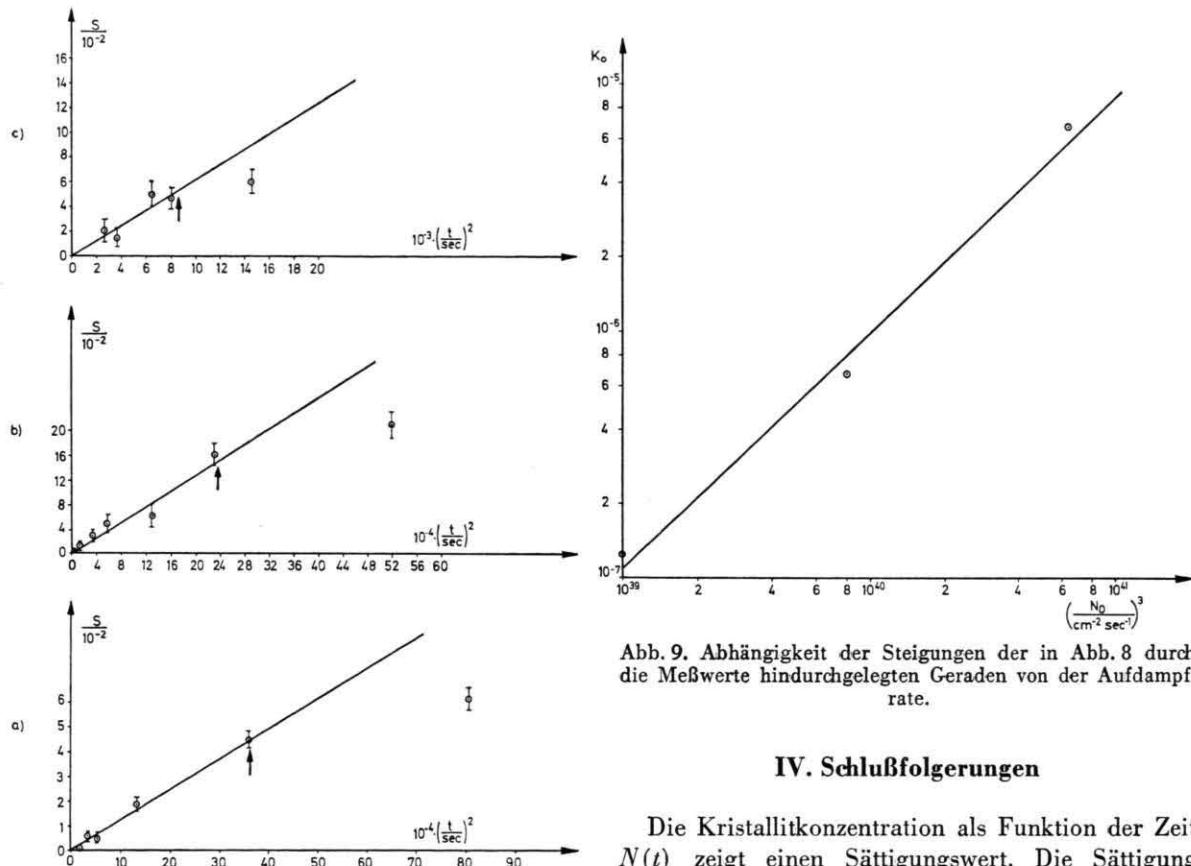


Abb. 8. Zeitliche Entwicklung der relativen Flächenbedeckung für eine Unterlagetemperatur von $T = 916 \text{ K}$. Aufdampfraten: a) $1 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-2} \text{ sec}^{-1}$; b) $2 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-2} \text{ sec}^{-1}$; c) $4 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-2} \text{ sec}^{-1}$. Die Pfeile kennzeichnen das Ende des Keimbildungsstadiums.

Abbildung kennzeichnet jeweils das Ende des zeitlich linearen Anstiegs der Kristallitzahl, also das Ende des Keimbildungsprozesses. Beim Einsetzen der Koaleszenz ergibt sich natürgemäß eine Reduktion der zu erwartenden Fläche durch dreidimensionales Aufblähen der zusammenwachsenden Inseln.

Aus den Steigungen der Geraden kann man die Differenz aus der dreifachen Adsorptionsenergie und der doppelten Aktivierungsenergie für den

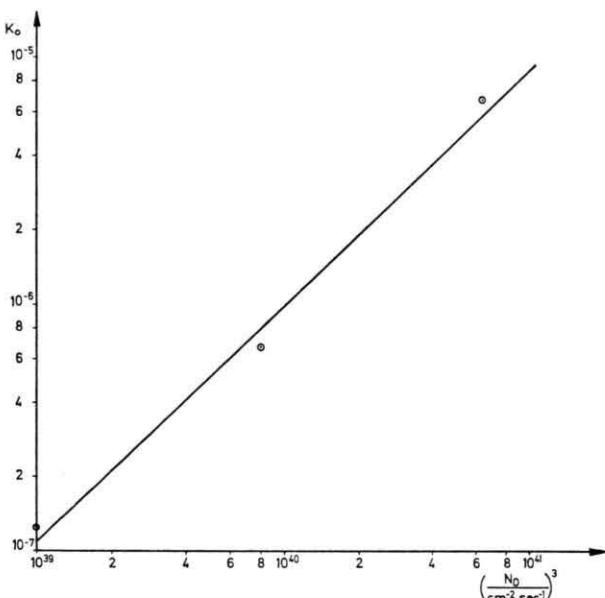


Abb. 9. Abhängigkeit der Steigungen der in Abb. 8 durch die Meßwerte hindurchgelegten Geraden von der Aufdampfrate.

IV. Schlußfolgerungen

Die Kristallitkonzentration als Funktion der Zeit $N(t)$ zeigt einen Sättigungswert. Die Sättigung kann entweder durch Adatomverarmung und damit absinkender Keimbildungsrate, oder aber durch massiven Koaleszenzeinsatz gedeutet werden. Die vorliegenden Ergebnisse lassen keine eindeutigen Schlüsse zu, welche von beiden Möglichkeiten eine dominierende Rolle spielt. Auf eine quantitative Diskussion muß daher im Rahmen dieser Arbeit verzichtet werden.

Die in den voranstehenden Kapiteln dargestellten gesicherten experimentellen Daten lassen sich befriedigend durch die kinetische Keimbildungstheorie unter der Voraussetzung stabiler biatomarer Aggregate erklären. Modellkonsistent ergibt sich eine Abhängigkeit der Keimbildungsrate vom Qua-

drat der Aufdampfrate, entsprechend dem stabilen Atomzwillings.

Die experimentell bestätigte Abhängigkeit der Kristallit-Wachstumsrate von der Quadratwurzel der Zeit bestätigt die Vorstellung, daß das Kristallwachstum vorwiegend durch die Oberflächendiffusion der Adatome verursacht wird.

Die nach verschiedenen Verfahren ermittelten Energieparameterkombinationen erlauben den Schluß, daß das verwendete atomare Modell zumindest in sich konsistent ist. Die naturgemäß modell-abhängigen Parameter für die Adsorptionsenergie des Adatoms und die Aktivierungsenergie für den Platzwechsel lassen sich aus den experimentellen Daten bestimmen:

$$E_1 = (1,62 \pm 0,10) \text{ eV}, \quad E_p = (1,17 \pm 0,10) \text{ eV}.$$

- ¹ E. Bauer u. H. Poppe, Thin Solid Films **12**, 167 [1972].
- ² J. Frenkel, Z. Phys. **26**, 117 [1924].
- ³ G. Zinsmeister, Vacuum **16**, 529 [1966].
- ⁴ G. Zinsmeister, Thin Solid Films **2**, 497 [1968].
- ⁵ H. Poppe, J. Vac. Sci. Techn. **2**, 42 [1965].

Diese Größen gestatten die Berechnung von $3E_1 - 2E_p$.

$$3E_1 - 2E_p = 2,52 \text{ eV}.$$

Dieser Wert stimmt mit der experimentell aus der spezifischen Oberflächenbedeckung ermittelten Größe gut überein.

Für den Fall der Kondensation von Gold auf Kohlenstoff kann nach den vorliegenden Daten geschlossen werden, daß die kinetische Keimbildungstheorie die experimentellen Ergebnisse zu beschreiben gestattet.

Der Deutschen Forschungsgemeinschaft danken wir für die Bereitstellung der erforderlichen Geräte, der Alexander von Humboldt-Stiftung für die Verleihung eines Forschungsstipendiums an Dr. M. Paunov.

- ⁶ J. F. Hamilton u. P. C. Logel, Thin Solid Films **16**, 49 [1973].

- ⁷ D. Walton, T. N. Rhodin u. R. W. Rollins, J. Chem. Phys. **38**, 2698 [1963].