

Doctoral thesis / *Dissertation*

for the doctoral degree / *zur Erlangung des Doktorgrads*

Doctor rerum naturalium (Dr. rer. nat.)

Structural and electronic properties of metallic surfaces under
the influence of correlation effects

*Strukturelle und elektronische Eigenschaften metallischer
Oberflächen unter dem Einfluss von Korrelationseffekten*



Submitted by / *Vorgelegt von*

Jeannette Kemmer

from / *aus*

Kitzingen

Würzburg, 2016

Submitted on / *Eingereicht am* 24.08.2016

Stamp / *Stempel* Graduate School

Members of thesis committee / *Mitglieder des Promotionskomitees*

Chairperson / *Vorsitz:*

1. Reviewer and Examiner / 1. *Gutachter und Prüfer:* Prof. Dr. Matthias Bode

2. Reviewer and Examiner / 2. *Gutachter und Prüfer:* Prof. Dr. Fakher Assaad

3. Examiner / 3. *Prüfer:* Prof. Dr. Tobias Hertel

Additional Examiners / *Weitere Prüfer:*

Day of thesis defense / *Tag des Promotionskolloquiums:* 16.12.2016

In der Wissenschaft gleichen wir alle nur den Kindern,
die am Rande des Wissens hie und da einen Kiesel aufheben,
während sich der weite Ozean des Unbekannten vor unseren Augen erstreckt.

Sir Isaac Newton

Kurzzusammenfassung

Die vorliegende Arbeit untersucht mit Rastertunnelmikroskopie (RTM) und -spektroskopie (RTS) die Korrelation von strukturellen, elektronischen und magnetischen Eigenschaften auf metallischen Oberflächen. Zuerst wird der spin-aufgespaltene Oberflächenzustand des Ni(111) analysiert. Anschließend geht der Fokus über auf dünne Eisenfilme, die auf Rh(001) gewachsen wurden. Zuletzt wird die CePt₅/Pt(111)-Oberflächenlegierung untersucht.

Nickel ist ein bekannter Ferromagnet und die (111)-Oberfläche war in der Vergangenheit schon mehrfach das Objekt theoretischer und experimenteller Studien. Trotz intensiver Bemühungen wurden inkonsistente Ergebnisse veröffentlicht und ein klares, konsistentes Bild ist noch nicht vorhanden. Aus diesem Grund wird die Ni(111)-Oberfläche mittels RTM und RTS erforscht, die den Zugang sowohl zu besetzten als auch unbesetzten Zuständen ermöglicht. Mit der Methode der Quasiteilcheninterferenz wird eine detaillierte Beschreibung der Banddispersion erhalten. Die Austauschspaltung zwischen Minoritäts- und Majoritätsoberflächenzustands wird zu $\Delta E_{\text{ex}} = (100 \pm 8) \text{ meV}$ ermittelt. Der Ansatzpunkt des Majoritätsbandes liegt bei $E - E_{\text{F}} = -(160 \pm 8) \text{ meV}$ und die effektive Masse beträgt $m^* = +(0,14 \pm 0,04) m_e$. Des Weiteren liegt der Ansatzpunkt der Oberflächenresonanz der Majoritätladungsträger energetisch bei $E - E_{\text{F}} = -(235 \pm 5) \text{ meV}$ mit einer effektiven Masse von $m^* = +(0,36 \pm 0,05) m_e$. Um unmissverständlich den dominierenden Spin-Kanal in der RTS zu identifizieren, wurden hexagonale Quantentröge durch reaktives Ionenätzen hergestellt und mit der Hilfe eines eindimensionalen Quantentrogmodells interpretiert. Die sechs Kanten eines Hexagons erscheinen unterschiedlich. Atomar aufgelöste Messungen zeigen, dass gegenüberliegende Kanten nicht nur eine unterschiedliche Struktur haben sondern auch unterschiedliche spektroskopische Eigenschaften, die durch einen alternierend auftauchenden oder abwesenden spektroskopischen Peak charakterisiert sind. Magnetische Messungen ergeben allerdings keine endgültigen Ergebnisse bezüglich des Ursprungs der Beobachtungen.

Das zweite experimentelle Kapitel dreht sich um dünne Eisenfilme, die auf eine saubere Rh(001)-Oberfläche aufgebracht und diese dann mit RTM, RTS und spin-polarisierter (SP-)RTM untersucht werden. Eine nahezu defektfreie Rh(001)-Oberfläche ist notwendig, um ein Wachstum der Eisenfilme mit wenigen Defekten zu erhalten. Dies ist relevant, um das magnetische Signal korrekt interpretieren zu können und den möglichen Einfluss von Adsorbaten auszuschließen. Die erste atomare Lage Fe ordnet sich antiferromagnetisch in einer $c(2 \times 2)$ -Struktur an mit der leichten Magnetisierungsachse senkrecht zur Probenoberfläche. Die zweite und dritte Lage verhält sich ferromagnetisch mit immer kleiner werdenden Domänen für steigende Bedeckung. Ab 3,5 atomaren Lagen kommt es vermutlich zu einer Änderung der leichten Magnetisierungsrichtung von vertikal zu horizontal zur Probenebene. Dies wird durch kleiner werdende Domänengrößen und den gleichzeitig breiter werdenden Domänenwänden

signalisiert. Temperaturabhängige spin-polarisierter RTM erlaubt es die Curietemperatur der zweiten Lage auf 80 K zu schätzen. Zusätzlich wurde bei dieser Bedeckung eine periodische Modulation der lokalen Zustandsdichte gemessen, die mit steigender Periodizität auch auf der dritten und vierten Lage erscheint. Temperatur- und spannungsabhängige Messungen unterstützen eine Interpretation der Daten auf der Grundlage einer Ladungsdichtewelle. Ich zeige, dass die beiden für gewöhnlich konkurrierende Ordnungen (Ladungs- und magnetische Ordnung) koexistieren und sich gegenseitig beeinflussen, was theoretische Rechnungen, die in Zusammenarbeit mit F. P. Toldin und F. Assaad durchgeführt wurden, bestätigen können. Im letzten Kapitel wurde die Oberflächenlegierung $\text{CePt}_5/\text{Pt}(111)$ analysiert. Dieses System bildet laut einer kürzlich erschienenen Veröffentlichung ein schweres Fermionengitter. Von der sauberen $\text{Pt}(111)$ -Oberfläche ausgehend wurde die Oberflächenlegierung $\text{CePt}_5/\text{Pt}(111)$ hergestellt. Die Dicke der Legierung (t in u.c.) lässt sich durch die aufgedampfte Menge an Cer variieren und die erzeugte Oberfläche wurde mit RTM und RTS für verschiedene Dicken untersucht. RTM-Bilder und LEED (*engl.: low energy electron diffraction*)-Daten zeigen konsistente Ergebnisse, die in Zusammenarbeit mit C. Praetorius analysiert wurden. Für Bedeckungen unter einer atomaren Lage Cer konnte keine geordnete Struktur mit dem RTM beobachtet werden. Für 2 u.c. wurde eine (2×2) -Rekonstruktion an der Oberfläche gemessen und für 3 u.c. CePt_5 wurde eine $(3\sqrt{3} \times 3\sqrt{3})R30^\circ$ -Rekonstruktion beobachtet. Der Übergang von 3 u.c. CePt_5 zu 5 u.c. CePt_5 wurde untersucht. Mit Hilfe eines Strukturmodells schließe ich, dass es weder zu einer Rotation des atomaren Gitters noch zu einer Rotation des Übergitters kommt. Ab einer Bedeckung von 6 u.c. CePt_5 erscheint eine weitere Komponente der CePt_5 -Oberflächenlegierung, die keine Rekonstruktion mehr besitzt. Das atomare Gitter verläuft wieder entlang der kristallographischen Richtungen des $\text{Pt}(111)$ -Kristalls und ist somit nicht mehr um 30° gedreht. Für alle Bedeckungen wurden Spektroskopiekurven aufgenommen, die keinen Hinweis auf ein kohärentes schweres Fermionensystem geben. Eine Erklärung hierfür kommt aus einer LEED-IV Studie, die besagt, dass jede gemessene Oberfläche mit einer $\text{Pt}(111)$ -Schicht terminiert ist. Das RTM ist sensitiv für die oberste Schicht und somit wäre der Effekt eines kohärenten schweren Fermionensystems nicht unbedingt messbar.

Abstract

The present work investigates the correlation of structural, electronic, and magnetic properties at metal surfaces by scanning tunneling microscopy (STM) and spectroscopy (STS). First I analyze the spin-split surface state of Ni(111). Subsequently the focus goes on iron thin films grown on Rh(001). Finally the heavy-fermion candidate CePt₅/Pt(111) is investigated.

Nickel is a well-known ferromagnet and its (111) surface has been the subject of several theoretical and experimental studies in the past. Despite intensive efforts, inconsistent results have been reported and a clear consistent picture is still missing. For this reason, the Ni(111) surface has been probed by STM and STS, which give access to both occupied and unoccupied states. By quasi-particle interference mapping a detailed description of the band dispersion is obtained. The exchange splitting between minority and majority spin states amounts to $\Delta E_{\text{ex}} = (100 \pm 8)$ meV. The onset of the majority band is located at $E - E_{\text{F}} = -(160 \pm 8)$ meV and its effective mass is $m^* = +(0,14 \pm 0,04) m_{\text{e}}$. Furthermore, the onset of the majority spin surface resonance is energetically located at $E - E_{\text{F}} = -(235 \pm 5)$ meV and with an effective mass equal to $m^* = +(0,36 \pm 0,05) m_{\text{e}}$. To unequivocally identify which spin channels dominate the STS signal, hexagonal quantum wells have been created by sputtering, and interpreted using a one-dimensional quantum well model. The six edges of the hexagon result to be unequal. Atomically resolved measurements show that adjacent edges have not only a different structure, but also different spectroscopic signatures characterized by an alternating sequence of presence and absence of an additional spectroscopic peak. Spin-dependent (SP-STM) measurements did not give any definite conclusion on the origin of this observation.

The second experimental section deals with thin iron films deposited on a clean Rh(001) surface and examined by STM, STS and SP-STM. A nearly defect-free Rh(001) is necessary to obtain a growth of iron films with few defects. This is required to correctly interpret the magnetic signal excluding the possible influence of contaminants. The first atomic layer of Fe orders antiferromagnetically in a $c(2 \times 2)$ structure with the easy magnetization axis perpendicular to the surface plane. The second and third layer behaves ferromagnetically with domains sizes which get progressively smaller by increasing the coverage. Above 3.5 atomic layers, a reorientation of the easy magnetization direction from out-of-plane to in-plane takes place. This is signaled by the size of magnetic domains which become smaller while at the same time domain walls become larger. Temperature-dependent SP-STM measurements allow to estimate a Curie temperature of approximately 80 K for the second layer. At this coverage an additional periodic modulation of the local density of states is detected and persists, although with a shorter wavelength, in the third and fourth layer. Temperature and voltage-dependent measurements support an interpretation of these data based on the existence of a charge density wave. I show that these two usually competing orders (charge and magnetic order)

coexist and influence each other, as also confirmed by theoretical calculations performed in collaboration with F. P. Toldin and F. Assaad.

In the final chapter the $\text{CePt}_5/\text{Pt}(111)$ intermetallic surface compound has been analyzed. This system has been recently reported to give rise to a heavy Fermion lattice. Starting from the clean $\text{Pt}(111)$ surface, the intermetallic surface compound $\text{CePt}_5/\text{Pt}(111)$ is prepared. The thickness of the alloy (t in u.c.) can be varied by the evaporated amount of cerium and the surface produced is examined with STM and STS for various thicknesses. STM images and LEED patterns analyzed in collaboration with C. Praetorius provide consistent results. For coverages below one atomic layer cerium no ordered structure with the STM was observed. For 2 u.c. a (2×2) surface structure and for 3 u.c. CePt_5 a $(3\sqrt{3} \times 3\sqrt{3})R30^\circ$ structure was observed. The transition from 3 u.c. CePt_5 to 5 u.c. CePt_5 was investigated. Supported by structural modelling I conclude that neither a rotation of the atomic lattice nor a rotation of the superstructure was observed. Starting at a coverage of 6 u.c. CePt_5 the CePt_5 intermetallic surface compound evolves into a different structure. The high symmetry direction is aligned with the underlying $\text{Pt}(111)$ crystal and no longer rotated by 30° . For all coverages spectroscopic data are acquired, which give no indication of a coherent heavy Fermion system. One explanation is based on a LEED-IV study, which says that any measured surface is terminated with a $\text{Pt}(111)$ -layer. The STM is sensitive to the uppermost layer, and thus the effect of a coherent heavy Fermion system would not necessarily be measurable.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Grundlagen	3
2.1	Der Tunneleffekt	3
2.2	Theorie von Bardeen und Erweiterung durch Tersoff und Hamann	5
2.3	Funktionsweise des RTM und Messmodi	7
2.4	Rastertunnelspektroskopie	10
2.5	Spinpolarisierte Rastertunnelmikroskopie	11
2.6	Oberflächenzustand und Quasiteilcheninterferenz (QPI)	14
3	Experimenteller Aufbau	19
4	Oberflächenzustände von Ni(111)	23
4.1	Überblick über die Literatur	23
4.2	Quasiteilcheninterferenz an der Ni(111)-Oberfläche	26
4.3	Lochartige Inseln zur weiteren Interpretation	30
4.4	Kantenzustände bei Ni(111)	32
4.4.1	Stufenkanten auf fcc-Kristallen	32
4.4.2	Experimentelle Ergebnisse	33
5	Dünne Eisenfilme auf Rh(001)	41
5.1	Literatur zu dünnen Eisenfilmen auf Rh(001)	41
5.2	Ladungsdichtewelle	42
5.3	Probenpräparation	44
5.4	Wachstum dünner Eisenfilme auf Rh(001)	46
5.5	SP-RTM an dünnen Eisenfilmen auf Rh(001)	46
5.6	Temperaturabhängigkeit des Magnetismus	53
5.7	Ausbildung einer periodischen Modulation	53
5.8	Diskussion der periodischen Modulation und des Magnetismus	59
6	Wachstum und elektronische Eigenschaften der CePt₅-Oberflächenlegierung	63
6.1	Schwere Fermionensysteme	63
6.2	Literaturvergleich	67

6.3	Klassifizierung der Schichtdicken	70
6.3.1	Probenpräparation und Bildung einer Oberflächenlegierung	70
6.3.2	Dünne Filme	72
6.3.3	Filme mittlerer Dicke	74
6.3.4	Dicke Filme	79
6.4	Spektroskopische Eigenschaften der CePt ₅ -Oberflächenlegierung	82
6.4.1	Dünne Filme	82
6.4.2	Filme mittlerer Dicke	83
6.4.3	Dicke Filme	83
6.4.4	Diskussion	84
7	Zusammenfassung	87
	Literaturverzeichnis	89
	Liste eigener Publikationen	101
	Abbildungsverzeichnis	102
	Abkürzungsverzeichnis	104
	Erklärung	104
	Lebenslauf	104

1 Einleitung

Korrelationseffekte sind auf Wechselwirkungen von mehreren Teilchen zurückzuführen, deren Auswirkungen sowohl elektrischer als auch magnetischer Art sein können. So können durch die Auswahl der Materialzusammensetzung und der Materialien selbst die strukturellen, elektronischen und magnetischen Eigenschaften und damit die Art der Wechselwirkung beeinflusst werden. Die magnetischen Eigenschaften können beispielsweise bei dünnen Filmen durch die Wahl des Substrates und durch die Menge an magnetischem Material variiert werden, so dass es zur Ausbildung von Anti- oder Ferromagnetismus kommt [1–3]. Dabei werden immer wieder Materialzusammensetzungen entdeckt, die für die Datenspeicherung von Bedeutung sein können [4–7]. Durch die Materialzusammensetzung kann es auch zur Ausbildung eines schweren Fermionensystems kommen, wie am Beispiel von CeCoIn_5 gezeigt werden konnte [8]. Dabei entsteht erst durch die Zugabe von Hg ein schweres Fermionensystem. In der folgenden Arbeit werden einige Systeme, deren Eigenschaften auf Korrelationseffekten beruhen, analysiert. Die Eigenschaften dieser Systeme werden mittels (spin-polarisierter) Rastertunnelmikroskopie (RTM) und -spektroskopie (RTS) ermittelt, weshalb im Kap. 2 auf die Grundlagen des Tunneleffekts, der Rastertunnelmikroskopie und -spektroskopie sowie spin-polarisierter RTM eingegangen wird. Ebenso wird auch die Quasiteilcheninterferenz erläutert und mit einem schon in der Literatur untersuchten Beispiel ($\text{Ag}(111)$) die Funktionsweise des RTM und die Methodik überprüft. Durch die Quasiteilcheninterferenz können Bänder, die zur Streuung beitragen, im reziproken Raum analysiert werden und somit auch Vergleiche zur Photoemissionspektroskopie vollzogen werden.

Der experimentelle Aufbau wird in Kap. 3 vorgestellt. Die Proben temperatur beträgt bei diesem RTM 5,5 K und die komplette Messapparatur befindet sich im Ultrahochvakuum.

In Kap. 4 geht es um die $\text{Ni}(111)$ -Oberfläche, die ferromagnetisch ist und worüber sich schon einige Studien in der Literatur finden lassen [9–19]. Die Ergebnisse konnten jedoch teilweise nicht reproduziert werden bzw. sind untereinander nicht konsistent, weshalb die $\text{Ni}(111)$ -Oberfläche mittels Quasiteilcheninterferenz und RTS im Kap. 4 untersucht wird. Zur Verifikation der zur RTS beitragenden Oberflächenzustände wurden hexagonal lochartige Inseln im eindimensionalen Quantentrogmodell interpretiert und dabei ein elektronischer Zustand an den Stufenkanten der hexagonal lochartigen Inseln entdeckt [20, 21]. Zudem wurde an der $\text{Ni}(111)$ -Oberfläche und den hexagonal lochartigen Inseln spin-polarisierte RTM und RTS durchgeführt.

Das Probensystem Fe auf $\text{Rh}(001)$ wird in Kap. 5 analysiert [22–24]. Der Magnetismus in den

ersten Lagen wird mit verschiedenen magnetischen Spitzen untersucht und für die zweite Lage wird zusätzlich eine temperaturabhängige Messung vorgestellt um die Curietemperatur zu erhalten [25–27]. Ab der zweiten Lage zeigt sich eine periodisch elektronische Modulation, welche im Kontext einer Ladungsdichtewelle stehen könnte. Die Periodizität der Streifen variiert auf den unterschiedlichen Lagen und auf der zweiten Lage werden die Streifen wiederum temperaturabhängig untersucht. Ebenfalls werden Rechnungen gezeigt, die auf die Korrelation von magnetischer und elektronische Ordnung schließen.

Ein weiteres Probensystem ist das kohärente schwere Fermionensystem $\text{CePt}_5/\text{Pt}(111)$, welches in Kap. 6 vorgestellt wird [28]. Zunächst wird auf dem $\text{Pt}(111)$ -Einkristall eine saubere Oberfläche erzeugt, um im Anschluss die Oberflächenlegierung $\text{CePt}_5/\text{Pt}(111)$ herzustellen. Die Oberfläche der Legierung wird schichtdickenabhängig mit RTM und RTS analysiert und die erhaltenen Gitterkonstanten in Zusammenarbeit mit C. Praetorius mit LEED-Daten verglichen [29]. Es wird ein Modell entwickelt, anhand dessen der Übergang zwischen drei und vier Lagen CePt_5 auf $\text{Pt}(111)$ erklärt werden kann.

In Kap. 7 folgt eine Zusammenfassung der wichtigsten Ergebnisse und ein Ausblick auf weitere mögliche Messungen.

2 Grundlagen

In diesem Kapitel werden die theoretischen Grundlagen der Rastertunnelmikroskopie (Tunnel-effekt, Theorie von Bardeen, Erweiterung von Tersoff und Hamann) sowie seine Funktionsweise und Messmodi behandelt. Des Weiteren werden Messmethoden wie die Rastertunnelspektroskopie und die spin-polarisierte Rastertunnelmikroskopie vorgestellt. Die einzelnen Unterpunkte werden soweit diskutiert, wie sie zum allgemeinen Verständnis der Arbeit beitragen. Für weiterführende oder ausführlichere Erklärungen sei an dieser Stelle auf die Bücher von R. Wiesendanger und C. J. Chen sowie den Übersichtsartikel über spin-polarisierte Rastertunnelmikroskopie von M. Bode hingewiesen, aus welchen ich auch den Großteil der hier vorgestellten Theorie entnommen habe [30–32].

2.1 Der Tunneleffekt

Die Messmethode des Rastertunnelmikroskops (RTM) basiert auf dem quantenmechanischen Tunneleffekt. Mit klassischer Physik lässt sich dieser Effekt nicht erklären, da ein Teilchen der Energie E eine Potentialbarriere V_0 mit $E < V_0$ nicht überwinden kann. Das Teilchen wird im klassischen Bild an der Potentialbarriere reflektiert, wie in Abb. 2.1 (a) zu sehen ist. Betrachtet man nun ein sehr kleines Teilchen (beispielsweise ein Elektron), so besitzt das Teilchen in der quantenmechanischen Beschreibung eine endliche Wahrscheinlichkeit, dass das Teilchen (Elektron) auch für $E < V_0$ durch die Potentialbarriere tunneln kann, s. Abb. 2.1 (b).

Die drei Bereiche vor $z < 0$ (I), in $0 < z < a$ (II) und nach $z > a$ (III) der Potentialbarriere lassen sich unabhängig voneinander mit der zeitunabhängigen eindimensionalen Schrödingergleichung lösen [30, 31]

$$\left(-\frac{\hbar^2}{2m_0} \frac{d^2}{dz^2} + V(z)\right) \Psi(z) = E\Psi(z). \quad (2.1)$$

Dabei ist \hbar das reduzierte Plancksche Wirkungsquantum, m_0 die Elektronenmasse und $\Psi(z)$ die Wellenfunktion. Für den Bereich I ist das Potential gleich Null und der Lösungsansatz ergibt sich zu

$$\Psi_I(z) = Ae^{ikz} + Be^{-ikz} \quad (2.2)$$

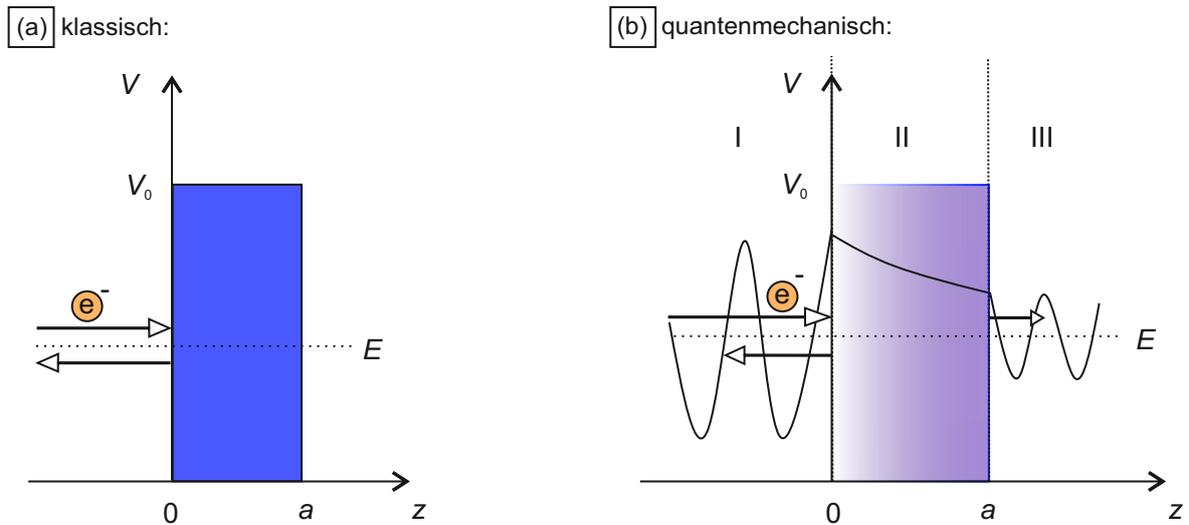


Abbildung 2.1: (a) Im klassischen Bild wird das Teilchen an der Potentialbarriere reflektiert. (b) Bei der quantenmechanischen Betrachtung des Elektrons besteht eine endliche Wahrscheinlichkeit, dass das Elektron durch die Potentialbarriere tunnelt. Die Bereiche lassen sich in I, II und III einteilen und lösen.

mit der Wellenzahl

$$k^2 = \frac{2m_0E}{\hbar^2}, \quad (2.3)$$

sodass ebene hin- und rücklaufende Wellen mit den Amplituden A und B entstehen [30]. Im Bereich II muss das Potential V_0 berücksichtigt werden und der Lösungsansatz hierbei ist

$$\Psi_{\text{II}}(z) = Ce^{-\kappa z} + De^{\kappa z} \quad (2.4)$$

mit der Abklinglänge

$$\kappa^2 = \frac{2m_0(V_0 - E)}{\hbar^2}. \quad (2.5)$$

Dies hat eine exponentiell gedämpfte auslaufende Welle zur Folge und die negative Wellenzahl entspricht der Abklinglänge für den Bereich innerhalb der Potentialbarriere. Für den Bereich III mit dem Lösungsansatz $\Psi_{\text{III}}(z) = Ee^{-ikz} + Fe^{ikz}$ ist das Potential wieder gleich Null und die Wellenzahl beträgt $k^2 = \frac{2m_0E}{\hbar^2}$.

Der Transmissionskoeffizient durch die Barriere ist das Verhältnis von transmittierter Stromdichte j_t zu einfallender Stromdichte j_e [30]

$$T = \frac{j_t}{j_e} = \frac{-i\hbar}{2m_0} \left(\Psi^*(z) \frac{d\Psi(z)}{dz} - \Psi(z) \frac{d\Psi^*(z)}{dz} \right) = \frac{\hbar k}{m_0} |E|^2. \quad (2.6)$$

Aus der Stetigkeitsbedingung der Wellenfunktion Ψ und ihrer Ableitung $\frac{d\Psi}{dz}$ an den Unstetigkeitsstellen bei $z = 0$ und $z = a$ ergibt sich

$$T = \frac{4k^2\kappa^2 \sinh(\kappa a)}{1 + (k^2 + \kappa^2)^2}. \quad (2.7)$$

Unter der Annahme einer stark dämpfenden Potentialbarriere folgt für T

$$T \approx \frac{16k^2\kappa^2}{(k^2 + \kappa^2)^2} \times e^{-2\kappa a}. \quad (2.8)$$

In diesem einfachen Modell wird bereits die exponentielle Abstandsabhängigkeit ($e^{-2\kappa a}$) der Tunnelbarriere deutlich, die an einem kleinen Beispiel veranschaulicht werden soll. Bei einer Barrierenbreite von $z = 5 \text{ \AA}$ und einer effektiven Barrierenhöhe von $V_0 - E = 4 \text{ eV}$ ergibt sich ein Wert von 10^{-5} für den exponentiellen Faktor. Ändert man nun die Barrierenbreite um 1 \AA , so ändert sich der Transmissionskoeffizient bereits um eine Größenordnung. Das experimentell erzielte Auflösungsvermögen konnte anfangs theoretisch nicht erklärt werden. Hierzu entwickelte Bardeen eine Theorie, die von Tersoff und Hamann auf das RTM angewendet und erweitert wurde.

2.2 Theorie von Bardeen und Erweiterung durch Tersoff und Hamann

Bardeen interpretierte den Tunnelstrom zwischen zwei Elektroden mit einer zeitabhängigen Störungstheorie erster Ordnung [33]. Mit Hilfe Fermis goldener Regel definierte er das Tunnelmatrixelement

$$M_{\mu\nu} = - \left(\frac{\hbar^2}{2m_0} \right) \int d\vec{S} (\Psi_\mu^* \nabla \Psi_\nu - \Psi_\nu \nabla \Psi_\mu^*), \quad (2.9)$$

wobei Ψ_ν die Wellenfunktion der Probe und Ψ_μ die Wellenfunktion der Spitze ist. Das Integral geht über eine Oberfläche, die senkrecht zwischen den Elektroden liegt und der Ausdruck in den Klammern $(\Psi_\mu^* \nabla \Psi_\nu - \Psi_\nu \nabla \Psi_\mu^*)$ entspricht dem Stromdichteoperator.

Die Übertragung der Theorie von Bardeen auf das RTM gelang 1983 Tersoff und Hamann, die in einem einfachen Modell die zeitabhängige Störungstheorie erster Ordnung anwandten [34, 35]. Dabei ergibt sich der Tunnelstrom mit dem Tunnelmatrixelement von Bardeen zu

$$I = \frac{2\pi}{\hbar} e^2 U \sum_{\mu\nu} |M_{\mu\nu}|^2 \delta(E_\nu - E_F) \delta(E_\mu - E_F). \quad (2.10)$$

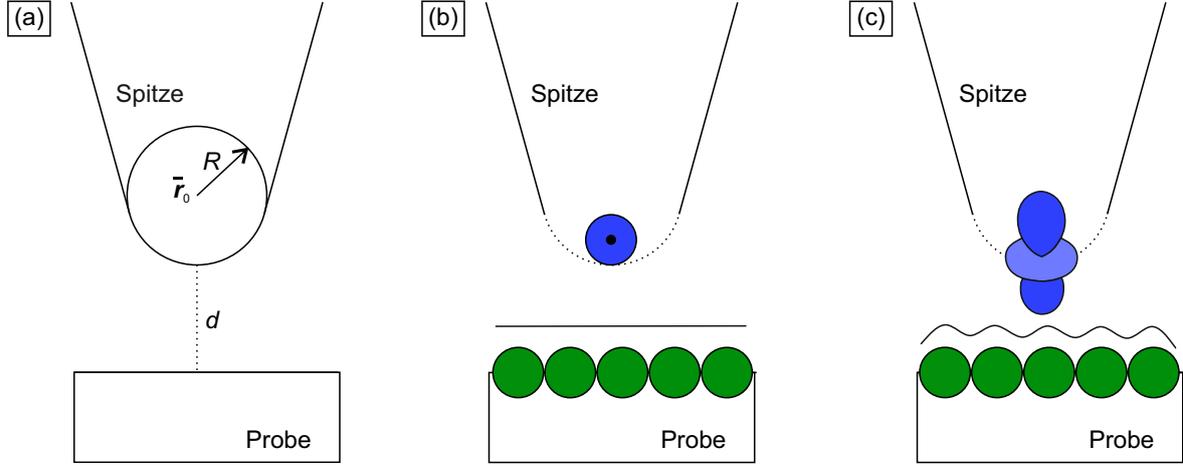


Abbildung 2.2: (a) Modell für die Rastertunnelmikroskopie adaptiert von Tersoff und Hamann [35]. Dabei ist \vec{r}_0 der Ort mit dem Krümmungsradius R der Spitze und d der Abstand zwischen Spitze und Probe. (b) Die Annahme einer Spitze mit s -Wellencharakter führt zu einem Auflösungsvermögen von ca. 5 \AA und einer geringen Korrugation, da die Zustände schwach lokalisiert sind. (c) Chen geht von einer Spitze aus, deren Zustände an der Fermikante größtenteils aus d -Orbitalen besteht, die stärker lokalisiert sind als bei einem s -Orbital. Dadurch lässt sich eine höhere Korrugation erzielen und das Auflösungsvermögen wird ebenfalls verbessert ($2\text{-}3 \text{ \AA}$) [36].

Hierbei ist e die Elementarladung, U die Spannung und E_F die Energie an der Fermikante. Die Oberflächenwellenfunktionen Ψ_ν und Ψ_μ werden Fourier-entwickelt, da die Probe als halbinendlicher Kristall angenommen wird, wobei die Wellenfunktion der Spitze Ψ_μ als sphärisch betrachtet wird und s -Wellencharakter besitzt [34,35]. Setzt man nun die entwickelten Funktionen in das Tunnelmatrixelement ein und erweitert dieses innerhalb der s -Wellen-Näherung, so erhält man, unter der Annahme niedriger Temperaturen und kleiner Spannungen, den Tunnelstrom zu [30]

$$I = \frac{32\pi^3 e^2 U \Phi^2 \rho_s(E_F) R^2}{\hbar \kappa^4} e^{2\kappa R} \sum_\nu |\Psi_\nu(\vec{r}_0)|^2 \delta(E_\nu - E_F). \quad (2.11)$$

Φ ist das effektive lokale Potential, $\kappa = \sqrt{\frac{2m_0\Phi}{\hbar^2}}$ die Abklinglänge, $\rho_s(E_F)$ ist die Zustandsdichte der Spitze an der Fermienergie, R ist der effektive Spitzenradius und \vec{r}_0 ist der Ursprung der Krümmung der Spitze. Das schematische Model von Tersoff und Hamann hierzu zeigt Abb. 2.2 (a) [35]. Die lokale Zustandsdichte der Probe an der Fermikante lässt sich wie folgt definieren [30, 31]

$$\rho_p(E_F, \vec{r}_0) = \sum_\nu |\Psi_\nu(\vec{r}_0)|^2 \delta(E_\nu - E_F). \quad (2.12)$$

Die Wellenfunktion $\Psi_\nu(\vec{r})$ der Probe klingt exponentiell ins Vakuum ab, wodurch sich am Ort \vec{r}_0 eine Dämpfung ergibt, die das Betragsquadrat der Wellenfunktion $|\Psi_\nu(\vec{r}_0)|^2$ beschreibt

und proportional zu $e^{-2\kappa(d+R)}$ ist. Der Tunnelstrom ist nach Gleichung (2.11) proportional zu $e^{-2\kappa d}$, da hier nur der Abstand zwischen Probe und Spitze betrachtet wird. Für einen größeren Spannungsbereich, in dem Elektronen nicht nur an der Fermikante sondern aus einem Energieintervall von 0 bis eU tunneln, lässt sich der Tunnelstrom folgendermaßen beschreiben [30]:

$$I \propto \int_0^{eU} \rho_p(E) \cdot \rho_s(E, eU) \cdot T(E, eU) dE. \quad (2.13)$$

Der Transmissionsfaktor hierbei lautet

$$T(E, eU) = \exp \left[-d \cdot \sqrt{\frac{2m}{\hbar^2} \left(\frac{\Phi_p + \Phi_s}{2} + \frac{eU}{2} + E \right)} \right]. \quad (2.14)$$

Tersoff und Hamann nahmen bei der Spitze an, dass sie aus s -Orbitalen ($m = 0$) besteht. Die berechnete maximale Auflösung liegt bei 5 \AA [34, 35]. Allerdings wurde bis heute mehrfach bewiesen, dass sich mit dem RTM atomare Auflösung (Atomabstand $< 5 \text{ \AA}$) erzielen lässt und die Annahme einer Spitze mit s -Wellencharakter somit nicht tragfähig ist, s. Abb. 2.2 (b). Experimentell zeigten Wintterlin *et al.* 1989 das erste Mal auf einer dicht gepackten Al(111)-Oberfläche atomare Auflösung mit einer Spitze aus Wolfram [37]. Die am häufigsten verwendeten Spitzen bei der RTM bestehen aus Wolfram oder Platin/Iridium. Bei diesen Materialien tragen die d -Orbitale zu 85% zur Zustandsdichte an der Fermikante bei und somit sollte eine Spitze mit d -Wellencharakter angenommen werden [36]. Durch Berücksichtigung des d -Wellencharakters und der somit stärker lokalisierten Zustände an der Spitze ($m \neq 0$) konnte Chen theoretisch das experimentelle Auflösungsvermögen und die Korrugation erklären, was Abb. 2.2 (c) zeigt [36]. Abbildung 2.3 verdeutlicht die unterschiedlichen Vorgänge der Rastertunnelmikroskopie [30]. In Abb. 2.3 (a) besteht kein Kontakt zwischen Spitze und Probe, was am unterschiedlichen Ferminiveau deutlich wird. Bringt man nun Spitze und Probe in Tunnelkontakt, so gleicht sich das Ferminiveau von Probe und Spitze aneinander an und verschiebt dadurch das Vakuumlevel von Spitze bzw. Probe (Abb. 2.3 (b)). Legt man nun eine positive (negative) Spannung an die Probe an, so verschiebt sich das Ferminiveau um die angelegte Spannung bzw. Energie eU und Elektronen tunneln von der Spitze (Probe) in die Probe (Spitze) (Abb. 2.3 (c, d)). Dabei erhält man in dem hier betrachteten Fall ein erhöhtes Signal bei einer größeren Zustandsdichte der Probe.

2.3 Funktionsweise des RTM und Messmodi

Nach der theoretischen Erklärung der Funktionsweise des RTM wird nun die experimentelle Realisierung erläutert. Das RTM wurde im kompakten Pan-Style gebaut [38] und die Spitze

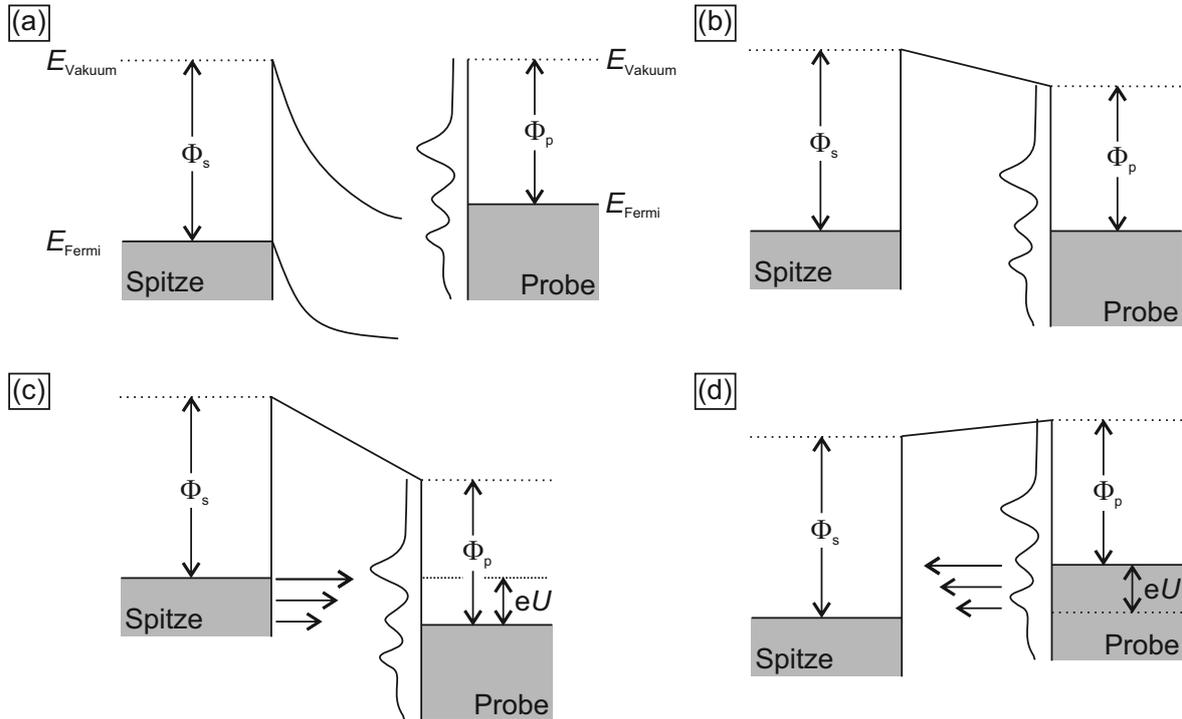


Abbildung 2.3: (a) Die Bänder und Austrittsarbeit von Spitze und Probe werden in diesem Bild jeweils getrennt voneinander betrachtet. Beispielhaft für alle weiteren Teilabbildungen dieser Grafik sind das Vakuumniveau und die Fermienergie eingezeichnet. (b) Kommen Spitze und Probe in Tunnelkontakt, so gleicht sich das Fermienergie von Spitze und Probe an. (c) Legt man eine positive Spannung U an, so verschieben sich die Bänder um die Energie eU und Elektronen tunneln von der Spitze in die Probe. Dabei nimmt die Tunnelwahrscheinlichkeit der Elektronen mit dem Abstand zum Fermienergie ab. (d) Bei einer negativen Spannung tunneln Elektronen von der Probe in die Spitze. Die Tunnelwahrscheinlichkeit der Elektronen nimmt ebenfalls mit dem Abstand zum Fermienergie ab. Abbildung in Anlehnung an [30].

befindet sich innerhalb eines Piezoröhrensanners in Form eines Hohlzylinders. Der Hohlzylinder verspricht eine hohe Stabilität und ist aus einer Piezokeramik gefertigt, welche sich beim Anlegen einer Spannung aufgrund des piezoelektrischen Effektes mit einer Genauigkeit von wenigen Ångström verformt. Dabei befinden sich die Elektroden für die Auslenkung in x - und in y -Richtung an der Außenwand des Hohlzylinders und die Ringelektrode für die Auslenkung in z -Richtung an seiner Innenwand.

Die Reichweite der Ringelektrode bzw. die Auslenkung in z -Richtung liegt im Nanometerbereich, die abhängig von der angelegten Spannung ist. Die Genauigkeit beträgt wenige Pikometer und ist ebenfalls indirekt abhängig von der angelegten Spannung und der Stabilität des RTMs. Zur ersten ungefähren Annäherung der Spitze im Röhrensacenner an die Probe ist ein Grobmotor aus sechs Piezostapeln eingebaut, wobei die Piezostapel wieder spannungsabhängig bewegt werden. Dieser Grobmotor, in dessen Zentrum sich der Röhrensacenner befindet, liegt im Inneren eines Körpers aus Phosphorbronze. Sechs Piezostapel halten den Trägheitsmotor in Position und sind gleichzeitig für die Grobannäherung zuständig, die nach der "slip-stick" Methode

erfolgt. Dabei wird der Scanner durch die Piezostapel langsam maximal ausgefahren und schnell wieder zurückgezogen (Sägezahnspannung). Durch das schnelle Zurückziehen ist der Scanner zu träge und bleibt ausgelenkt. Die Piezostapel dagegen sind zurückgezogen und können den Scanner an der neuen Position wieder maximal auslenken. Dieser Vorgang wird solange wiederholt bis der eingestellte Tunnelstrom bei einer eingestellten Spannung zwischen Probe und Spitze detektiert wird. Typischerweise liegt der voreingestellte Tunnelstrom zwischen 100 pA und 1 nA. Die Steuerung des Scanbereichs, des Stromes und der Spannung, regelt die Software "Nanonis" mit der dazugehörige Elektronik [39], die die am PC vorgenommenen Einstellungen an das Mikroskop weiterleitet und die ankommenden Signale (z -Auslenkung) registriert.

Zur Aufnahme eines Bildes rastert der Piezoröhrenscanner zeilenweise einen zuvor eingestellten Messbereich Pixel-für-Pixel ab und speichert für jedes Pixel den Tunnelstrom und die z -Auslenkung. Es gibt zwei unterschiedliche Messmodi beim Rastertunnelmikroskop [30], wobei auf den Modus "konstante Höhe" nicht weiter eingegangen wird, da er für diese Arbeit nicht von Bedeutung ist. Bei der Einstellung "konstanter Strom" regelt die Elektronik die Länge des Röhrenpiezo im Inneren des Scanners so nach, dass der Tunnelstrom konstant gehalten wird, s. Abb. 2.4 (a). Dieser Messmodus wird am häufigsten verwendet, da hierbei die Gefahr einer Kollision von Probe und Spitze gering ist, da die meisten Proben nicht atomar flach sind. Die Informationen der Probenoberfläche werden in der z -Auslenkung des Röhrenpiezos gespeichert und hängen sowohl von der Korrugation der Oberfläche als auch von der lokalen Zustandsdichte

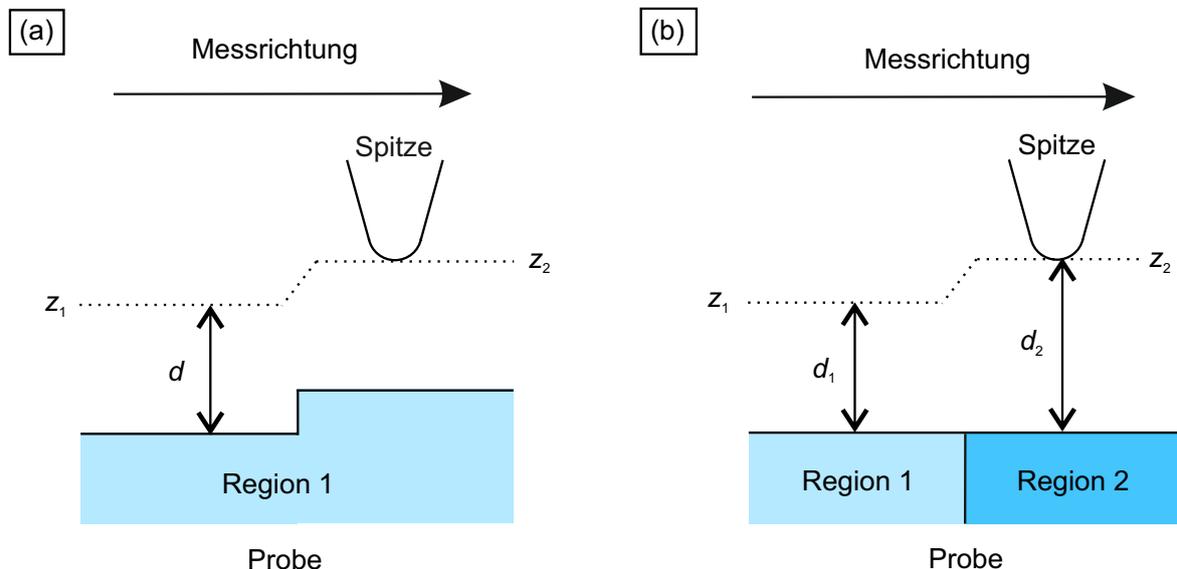


Abbildung 2.4: (a) Im Modus "konstanter Strom" wird der Abstand zwischen Probe und Spitze konstant gehalten und die Höhe der Spitze mit dem Höhenprofil der Probe bei konstanter Zustandsdichte variiert. (b) Beim Modus "konstante Höhe" kann sich der Abstand zwischen Spitze und Probe auch verändern, wenn man in einen Bereich der Probe kommt, welcher mehr (oder weniger) Zustände bei der eingestellten Spannung hat.

an der Probenoberfläche ab (vgl. Gl. (2.13)). Aus diesem Grund ist die Unterscheidung zwischen Topographie der Probe und deren elektronischen Eigenschaften nicht immer trivial, was sich bei unterschiedlichen Strukturen zeigen wird, wie sie in Kap. 6 vorkommen. Besitzt eine Probe beispielsweise Bereiche mit unterschiedlicher Zustandsdichte (vgl. Abb. 2.4 (b)) aber gleicher Höhe, so wird die Höhe der Spitze (z) beim Übergang zwischen diesen Bereichen geändert. In der Messung wird somit eine Höhenänderung der Spitze generiert, die nicht auf die Topographie der Oberfläche zurückzuführen ist, sondern auf ihre elektronischen Eigenschaften. Zur Untersuchung elektronischer Eigenschaften eignet sich auch die Rastertunnelspektroskopie, die im folgenden Kapitel näher erläutert wird.

2.4 Rastertunnelspektroskopie

Neben der Topographie lässt sich mit Hilfe eines RTMs auch die lokale Zustandsdichte der Probe analysieren. Dieser Modus des RTMs wird als Rastertunnelspektroskopie (RTS) bezeichnet. Bei der RTS wird die differentielle Leitfähigkeit dI/dU gemessen, die man durch Ableiten von Gl. 2.13 nach der Spannung erhält und folgende Proportionalität beinhaltet [30]:

$$\frac{dI}{dU}(U) \propto e\rho_s(0)\rho_p(eU)T(eU, eU) + \int_0^{eU} \rho_p(\pm eU \mp E)\rho_s(E) \cdot \frac{dT(E, eU)}{dU} dE \quad (2.15)$$

Der erste Term setzt sich aus der Zustandsdichte der Probe ρ_p an der Energie eU , der Spitze ρ_s am Ferminiveau und dem Transmissionskoeffizienten T zusammen. Dagegen kann der zweite Term häufig vernachlässigt werden, da der Transmissionsfaktor stetig mit der Spannung ansteigt und somit nur zu einem monotonen Anstieg des dI/dU -Signals ohne weiteren Informationsgehalt beiträgt [40]. Bei der RTS wird die Spannung variiert, wobei man bei einer Spannung von $U > 0$ die unbesetzten Zustände der Probe spektroskopiert und die meisten Elektronen von der Spitze in die Zustände der Energie eU der Probe tunneln. In diesem Fall gilt Gl. 2.15 uneingeschränkt. Misst man dagegen die besetzten Zustände im Spannungsbereich $U < 0$, tunnelt ein Großteil der Elektronen vom Ferminiveau der Probe in die unbesetzten Zustände der Spitze. Somit wird nur ein geringer Teil des Signals von Elektronen aus den Zuständen der Energie eU geprägt und das Signal reflektiert hauptsächlich die Zustände an der Spitze, die allerdings kaum vorhanden sind und die Zustandsdichte relativ glatt ist [30].

Experimentell erhält man das dI/dU -Signal auf zwei unterschiedliche Arten. Zum einen kann die I/U -Kurve numerisch abgeleitet werden. Hierbei ist das Signal mit sehr viel Rauschen aufgrund von mechanischen Schwingungen überlagert und deshalb ist diese Variante nicht zufriedenstellend. Eine andere Möglichkeit besteht darin, die differentielle Leitfähigkeit mit der sogenannten Lock-In Methode zu messen. Hierbei wird eine sinusförmige Spannung ($U_{\text{mod}} \approx 1...20 \text{ mV}$) mit einer hohen Modulationsfrequenz (in der vorliegenden Arbeit typischerweise $5,777 \text{ kHz}$) über die Tunnelspannung gelegt und diese somit ebenfalls moduliert. Mit

Hilfe des Lock-In-Verstärkers kann nun die erste harmonische Schwingung detektiert werden, die direkt proportional zur differentiellen Leitfähigkeit dI/dU ist.

Für die RTS wird die Spitze an einen ausgewählten punktförmigen Ort auf der Probe gebracht. Anschließend wird bei eingestellter Spannung und eingestelltem Strom (Stabilisierungsparameter) die Regelschleife ausgeschaltet ($z = \text{konst.}$) und die Spannung in einem vorher definierten Bereich variiert. Dabei wird der Strom und das dI/dU -Signal aufgezeichnet und letzteres spannungsabhängig aufgetragen. Dadurch erhält man spannungsabhängig Informationen zur lokalen Zustandsdichte der Probe.

Neben der Spektroskopie können auch sogenannte dI/dU -Karten erstellt werden. Dabei wird gleichzeitig zur Topographie an jedem Punkt das dI/dU -Signal, d.h. die lokale Zustandsdichte, aufgezeichnet. In diesem Modus bleibt die Regelschleife aktiv, da größtenteils im Modus "konstanter Strom" gemessen wird. Die Modulationsfrequenz wird so hoch gewählt, dass die Regelschleife nicht beeinflusst wird, d.h. die Modulationsfrequenz liegt über der Frequenz der Regelschleife.

Eine weitere Möglichkeit ist die GRID-Spektroskopie. Hier wird ein Bereich auf der Probe ausgewählt, welcher in Pixel aufgeteilt wird und für jedes Pixel wird eine Spektroskopiekurve aufgenommen. Eine GRID-Spektroskopie kann sehr zeitintensiv sein, allerdings erhält man dadurch auch relativ schnell eine Übersicht über die lokale Zustandsdichte des ausgewählten Bereichs. Dies kann vor allem bei Oberflächen mit Rekonstruktionen von Vorteil sein, wie sich in Kap. 6 zeigen wird.

2.5 Spinpolarisierte Rastertunnelmikroskopie

Die spinpolarisierte Rastertunnelmikroskopie (SP-RTM) eröffnet zusätzlich zu den vorangegangenen Untersuchungsmethoden eine Möglichkeit zur orts aufgelösten Analyse magnetischer Strukturen. Für die SP-RTM wird eine magnetische Spitze verwendet, um den an der Oberfläche vorherrschenden Magnetismus einer vermeintlich magnetischen Probe zu analysieren. Geht man von einer Barriere aus, die aus Ferromagnet - Isolator - Ferromagnet besteht, so muss für das Tunneln die Richtung der Magnetisierung der Ferromagneten berücksichtigt werden (Stoner-Modell) [32, 41]. Dabei kann es zu einer parallelen und antiparallelen Orientierung oder einer Orientierung mit einem Winkel (z.B. 90°) kommen. Bei einem Winkel von 90° tritt kein Effekt auf. Für die Richtung der Magnetisierung spielt der Tunnel-Magnetowiderstand (TMW) eine wesentliche Rolle, da er ein Verhältnis von der Polarisation der Spitze zur Polarisation der Probe herstellt [32]. Die Spinpolarisation von Probe P_p und Spitze P_s an der Fermienergie setzt sich folgendermaßen zusammen:

$$P_{s,p} = \frac{\rho_{s,p}^{\uparrow} - \rho_{s,p}^{\downarrow}}{\rho_{s,p}^{\uparrow} + \rho_{s,p}^{\downarrow}}. \quad (2.16)$$

Dabei sind ρ_s und ρ_p die Zustandsdichten von Spitze und Probe mit jeweils Spin "up, \uparrow " und "down, \downarrow ".

Der TMW für die Winkelabhängigkeit θ lautet mit der Spinpolarisation von Spitze und Probe [32]:

$$R_{\text{TMW}} = \frac{2P_s P_p}{1 - P_s P_p} \cos\theta. \quad (2.17)$$

Der Tunnelstrom setzt sich nun aus dem Tunnelstrom I_0 , wie er in Kap. 2.2 definiert wurde und einem weiteren Term $I_{s,p}$ zusammen.

$$I = I_0 + I_{s,p} = I_0(1 + P_{s,p} \cos\theta). \quad (2.18)$$

An dem einfachen Beispiel des Stoner-Modells ist bereits ersichtlich, dass der Anteil des spinpolarisierten Stromes I_{sp} maximal wird, wenn die Magnetisierungsrichtungen von Probe und Spitze in die gleiche Richtung zeigen. Für entgegengesetzte Magnetisierungsvektoren von Spitze und Probe wird I_{sp} minimal. I_{sp} hat keinen Beitrag zum Gesamtstrom, wenn die Magnetisierungsvektoren von Probe und Spitze in einem Winkel von 90° stehen. Ein Beispiel für die Tunnelwahrscheinlichkeit bei paralleler und antiparalleler Magnetisierungsrichtung von Spitze und Probe im Sinne des Stoner-Modells zeigt Abb. 2.5. Die Dicke der Pfeile spiegelt die Tunnelwahrscheinlichkeit wider. Für kleine Spannungen muss der Spin während des Tunnelns erhalten bleiben, da in diesem Bereich elastische Prozesse den Tunnelstrom dominieren [32]. Dadurch kann es beim Tunneln nicht zu einem Austausch zwischen Spin "up, \uparrow " und "down, \downarrow " kommen.

Zusätzlich zu der Winkelabhängigkeit kommt noch eine Verschiebung der Zustandsdichte für Spin "up, \uparrow " und "down, \downarrow " hinzu (s. Abb. 2.5). Sind die Zustandsdichten gleich, aber die Orientierung entgegengesetzt, so löschen sich die spinpolarisierten Zustände gegenseitig aus ($P_{s,p} = 0$), so dass man keinen magnetischen Kontrast ($I_{s,p} = 0$) erhält, obwohl Spitze und Probe magnetisch sind [42, 43]. Misst man zusätzlich zur Topographie auch die differentielle Leitfähigkeit dI/dU , so tunnelt man direkt an der Spannung U und erhält durch die Wahl der richtigen Spannung den magnetischen Kontrast. Der magnetische Kontrast ist maximal, wenn $P_{s,p} = \max$. Diese Methode eignet sich gut zur Abbildung von magnetischen Domänen, aber kann nur bedingt zur Abbildung des atomaren Magnetismus (sehr kleine Spannungen) benutzt werden.

Für die Beobachtung atomarer magnetischer Strukturen werden Bilder im Modus "konstanter Strom" aufgenommen und der theoretische Ansatz hierzu bildet eine Erweiterung des Tersoff und Hamann Modells. Für den Tunnelstrom bei der SP-RTM erhält man [43–46]

$$I(\vec{r}_0, U, \theta) = \frac{4\pi^3 C^2 \hbar^3 e}{\kappa^2 m^2} (\rho_s \tilde{\rho}_p(\vec{r}_0, U) + \vec{m}_s \tilde{\vec{m}}_p(\vec{r}_0, U)). \quad (2.19)$$

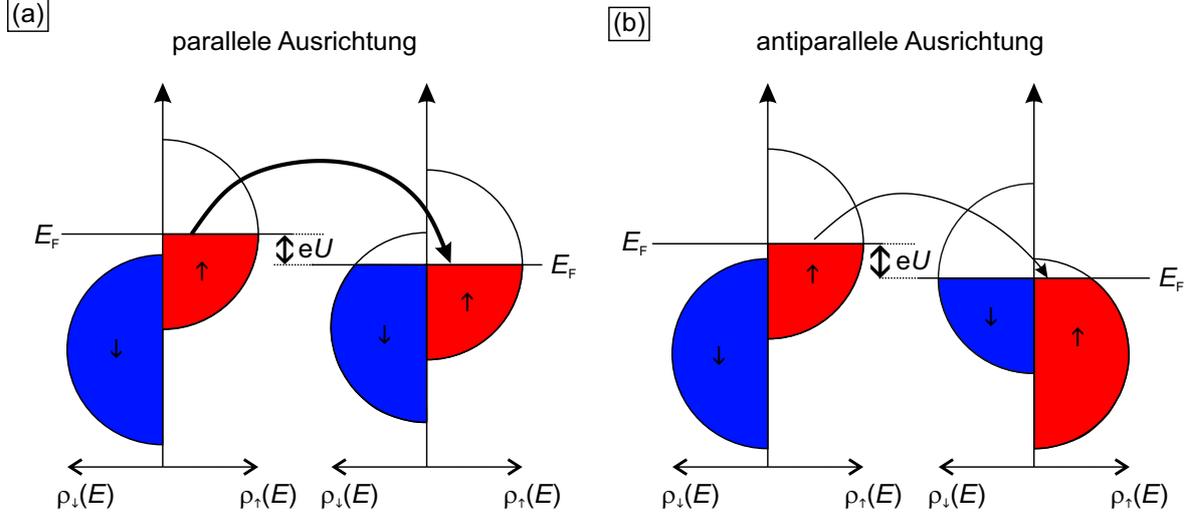


Abbildung 2.5: (a) Die Tunnelwahrscheinlichkeit ist hoch, wenn Elektronen aus der Spitze des Spin "up" Bandes in viele freie Zustände des Spin "up" Bandes der Probe tunneln können. (b) Sind nur wenige Zustände des Spin Spin "up" Bandes der Probe frei, so ist die Tunnelwahrscheinlichkeit für Elektronen aus dem Spin "up" Band der Spitze gering.

Dabei ist C eine Normierungskonstante, ρ_s die Zustandsdichte der Spitze, \vec{m}_s die Magnetisierung der Spitze, $\tilde{\rho}_p$ die integrierte lokale Zustandsdichte und \tilde{m}_p die integrierte lokale Magnetisierung der Probe. Es ist bekannt, dass Bilder im Modus "konstanter Strom" von der Änderung des Tunnelstroms ΔI dominiert werden und ΔI lässt sich bei der SP-RTM mit 2D Fourierkomponenten für eine Oberfläche mit 2D Translationssymmetrie folgendermaßen schreiben [43–46]:

$$\Delta I(\vec{r}_{\parallel}, z, U, \theta) = \sum_{n \neq 0} \Delta I_{\vec{G}_{\parallel}^n}(z, U, \theta) \exp(i\vec{G}_{\parallel}^n \vec{r}_{\parallel}). \quad (2.20)$$

\vec{G}_{\parallel}^n ist dabei der reziproke Gittervektor parallel zur Oberfläche und $\Delta I_{\vec{G}_{\parallel}^n}(z, U, \theta)$ der z -abhängige Entwicklungskoeffizient. Die gleiche Entwicklung kann man auf den spinpolarisierten Teil des Tunnelstroms anwenden und sieht, dass der Entwicklungskoeffizient exponentiell mit dem ansteigenden reziproken Gittervektor abklingt. Für den kleinsten, nicht verschwindenden, Gittervektor bildet folgende Formel eine gute Näherung [43–46]:

$$\Delta I_{\vec{G}_{\parallel}^{(1)}}(z, U, \theta) \propto \exp\left(-2z \sqrt{\frac{2m}{\hbar^2 |E_F + eU|} + (G_{\parallel}^{(1)}/2)^2}\right). \quad (2.21)$$

Im Realraum ist der Gittervektor der magnetischen Einheitszelle, verglichen mit dem Gittervektor der chemischen Einheitszelle, immer größer. Dies bedeutet, dass der Gittervektor der magnetischen Einheitszelle im reziproken Raum immer kleiner ist als der Gittervektor der chemischen Einheitszelle und somit das magnetische Signal immer dominiert.

Man erhält eine magnetische Spitze, indem ein magnetisches Material, wie zum Beispiel Eisen oder Chrom, auf die Spitze aufgedampft wird. Eisen ist ferromagnetisch und man benötigt nur wenige Monolagen (ML) (7 bis 9 ML) auf der Spitze, um die Spitze zu magnetisieren [32]. Die Magnetisierungsrichtung einer solchen Spitze liegt parallel zur Probenoberfläche. Allerdings ist das Streufeld einer mit Eisen bedampften Spitze sehr groß und kann die Magnetisierung der Probe stark beeinflussen. Verwendet man dagegen Chrom (antiferromagnetisch) als Spitzenmaterial, so ist das Streufeld verschwindend gering und die Magnetisierung der Probe wird nicht beeinflusst. Zusätzlich kann die Magnetisierungsrichtung der Spitze durch die Menge an aufgedampftem Material beeinflusst werden. Zwischen 30 und 45 ML erhält man häufig Spitzen, die senkrecht zur Probenoberfläche magnetisiert sind. Für Spitzen mit mehr als 45 ML ist die Magnetisierung zumeist parallel zur Probenoberfläche ausgerichtet [32].

2.6 Oberflächenzustand und Quasiteilcheninterferenz (QPI)

Neben der Untersuchung von magnetischen Eigenschaften einer Probe spielt die Analyse der elektronischen Eigenschaften eine große Rolle. Im Speziellen wird auf die Oberflächenzustände eingegangen, die nicht nur mittels RTS, sondern mittels der Methode der Quasiteilcheninterferenz untersucht werden. Aus der Quasiteilcheninterferenz, die sensitiv im k -Raum ist, erhält man beispielsweise die Dispersionsrelation eines Oberflächenzustandes. Die Quasiteilcheninterferenz wird im weiteren Verlauf dieses Abschnittes theoretisch vorgestellt, doch zunächst wird der Oberflächenzustand an sich erläutert.

Bei einem Oberflächenzustand, wie er beispielsweise bei Ag(111), Cu(111) und Au(111) auftritt, kommt es zwischen dem Vakuum und der Bandlücke (L-gap) im Kristall zu einer Ansammlung von Quasiteilchen (Elektronen, Löcher, ...) an der Oberfläche, wobei die Aufenthaltswahrscheinlichkeit der Quasiteilchen exponentiell ins Vakuum abfällt [47, 48]. Diese Ansammlung wird als zwei-dimensionales Elektronengas (2DEG) interpretiert. An der Oberfläche kommt es zur Elektronenstreuung und Interferenz an Defekten und Stufenkanten, die als Oszillationen der Ladungsdichte in den dI/dU -Karten sichtbar werden. Sie werden als Friedel-Oszillationen bezeichnet [49].

Für die theoretische Erklärung lautet die zugehörige zwei-dimensionale Wellenfunktion

$$\Psi \propto \sin(k_x x) \exp(ik_y y), \quad (2.22)$$

welche elastisch an einer Stufenkante bei $x = 0$, deren Kante entlang der y -Richtung verläuft, gestreut wird [48]. Eine Integration über alle Zustände unterhalb der Energie E im Abstand x

von der Stufenkante ergibt folgendes Integral:

$$N(E, x) \propto \int_{\text{disk}} dk_x dk_y |\Psi|^2 \propto \frac{\pi k_{\parallel}^2}{2} \left(1 - \frac{J_1(2k_{\parallel}x)}{k_{\parallel}x} \right). \quad (2.23)$$

Die lokale Zustandsdichte erhält man über eine Ableitung aller Zustände nach der Energie

$$\rho(E, x) = \frac{dN(E, x)}{dE} \propto 1 - J_0(2k_{\parallel}x). \quad (2.24)$$

J_0 und J_1 ist dabei die Besselfunktion der Form

$$J_m(2k_{\parallel}x) \simeq \sqrt{\frac{1}{\pi k_{\parallel}x}} \cos \left(2k_{\parallel}x - (2m + 1) \frac{\pi}{4} \right). \quad (2.25)$$

Aus der Form der Besselfunktion ist ersichtlich, dass es sich um eine periodische Modulation handelt. Zudem beinhaltet die Besselfunktion einen Dämpfungsterm der Form $\frac{1}{\sqrt{x}}$ im Bereich $k_x^2 + k_y^2$. Dabei wurde keine weitere Elektronenstreuung berücksichtigt [48]. Bei der Streuung an einem Punktdefekt folgt die Herleitung ähnlich, jedoch mit Zylinderkoordinaten.

Nachdem die Friedel-Oszillationen nun theoretisch erklärt wurden, wird nun auf die Eigenschaften eines Oberflächenzustands eingegangen und auf die Methode der Quasiteilcheninterferenz, die am Beispiel des Oberflächenzustands von Ag(111) erläutert wird. Ein Oberflächenzustand besitzt eine effektive Masse und einen Bandansatz, welche mit der Methode der Quasiteilcheninterferenz (Energie und k -Abhängigkeit) und der daraus extrahierten Dispersionsrelation berechnet werden können. Der Bandansatz des Oberflächenzustands kann beim RTM nicht sofort aus der Dispersionsrelation ermittelt werden, weil hierzu Datenpunkte bei $k = 0$ fehlen, die mit dem RTM so nicht messbar sind. Allerdings kann mit einem parabolischen Fit der Form $E = E_0 + \frac{\hbar^2 k_{\parallel}^2}{2m^*}$, mit $k_{\parallel}^2 = k_x^2 + k_y^2$, die Dispersionsrelation angenähert werden und aus dem Fit resultiert der Ansatzpunkt E_0 und die effektive Masse m_{eff} [50]. Der parabolische Fit gilt nur für zweidimensionale bzw. quasi-zweidimensionale Elektronengase und kann gut auf die Edelmetalle angewandt werden. Bei der Photoelektronenspektroskopie kann der Bandansatz direkt aus der erhaltenen Dispersionsrelation abgelesen werden, wie dies Reinert *et al.* für Ag(111), Cu(111) und Au(111) zeigen konnten [47].

Im Folgenden werden die Parameter des Oberflächenzustands von Ag(111) mittels Quasiteilcheninterferenz ermittelt. Dies dient zur Verifikation der Methodik und des RTMs. Die Topographie der sauberen Ag(111)-Oberfläche mit einer Defektdichte von 0,2% Prozent in einem Scanbereich von $(100 \times 100) \text{ nm}^2$ zeigt Abb. 2.6 (a). Bei der Methode der Quasiteilcheninterferenz müssen dI/dU -Karten der Ag(111)-Oberfläche in einem gewünschten Spannungsbereich aufgenommen werden, um die Dispersionsrelation bzw. die Energieabhängigkeit eines Bandes im k -Raum rekonstruieren zu können. Ein Beispiel für eine dI/dU -Karte bei einer Spannung von $U = 0,12 \text{ V}$ bzw. bei einer Energie von $eU = 0,12 \text{ eV}$ zeigt Abb. 2.6 (b) mit der charakteristischen Streuung

um Defekte, welche als Friedel-Oszillationen bezeichnet werden. Führt man nun an diesem Bild eine schnelle Fouriertransformation (*engl.: fast Fourier Transformation*, FFT) durch, so würde man einen Ring für den Oberflächenzustand von Ag(111) erwarten, der auf die isotrope Streuung zurückzuführen ist. Tatsächlich erkennt man zwei Ringe in der FFT im Inset von Abb. 2.6 (b), wobei der äußere Ring dem Band des Oberflächenzustandes angehört und der innere Ring akustischen Oberflächenplasmonen zugeordnet werden kann, wie von P. Sessi *et al.* gezeigt wurde [51]. Der Radius der Ringe entspricht dem Streuvektor q . Wählt man für die Transformation des Realraumbildes (dI/dU -Karte) in den reziproken Raum (Fouriertransformierte) $\lambda = \pi/\mathbf{q}$, so entsprechen die Radii der Ringe k_{\parallel} . Mit steigender (fallender) Energie werden die Kreisdurchmesser größer (kleiner), was für ein nach oben geöffnetes Band spricht. Aus der FFT wird ein radialer Durchschnitt genommen, der in Abb. 2.6 (c) (rote Kurve) gezeigt ist. Die schwarze Kurve ist ein Fit an das Maximum des inneren Ringes und die blaue Kurve ein Fit an das Maximum des äußeren Ringes. Beide Fits spiegeln den radialen Durchschnitt sehr gut wieder. Zu jedem Spannungswert gibt es mindestens einen k -Wert mit dem zugehörigen Fehler. Dabei wurde der Fehler über die FWHM der Fits ermittelt. Trägt man nun alle k -Werte über die Spannung auf, ergibt sich die Dispersionsrelation (blaue Symbole) des Oberflächenzustands von Ag(111) (Abb. 2.6 (d)). Mit einem parabolischen Fit an die blauen Datenpunkte kann der Bandansatz $E_0 = -(63 \pm 4) \text{ meV}$ und die effektive Masse $m_{\text{eff}} = (0,38 \pm 0,01) m_e$ des Oberflächenzustands bestimmt werden. Diese Ergebnisse passen sehr gut zu den Werten von Reinert *et al.* und Echenique *et al.* und zeigen, dass die Methode und das RTM zur weiteren Untersuchung unbekannter Oberflächen geeignet sind [47, 48].

Der Oberflächenzustand von Ag(111) kann auch mit RTS gemessen werden und besitzt, wie auch Cu(111) und Au(111), eine charakteristische Stufenfunktion in der Spektroskopiekurve, welche in Abb. 2.7 für Ag(111) zu sehen ist [48]. Abb. 2.7 (a) zeigt den Oberflächenzustand, der bei verschiedenen Modulationsspannungen ($U_{\text{mod}} = 20/10/5/2/1 \text{ mV}$) gemessen wurde. Die Stufenfunktion lässt sich durch die neuen Zustände am Bandansatz des Oberflächenzustandes in der Bandlücke des Ag(111)-Kristalls erklären [49] und der Ansatzpunkt kann hier auch abgelesen werden, allerdings ist der Fehler von der Breite der Steigung Δ bestimmt. Die Breite der Steigung wiederum hängt sowohl von der Defektdichte als auch von der Energieauflösung der Apparatur ab [52]. Dabei wird die theoretisch mögliche Energieauflösung $\Delta E(T, U_{\text{mod}})$ der Apparatur von der Modulationsspannung und der thermischen Auflösung bestimmt. Die Modulationsspannung U_{mod} geht in die Verbreiterungsfunktion des Instruments ein und wird folgendermaßen mit der Modulationsspannung von Peak zu Peak $U_{\text{mod,A}}$ beschrieben [53]:

$$\chi_{\text{mod,A}}(eU) = 2 \frac{\sqrt{(eU_{\text{mod,A}})^2 - (eU)^2}}{\pi(eU_{\text{mod,A}})^2}. \quad (2.26)$$

Die Halbwertsbreite Δ_{mod} der eben genannten Funktion liegt bei $\Delta_{\text{mod}} = \sqrt{3}eU_{\text{mod,A}} = \sqrt{3}\sqrt{2}eU_{\text{mod}} \approx 2,45eU_{\text{mod}}$, wobei U_{mod} der Effektivwert der Modulationsspannung ist.

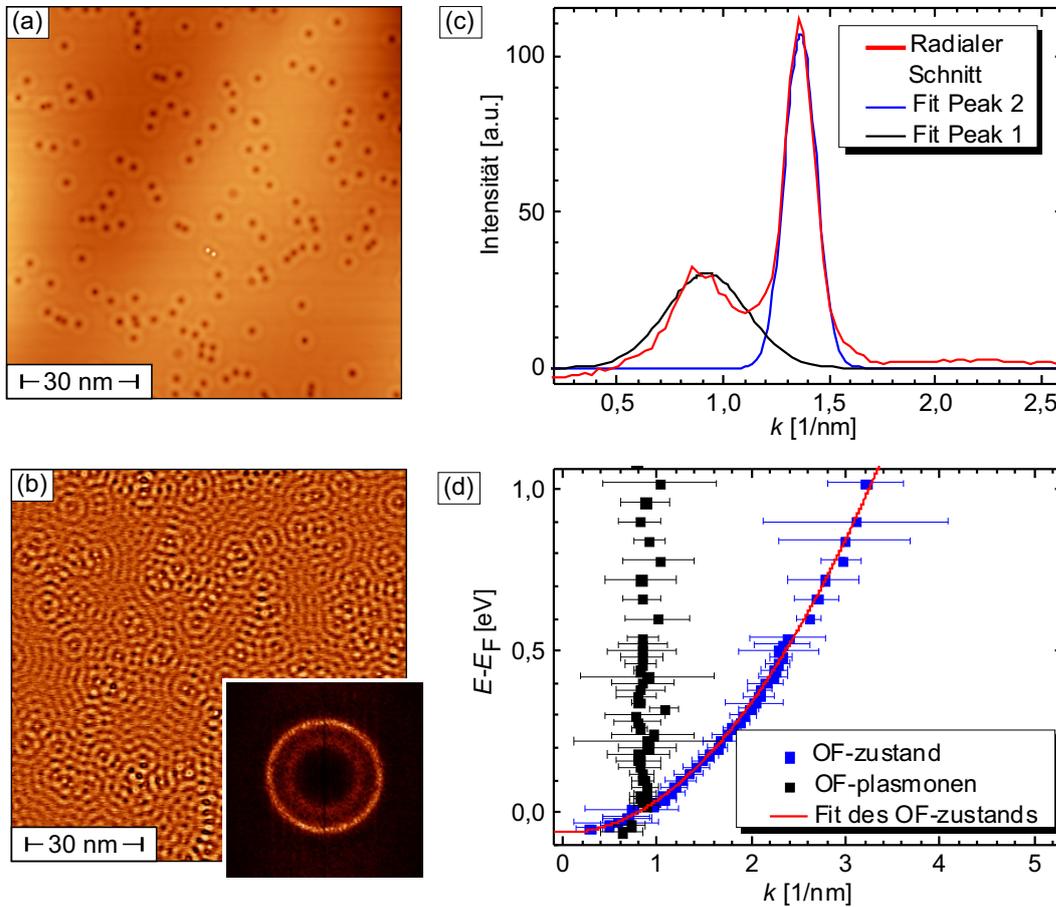


Abbildung 2.6: (a) Topographie der Ag(111)-Oberfläche und die gleichzeitig aufgenommene dI/dU -Karte (b). Die Friedel-Oszillationen sind deutlich an den Defekten zu erkennen. Das Inset zeigt die Fouriertransformierte mit dem für diese Spannung charakteristischen Radius ($k = 1,36 \text{ nm}^{-1}$) bei $U = +0,12 \text{ V}$. Scanparameter: $U = +0,12 \text{ V}$, $I = 1,2 \text{ nA}$, $U_{\text{mod}} = 10 \text{ mV}$. (c) Radialer Durchschnitt der Fouriertransformierten aus (b). Die zwei Peaks werden getrennt gefittet, um die unterschiedlichen k -Werte und die entsprechenden Fehler zu erhalten. (d) Aus den erhaltenen Messdaten kann man die k -Werte über die Energie (Spannung) auftragen und erhält die Dispersionsrelation des Ag(111)-Oberflächenzustandes (OF-zustand, blaue Datenpunkte). Die schwarzen Datenpunkte zeigen ein Band der akustischen Oberflächenplasmonen (OF-plasmonen).

Zusätzlich zum Beitrag der Modulationsspannung erweitert die Temperatur von Probe und Spitze die Energieauflösung des Systems. Aufgrund der endlichen Temperatur von Probe und Spitze kommt es zu einer Verbreiterung der Fermi-Dirac-Verteilung und dadurch verwischt die Kante an der Fermienergie, was wiederum zu einer Erweiterung des Messsignals führt [54]. Faltet man die Zustände mit einer thermischen Verbreiterungsfunktion, so erhält man eine Lorentzkurve, deren Halbwertsbreite $\Delta_{\text{therm}} = 3,53k_{\text{B}}T$ entspricht. Beide Beiträge

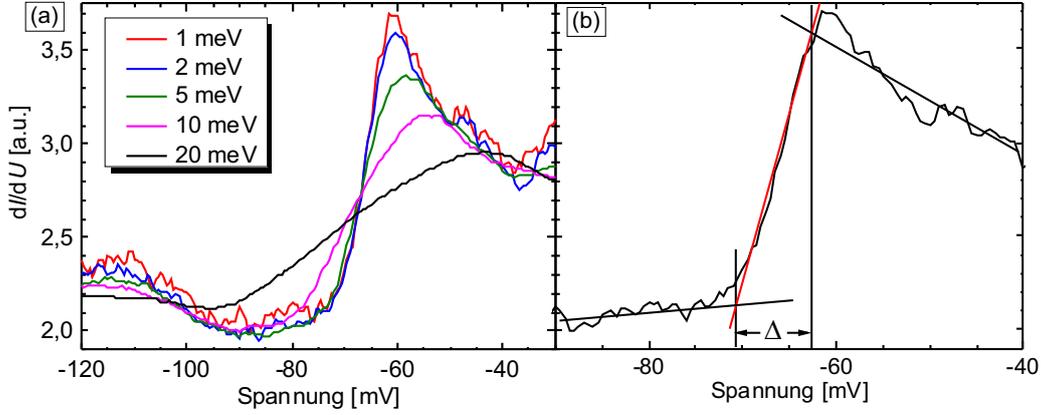


Abbildung 2.7: (a) Rastertunnelspektroskopiekurven der Ag(111)-Oberfläche bei verschiedenen Modulationsspannungen. Stabilisierungsparameter: $U = -0,12\text{ V}$, $I = 4\text{ nA}$, $U_{mod} = 20/10/5/2/1\text{ mV}$. (b) Das mit einer Modulationsspannung von 1 mV gemessene Spektrum des Ag(111)-Oberflächenzustands. Die Breite des Anstiegs $\Delta=6,6\text{ mV}$ ist vergleichbar mit den Literaturwerten [52]. Stabilisierungsparameter: $U = -0,12\text{ V}$, $I = 4\text{ nA}$, $U_{mod} = 1\text{ mV}$.

zusammengenommen ergeben

$$\Delta E(T, U_{mod}) = \sqrt{(\sqrt{2}\Delta_{\text{therm}})^2 + \Delta_{\text{mod}}^2} = \sqrt{2(3,2k_{\text{B}}T)^2 + (2,45eU_{\text{mod}})^2}, \quad (2.27)$$

wobei der Faktor 2 dem thermischen Beitrag von Spitze und Probe anzurechnen ist. Bei einer Messtemperatur von $T = 5,5\text{ K}$ und einer Modulationsspannung von 1 meV ergibt sich demnach eine theoretische Energieauflösung von 3,3 meV. Vergleicht man nun die Breite des Anstiegs in der RTS bei einer Modulationsspannung von 1 meV (s. Abb. 2.7 (b)) mit Spektroskopiekurven aus der Literatur [48, 52], so erhalte ich mit einer Breite von $\Delta=6,6\text{ mV}$ einen ähnlichen Wert. Die Energieauflösung des für die folgenden Experimente benutzten Systems ist mit der Energieauflösung der Systeme aus der Literatur vergleichbar.

3 Experimenteller Aufbau

Im Folgenden wird der experimentelle Messaufbau beschrieben, mit welchem die in dieser Arbeit gezeigten Messungen durchgeführt wurden. Der Messaufbau lässt sich grob in eine Analysekommer und eine Präparationskommer aufteilen. Die Analysekommer, die das RTM beinhaltet, welches zur guten thermischen Kopplung fest an die Kälteplatte des Kryostaten (grün eingefärbt in Abb. 3.1) geschraubt ist, befindet sich im Vordergrund bzw. links in Abb. 3.1. Durch das Dämpfungssystem (dunkelgrün), welches den Heliumtank mit dem angeschraubten RTM vom Rest der Kommer entkoppelt, werden Gebäudeschwingungen und andere störende Einflüsse deutlich verringert. Zusätzlich zur Dämpfung wird der flüssige Stickstoff über eine Drehschieberpumpe eingefroren, da der siedende Stickstoff ein störendes Rauschen während der Messung verursachte.

Im Hintergrund bzw. rechts in Abb. 3.1 steht die Präparationskommer, die mit der Analysekommer über ein Drehschiebeventil verbunden ist. Proben und Spitzen werden über das schnelle Ladeventil (in der Abb. 3.1 orange eingefärbt) nach einer Evakuierzeit von mindestens zwei Stunden in die Präparationskommer eingeschleust. Die Wartezeit von zwei Stunden dient dazu, den sehr guten Druck ($p = 1 \cdot 10^{-10}$ mbar) in der Präparationskommer und Analysekommer zu erhalten. Zur Untersuchung der Gase, die in der Kommer vorherrschen, befindet sich ein Restgasanalysator (in Abb. 3.1 braun eingefärbt) in der Präparationskommer. Zur weiteren Präparation werden Spitze und Probe mit der Transferstange (in Abb. 3.1 blau) auf den Manipulator geschoben. Auf dem Manipulator (in Abb. 3.1 lila) besteht die Möglichkeit Probe und Spitze über eine Widerstandsheizung auf bis zu 550°C zu heizen. Zudem kann die Probe durch hochenergetische Argon⁺-Ionen bestrahlt werden (in Abb. 3.1 gelb) und somit Probenoberfläche abgetragen werden. Dieser Vorgang nennt sich "sputtern". Des Weiteren können Probe und Spitze auf einer eigens hierfür gebauten Elektronenstoßheizung auf über 2000°C erhitzt werden (in Abb. 3.1 in dunkelrosa). Dabei kann in einer kontrollierten Menge Sauerstoff über ein Röhrchen an die Probenoberfläche bzw. in die Präparationskommer eingelassen werden (in Abb. 3.1 dunkelgrün). An die Präparationskommer sind noch bis zu vier Verdampfer angeschlossen (in Abb. 3.1 dunkelblau), die zum Wachstum von Filmen auf Probe oder Spitze dienen.

Eine fertig präparierte Probe wird wieder über die Transferstange in die Analysekommer eingebracht und mittels einer Transferhilfe für die mechanische Hand zugänglich gemacht (in Abb. 3.1 blau). Die mechanische Hand positioniert Spitzentransporter und Probenhalter im RTM. Zur

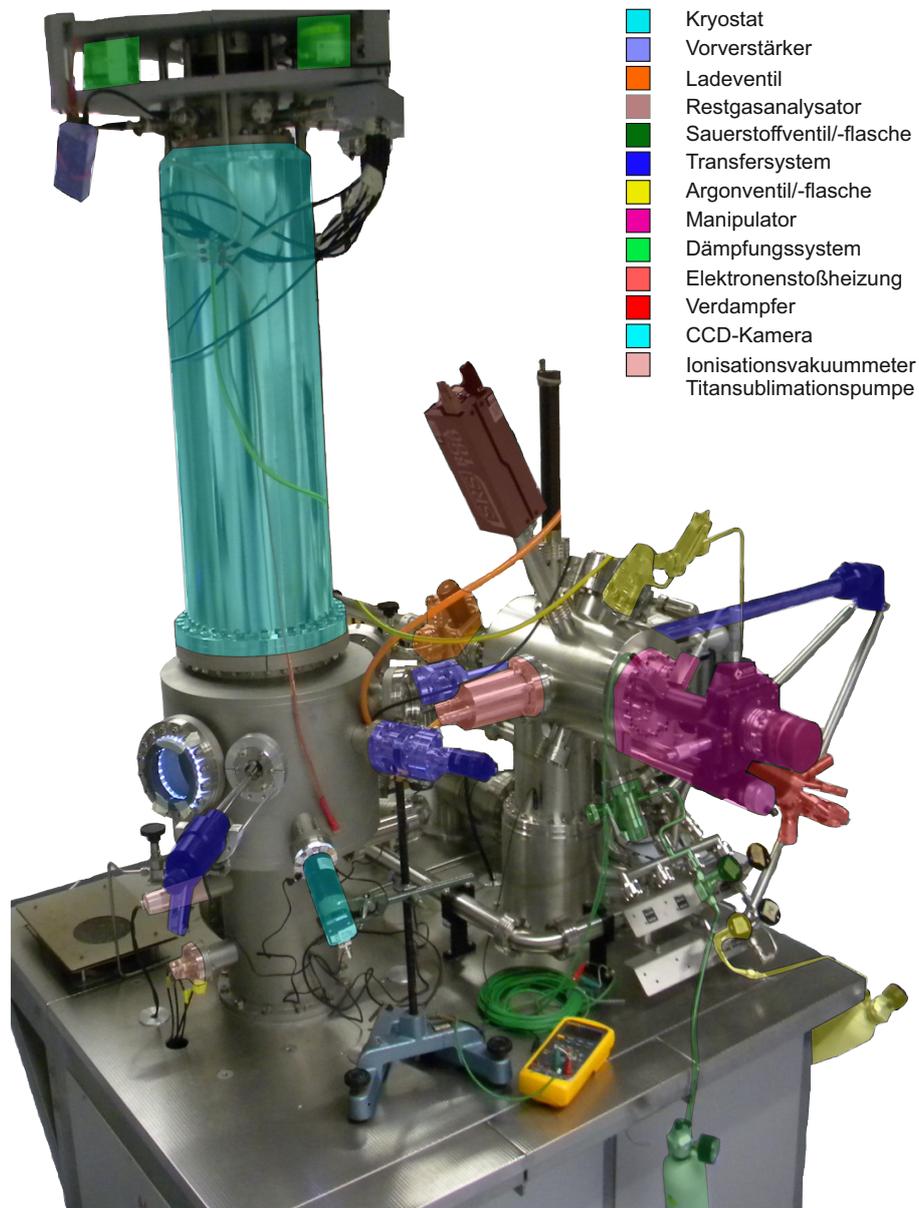


Abbildung 3.1: Der experimentelle Aufbau lässt sich grob in eine Präparationskammer (rechts im Bild) und in eine Analysekammer (links im Bild) mit Kryostaten aufteilen. Verschiedene Pumpen, die im Bild nicht vollständig zu sehen sind, erzeugen und halten das Vakuum. Die komplette Apparatur ist auf einem Messtisch befestigt.

grogen Annäherung der Spitze an die Probe dient eine CCD-Kamera (in Abb. 3.1 türkis). Der Vorverstärker am Tunnelstrom ist in Abb. 3.1 violett eingefärbt. In beiden Kammer sind zur Erzeugung des Vakuums Membranpumpen und Turbomolekularpumpen sowie zum Erhalt des Vakuums Ionengetterpumpen und Titansublimationspumpen, eingebaut. Zur Druckmessung werden Ionisationsvakuumeter in beiden Kammern verwendet (in Abb. 3.1 beige). Die Präparation von Probe und Spitze wird an geeigneten Stellen der jeweiligen experimentellen

Kapitel erläutert.

4 Oberflächenzustände von Ni(111)

Nickel ist ein Übergangsmetall mit einer partiell gefüllten d -Schale. Es ist ferromagnetisch unterhalb der Curietemperatur von 354°C . Das Metall liegt in fester Form in der kubisch-flächenzentrierten (engl.: *face centered cubic*, fcc) Kristallstruktur vor und besitzt eine Gitterkonstante von $a = 352,4 \text{ pm}$. Die Ni(111)-Oberfläche wurde schon häufig in der Literatur diskutiert, mit teils widersprüchlichen Ergebnissen. Daher habe ich weitere Messungen vorgenommen, die im vorliegenden Kapitel vorgestellt werden. Ein Überblick über die Literaturwerte, die in Tabelle 4.1 auszugsweise zusammengefasst werden, wird zur besseren Einordnung vorangestellt. Diese werden auf den folgenden Seiten mit meinen gemessenen Daten verglichen und diskutiert. Ein Teil der hier vorgestellten Messungen wurde auch in Phys. Rev. B veröffentlicht [55].

4.1 Überblick über die Literatur

In diesem Kapitel werden sowohl experimentelle Ergebnisse als auch theoretische Berechnungen der Literatur vorgestellt, die relevant für die Diskussion meiner gemessenen Daten sind. In einer RTM-Studie von Dzemiantsova *et al.* wurde die Ni(111)-Oberfläche sowohl mit einer Wolframspitze als auch mit einer magnetischen Spitze untersucht und es konnte eine magnetische Domänenstruktur gezeigt werden [16]. Zudem zeigt die RTS zwei breite Maxima bei 500 meV unterhalb und 400 meV oberhalb der Fermienergie. Das Maximum unterhalb der Fermienergie wird der Spinresonanz der Minoritätsladungsträger zugeordnet und das Maximum oberhalb der Fermienergie als Shockley-artiger Oberflächenzustand der Minoritäts- und Majoritätsladungsträger bezeichnet.

Eine weitere Studie über die Ni(111)-Oberfläche mit Hilfe eines RTMs wurde von Nishimura *et al.* durchgeführt [11]. Zusätzlich zur Spektroskopie werden die Fouriertransformierten der dI/dU -Karten gezeigt, mit deren Hilfe die Dispersion der an der Streuung beteiligten Bänder analysiert wurde. Die mit dem RTM erhaltenen Daten werden gleichzeitig mit ARPES-Messungen verglichen, die laut Nishimura *et al.* konsistent sind. Allerdings kann ich für mich keine Konsistenz der Daten erkennen, da die mit dem RTM gemessenen Bänder nicht dispergieren. Des Weiteren wird anhand von einem Spektrum die Austauschspaltung zu 190 meV abgelesen und der Bandansatz des aufgespaltenen Shockley-artigen Oberflächenzustands zu 132 meV unterhalb und 61 meV oberhalb des Fermineiveaus bestimmt. Die Austauschspaltung

Autoren	Experimentelle Methode	Bandansatz der Oberflächenresonanz	Bandansatz des Oberflächenzustands	Austausch- aufspaltung
Dzemiantsova <i>et al.</i>	STM	-500 meV	+400 meV	—
K.-F. Braun <i>et al.</i>	STM	(-225 ± 11) meV (Maj.), (-165 ± 4) meV (Min.)	—	(60 ± 15) meV
Nishimura <i>et al.</i>	STM, ARPES	—	-132 meV und +61 meV	190 meV
Donath <i>et al.</i>	IPES	—	—	(106 ± 20) meV
Kutzner <i>et al.</i>	1PPES, 2PPES	-243 meV	-94 meV	120 meV
Ohwaki <i>et al.</i>	DFT	—	unter 0,005 eV	—
Lobo-Checa <i>et al.</i>	DFT, ARPES	—	—	180 meV
Braun <i>et al.</i>	DFT	—	—	350 meV

Tabelle 4.1: Vergleich ausgewählter elektronischer Eigenschaften der Ni(111)-Oberfläche in der Literatur [10, 11, 14–17, 19, 56].

anhand der RTS zu bestimmen ist sehr ungenau, da die Ansätze der Oberflächenzustände durch die Breite der Peaks nicht genau bestimmt werden können. Im Gegensatz zu Ag(111), Cu(111) und Au(111) liegen die Oberflächenzustände von Ni(111) nicht komplett in einer Bandlücke, weshalb die Stufenfunktion der differentiellen Leitfähigkeit für den Bandansatz nicht ausgeprägt ist [16, 48].

K.-F. Braun und K.-H. Rieder untersuchten die Ni(111)-Oberfläche ebenfalls mittels RTM und Quasiteilcheninterferenz in einem Energiebereich von -200 meV bis +400 meV, wobei Goldatome *in situ* auf die Oberfläche aufgedampft wurden, um Streuzentren zu erzeugen [19]. Dabei wurde je ein Datensatz mit und ohne Stufenkante aufgenommen. Die präparierte Oberfläche zeigt helle und dunkle Bereiche in den dI/dU -Karten, die einer hohen bzw. niedrigeren Zustandsdichte entsprechen. Oberhalb einer Stufenkante, d.h. in deren unmittelbarer Nähe, war die Zustandsdichte immer höher als unterhalb einer Stufenkante. Während die hellen Bereiche in der Fouriertransformation einen Doppelring zeigen, weist der dunkle Bereich dagegen nur einen Ring auf. Alle Resultate wurden in ein Energie- k -Diagramm eingetragen, wodurch sich zwei nach oben geöffnete Parabeln für den Bereich unterhalb der Fermienergie ergeben. Die beiden Bänder werden dem aufgespaltenem Shockley-artigen Oberflächenzustand zugeordnet und besitzen eine Aufspaltung von 60 meV. Allerdings kann es nach meinem Verständnis auch möglich sein, dass durch das Aufbringen der Goldatome auf die Ni(111)-Oberfläche die Oberflächenzustände von Ni(111) gestört werden und in der Quasiteilcheninterferenz teilweise nicht mehr sichtbar oder verschoben sind. Dies zeigt sich an dem Vorhandensein des Doppelringes auf der intrinsischen Ni(111)-Oberfläche unabhängig von Stufenkanten, welcher im weiteren Verlauf dieser Arbeit noch diskutiert wird.

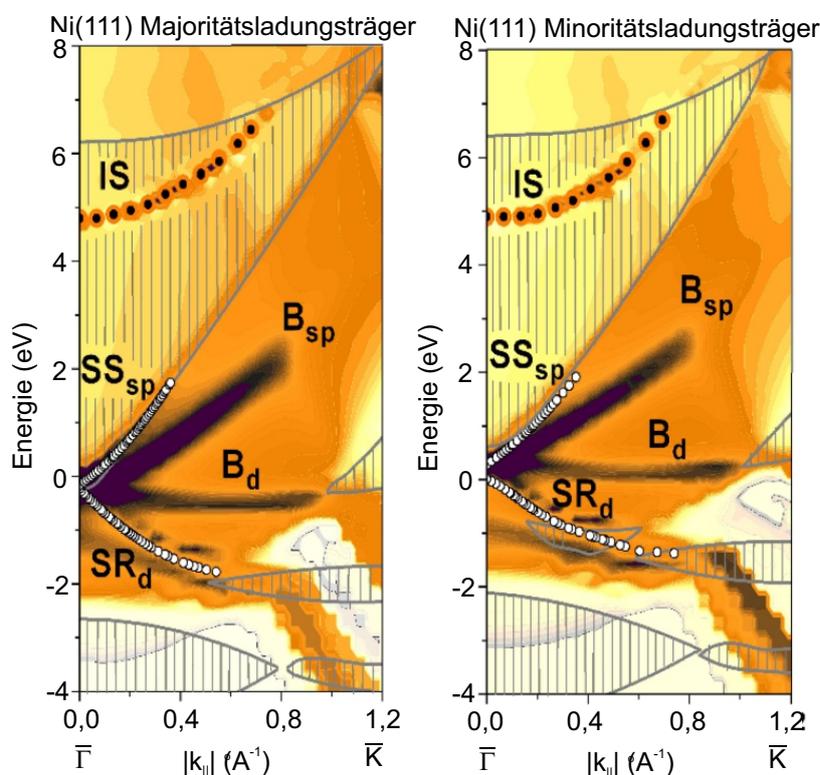


Abbildung 4.1: DFT Rechnungen aus Braun *et al.* [56]. (a) Bänderverlauf der Majoritätsladungsträger mit dem Oberflächenzustand SS_{sp} , der für kleine k -Werte innerhalb der Bandlücke liegt. Die Oberflächenresonanz SR_d dispergiert nach unten und liegt am $\bar{\Gamma}$ -Punkt nahe der Bandlücke. (b) Der Oberflächenzustand SS_{sp} der Minoritätsladungsträger dispergiert komplett in den Volumenzuständen des Ni und nähert sich dabei stellenweise der Bandlücke an. Die Oberflächenresonanz SR_d dispergiert nach unten und verläuft komplett in den Volumenzuständen.

Ni(111) wurde 1993 mit inverser Photoelektronenspektroskopie untersucht und die Austauschspaltung der Oberflächenresonanz zu 106 meV bestimmt [17]. Mit Ein-Photon- und Zwei-Photon-Photoemissionsspektroskopie haben Kutzner *et al.* die Austauschspaltung zu 120 meV gemessen [15]. Der Bandansatz wurde für das nicht besetzte Band (S_1) zu -94 meV und für das besetzte Band (S) zu -243 meV bestimmt.

Die Ni(111)-Oberfläche wurde von J. Braun und M. Donath mit Dichtefunktionaltheorie (DFT) berechnet, deren Konturplot für die spektrale (inverse) Photoemissionsdichte in Abb. 4.1 gezeigt wird [56]. Sie erhalten einen sp -artigen Oberflächenzustand (SS_{sp}), der bei Betrachtung der Majoritätsladungsträger für kleine k -Werte innerhalb der Bandlücke des Ni(111) liegt und für steigende k -Werte an die Volumenzustände dispergiert. Der Oberflächenzustand der Minoritätsladungsträger SS_{sp} liegt für kleine k -Werte in den Volumenzuständen des Ni und dispergiert im weiteren Verlauf an die Bandlücke. Aus den Rechnungen ergibt sich eine Austauschspaltung von 350 meV, die bei DFT-Rechnungen für Ni allerdings häufig um

einen Faktor zwei überschätzt wird, wie die Autoren anmerken. Des Weiteren resultiert eine d -artige Oberflächenresonanz SR_d mit einer negativen Dispersion, die ebenfalls größtenteils in den Volumenzuständen liegt und nur für kleine k -Werte der Majoritätsladungsträger an die Bandlücke dispergiert.

Eine weitere theoretische Berechnung der Ni(111)-Oberfläche mittels DFT wurde von Ohwaki *et al.* vorgestellt [10]. Sie berechnen, dass das sogenannte S_1 -Band der Majoritätsladungsträger innerhalb der Bandlücke von Ni liegt und demnach einen Oberflächenzustand ausbildet. Im Gegensatz dazu zeigen sie, dass das Band S_1 der Minoritätsladungsträger für kleine k in den Volumenzuständen des Ni und von einem Oberflächenzustand in eine Oberflächenresonanz übergeht. Das Majoritätsband von S_2 dispergiert nach unten und trägt nur minimal zu den Zuständen bei $\bar{\Gamma}$ bei. Das Minoritätsband von S_2 dagegen liegt nach ihren Rechnungen in den Volumenzuständen, weshalb dieses Band ebenfalls eine Oberflächenresonanz ausbildet.

Lobo-Checa *et al.* haben ihre Berechnungen aus der Dichtefunktionaltheorie mit ARPES-Daten verglichen und erhalten drei Oberflächenzustände für Majoritäts- und Minoritätsladungsträger [14]. Der Oberflächenzustand S_1 besitzt eine berechnete Austauschspaltung von 180 meV und ist ein nach oben gebogenes Band. S_2 dispergiert nach unten und ist komplett besetzt. Am $\bar{\Gamma}$ Punkt tragen die Majoritätsladungsträger des S_1 -Oberflächenzustandes und die Minoritätsladungsträger des S_2 -Oberflächenzustandes am meisten zu den Zuständen bei. S_1 der Minoritätsladungsträger und S_2 der Majoritätsladungsträger werden dagegen als Oberflächenresonanzen bezeichnet, da diese Bänder stark mit den Volumenzuständen von Ni hybridisieren. Zum Schluss sei auf die Tabelle 4.1 hingewiesen, die alle relevanten Ergebnisse der bisherigen Literatur kurz und übersichtlich zusammenfasst.

4.2 Quasiteilcheninterferenz an der Ni(111)-Oberfläche

Angeregt durch die teils widersprüchlichen und unvollständigen Veröffentlichungen habe ich mittels Quasiteilcheninterferenz die Zustände der Ni(111)-Oberfläche zwischen -500 meV und +500 meV untersucht. In Abb. 4.2 (a, b) ist die saubere Ni(111)-Oberfläche dargestellt, die man nach einem 10-minütigen Sputtern (500 eV, 2 μ A) und einem kurzen Erhitzen bei 1000 K erhält. Anhand der atomaren Auflösung in Abb. 4.2 (c) kann der Atomabstand über das Linienprofil zu $a_{\text{Exp}} = (251 \pm 13)$ pm bestimmt werden, welcher in guter Übereinstimmung mit dem theoretisch berechneten Wert von 249,2 pm ist. Abbildung 4.2 (d) zeigt die Spektroskopiekurve mit zwei breiten Peaks bei -400 meV und +500 meV, wobei die hier gezeigten Daten denen von Dzemiantsova *et al.* ähneln [16].

Zusätzlich zur RTS habe ich die Dispersionsrelation mittels Quasiteilcheninterferenz an der Ni(111)-Oberfläche ermittelt. Die Quasiteilcheninterferenz wurde am Beispiel von Ag(111) schon erläutert (Kap. 2.6), weshalb ich hier nicht weiter auf die Auswertung eingehen werde. Abbildung 4.3 zeigt dI/dU -Karten bei unterschiedlichen Spannungen und die dazugehörigen

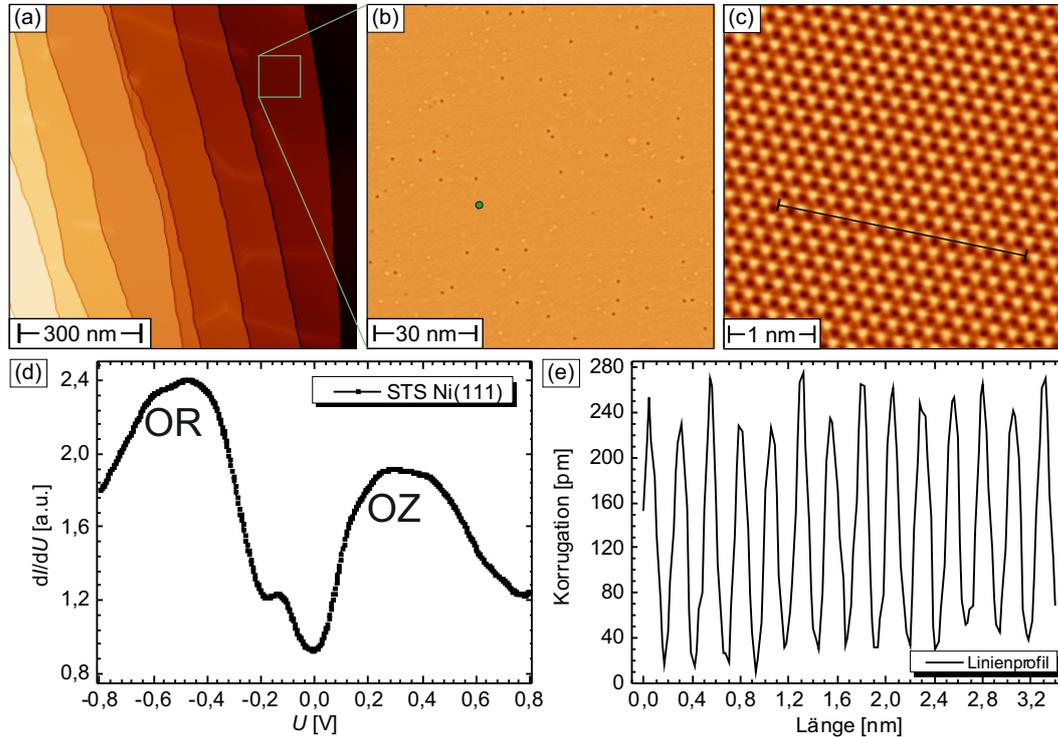


Abbildung 4.2: (a) Der großflächige Scan der Topographie von Ni(111) zeigt atomare Stufenkanten, die breite Terrassen (bis zu 200 nm) trennen. Scanparameter: $U = +1$ V, $I = 30$ pA. Ebenso sind helle Linien zu erkennen, die vermutlich von Versetzungen unterhalb der Oberfläche stammen. (b) Die Topographie zeigt eine atomar flache Ni(111)-Oberfläche mit wenigen Defekten. Scanparameter: $U = +1$ V, $I = 300$ pA. Der grüne Punkt markiert die atomare Auflösung in (c) und die Punktspektroskopie in (d). (c) Atomare Auflösung der Ni(111)-Oberfläche. Scanparameter: $U = +6$ mV, $I = 1$ nA. Entlang der schwarzen Linie wurde das Linienprofil in (e) aufgenommen. (d) Spektroskopiekurve von Ni(111) mit den breiten Peaks der Oberflächenresonanz (OR) und des Oberflächenzustandes (OZ). Stabilisierungsparameter: $U_{\text{mod}} = 10$ mV, $I = 2,5$ nA. (e) Linienprofil von (c) zur Bestimmung des atomaren Abstandes.

FFT. Bei +350 mV und +250 mV ist ein Doppelring in der FFT zu sehen, deren Radius mit niedrigerer Spannung kleiner wird. Der innere Ring verschwindet oberhalb von +150 mV. Mit abnehmender Spannung reduziert sich der Radius des verbleibenden Rings weiter, bis bei -200 mV kein Ring mehr vorhanden ist. Allerdings taucht bei -250 mV wieder ein Ring in der FFT auf. Die Energie (eingestellte Spannung) wird nun über die erhaltenen Wellenvektoren aufgetragen und man erhält die Dispersionsrelation für die Ni(111)-Oberfläche im Bereich von -500 mV bis +500 mV (s. Abb. 4.4(a)). Die nach oben gebeugten, lochartigen Bänder entsprechen dem spin-aufgespaltenen Oberflächenzustand (*sp*-OZ). Das nach unten gebeugte, lochartige *d*-Band spiegelt die Oberflächenresonanz (*d*-OR) wider, die aus Minoritätsladungsträgern besteht, wie sich aus einem Vergleich meiner experimentellen Daten mit den theoretischen Berechnungen von J. Braun und M. Donath herausstellt [56]. Aus dem energetischen Abstand (Bandverlauf) des Minoritätsoberflächenzustandes (rote Datenpunkte) zum Majoritätsoberflächenzustandes

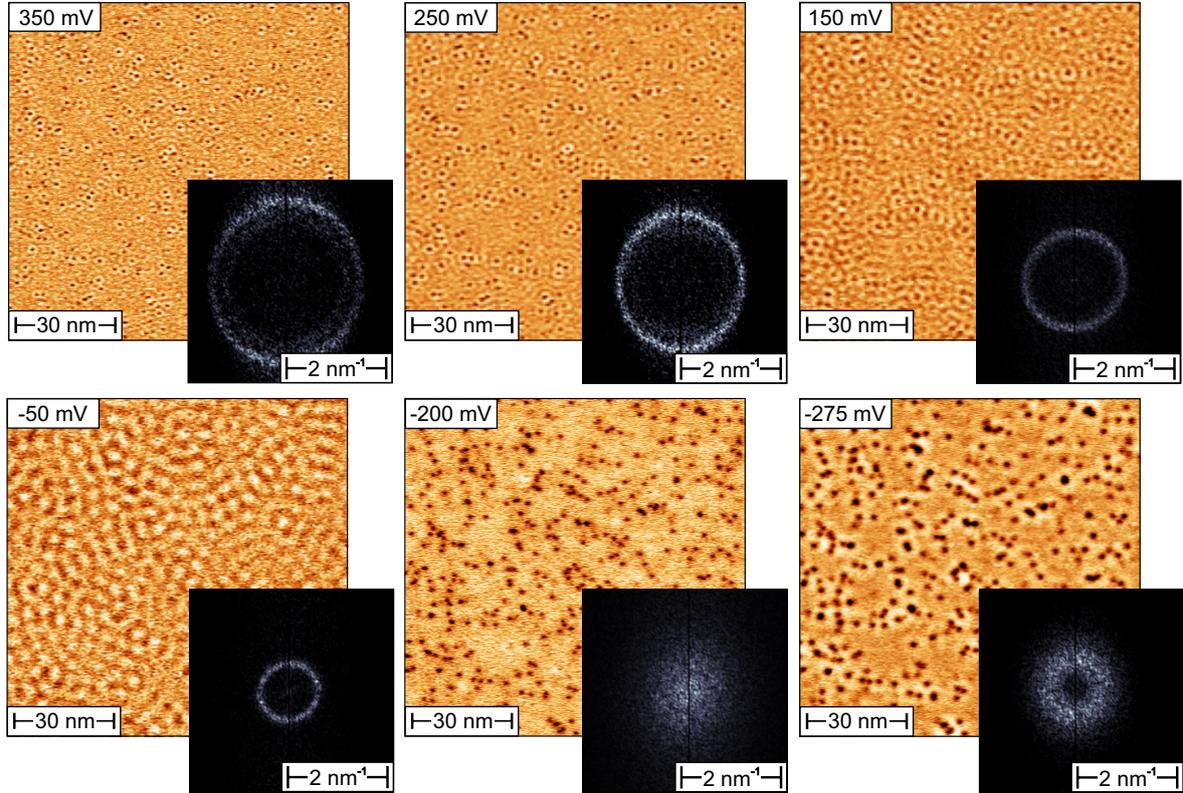


Abbildung 4.3: dI/dU -Karten und deren FFT im Spannungsbereich von +350 mV bis -275 mV. In der dI/dU -Karte von +350 mV ist Streuung und in der FFT deutlich ein Doppelring zu sehen. Reduziert man die Spannung, verkürzt man auch den Wellenvektor, wie dies am kleineren Ringdurchmesser zu sehen ist. Bei +150 mV erkennt man nur noch einen Ring (den äußeren) und der Wellenvektor ist weiter reduziert. Bei -200 mV ist kein Ring mehr zu erkennen, wobei bei -250 mV wieder ein Ring sichtbar wird. Der Scanbereich beträgt für alle dI/dU -Karten $(100 \times 100) \text{ nm}^2$ und der Tunnelwiderstand bei allen Bildern $0,1 \text{ G}\Omega$.

(blaue Datenpunkte) kann die Austauschspaltung zu $\Delta E_{\text{ex}} = (100 \pm 8) \text{ meV}$ bestimmt werden. Dieser Wert stimmt sehr gut mit dem Ergebnis aus der Inversen Photoelektronenspektroskopie (IPES) von Donath *et al.* überein [17]. Vergleicht man meine gemessenen Daten mit denen von Nishimura *et al.* [11], so zeigen sich deutliche Unterschiede in der Größe der Aufspaltung. Dies kann aber darauf zurückgeführt werden, dass der Wert aus Ref. [11] anhand von RTS-Daten abgelesen wurde und dementsprechend mit einer großen Unsicherheit behaftet ist.

Der OZ der Majoritätsladungsträger kann vom Ansatzpunkt bis zu +100 meV, d.h. für kleine k -Werte (nahe am Γ -Punkt), mit einer parabolischen Dispersion gefittet werden. Hieraus erhalte ich einen Ansatzpunkt des OZ von $(-160 \pm 5) \text{ meV}$ und die effektive Masse zu $m^* = (+0,14 \pm 0,04) m_e$. Die ermittelten Daten für den Oberflächenzustand stimmen sehr gut mit den Daten aus der Literatur überein [10, 15, 56]. Bei +100 meV kann man einen Knick in der Dispersion des Majoritätsbandes des OZ erkennen. Dieser Knick kann durch die Hybridisierung des Majoritäts-OZ mit Volumenbändern des Ni erklärt werden, da der Majoritäts-OZ sehr nahe

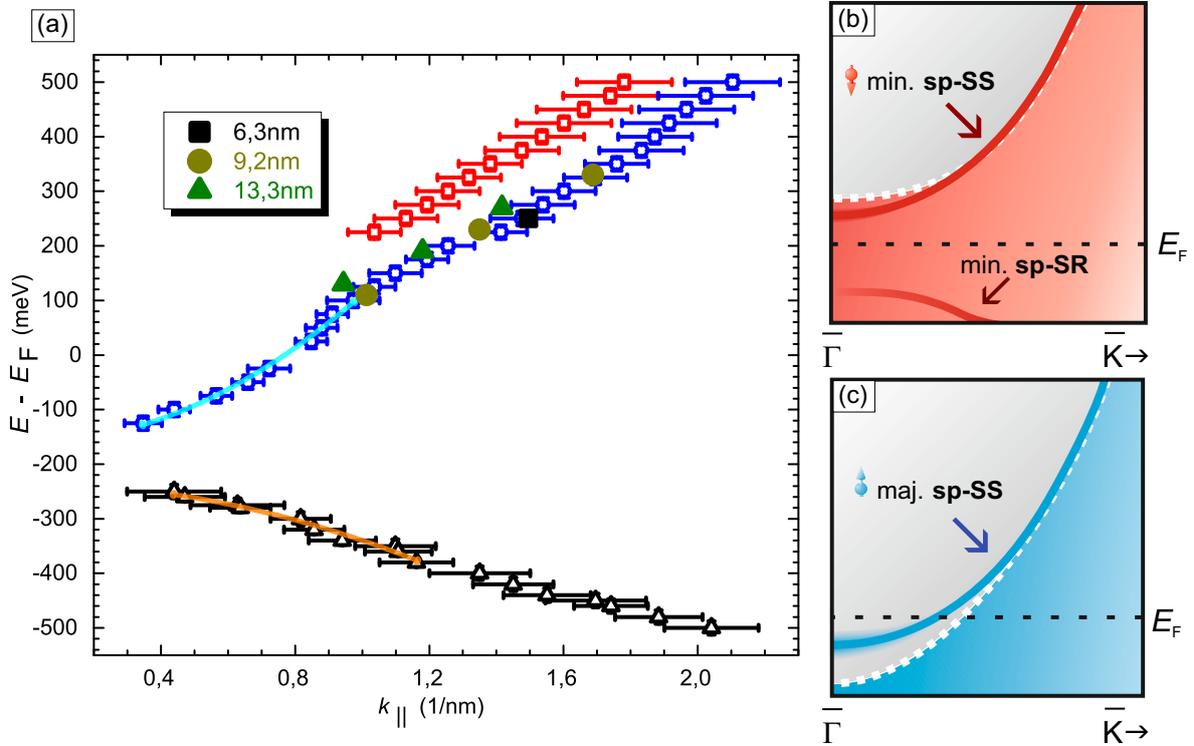


Abbildung 4.4: (a) Aus der Quasiteilcheninterferenz erhaltene Dispersionsrelation. Die nach oben gebeugten, elektronenartigen Bänder entsprechen dem spin-aufgespaltenen Oberflächenzustand (*sp*-OZ) und das nach unten gebeugte, lochartige Band entspricht der *d*-artigen Oberflächenresonanz (*d*-OR). Die Austauschspaltung des Minoritätsbandes (rote Datenpunkte) und des Majoritätsbandes (blaue Datenpunkte) ergibt sich zu $\Delta E_{\text{ex}} = (100 \pm 8)$ meV. Von ca. -180 meV bis zu $+100$ meV lässt sich das Majoritätsband parabolisch fitten. Der Ansatzpunkt des Oberflächenzustandes ergibt sich zu $E - E_F = (-160 \pm 8)$ meV und die effektive Masse zu $m^* = (+0,14 \pm 0,04) m_e$. Für die lochartige Oberflächenresonanz erhalte ich einen Ansatzpunkt von $E - E_F = (-235 \pm 5)$ meV und eine effektive Masse von $m^* = (+0,36 \pm 0,05) m_e$. Zusätzlich sind die Werte für die jeweiligen hexagonal lochartigen Inseln eingetragen. (b) und (c) zeigen schematisch den Verlauf der Bänder im Bereich von $\bar{\Gamma}$ bis \bar{K} (in Anlehnung an Braun *et al.* [56]).

an die Volumenbänder dispergiert, wie man in der schematischen Skizze in Abb. 4.4 (b) sieht. Nimmt man größere k -Werte zum parabolischen Fit dazu, so kommt es zu einer Abweichung meiner Ergebnisse von den Literaturdaten, was an der Hybridisierung des OZ mit den *d*-artigen Volumenzuständen des Ni(111) liegt [15, 17, 56]. Ähnliche Hybridisierungseffekte wurden sowohl an Edelmetallen als auch an Übergangsmetallen beobachtet [57, 58]. Das Minoritätsband des OZ wird für Energien unter $+200$ meV und über $+500$ meV von den Volumenzuständen des Ni(111) verdeckt und ist nur in dem Bereich dazwischen zu sehen (vgl. Abb. 4.4 (c)). Im Bereich von $+200$ meV bis $+500$ meV wechselwirkt das Minoritätsband mit den Volumenzuständen, wie dies schon beim Majoritätsband für Werte ab $+100$ meV (nach dem Knick) beobachtet wurde und es kommt wieder zu Hybridisierungseffekten. Für das Minoritätsband kann der Ansatzpunkt

des OZ nicht berechnet werden. Es kann lediglich aus dem Verlauf der Banddispersion gefolgert werden, dass sowohl Majoritäts- als auch Minoritätsband im Bereich der Hybridisierung die gleiche Krümmung und somit gleiche effektive Masse besitzen.

Für das nach unten dispergierende Band wurde ebenfalls ein parabolischer Fit von -250 meV bis -350 meV durchgeführt. Aus den Fitparametern ergibt sich der Ansatzpunkt bei $E - E_F = (-235 \pm 5)$ meV und die effektive Masse zu $m^* = (+0,36 \pm 0,05) m_e$. Diese Ergebnisse stimmen sehr gut mit den Ergebnissen von Kutzner *et al.* überein, der dieses Majoritätsband der d -artigen Oberflächenresonanz zugeordnet hat [15]. Auch hier kommt es zu einer Hybridisierung der OR mit den d -artigen Volumenzuständen.

Vergleicht man die Daten aus der QPI mit der RTS sieht man wenig Gemeinsamkeiten, da beispielsweise der breite Peak oberhalb der Fermienergie weder dem Minoritätsband noch dem Majoritätsband zugeordnet werden kann. Aus diesem Grund wurden weitere Messungen mit speziellen Verfahren zur Zuordnung der Bänder durchgeführt, die im nächsten Kapitel erläutert werden.

4.3 Lochartige Inseln zur weiteren Interpretation

Zur Verifizierung des OZ und der OR habe ich lochartige Inseln unterschiedlicher Größe präpariert und diese in einem eindimensionalen Quantentrogmodell betrachtet, s. Abb. 4.5. Diese Methode wurde schon an anderen Oberflächen getestet [20, 21, 59]. Eine ausführlichere Darstellung der Interpretation der Daten im Quantentrogmodell findet sich in der Masterarbeit von Andreas Krönlein [60].

Die lochartigen Inseln in der Oberfläche werden erzeugt, indem die Oberfläche kurz gesputtert und anschließend die Probe innerhalb von 4 Minuten auf ein Drittel der Schmelztemperatur gebracht wird. Das Sputtern trägt ca. 0,3 ML der Oberfläche ab und das spezielle Ausheilen lässt die hexagonalen Löcher entstehen. Die hexagonal lochartigen Leerstellen-Inseln besitzen unterschiedliche Größen, wie dies in Abb. 4.5 (a) zu sehen ist. Der Durchmesser einer Insel ergibt sich aus dem Abstand der gegenüberliegenden Stufenkanten einer Insel. Vergleicht man nun die Spektroskopiekurve der Ni(111)-Oberfläche außerhalb eines Loches (grüne Kurve in Abb. 4.5 (b)) mit den Spektroskopiekurven im Zentrum der unterschiedlich großen Löcher, so kann man deutliche Unterschiede bei positiven Spannungen feststellen. So ist bei der blauen Kurve, die mittig in einem Loch mit 6,3 nm Durchmesser aufgenommen wurde, ein Peak bei +250 meV deutlich ausgeprägt. Die rote Kurve, die in der Mitte eines Loches mit 9,2 nm Durchmesser aufgenommen wurde, zeigt zwei ausgeprägte Peaks bei +110 meV und +330 meV. Ebenso erkennt man bei der schwarzen Kurve, die ich in der Mitte des größten Loches mit einem Durchmesser von 13,3 nm erhalten habe, drei Peaks bei den Energien +100 meV, +200 meV und +375 meV. Diese Peaks können innerhalb des eindimensionalen Quantentrogmodells erklärt werden, welches in Abb. 4.5 (c) gezeigt ist.

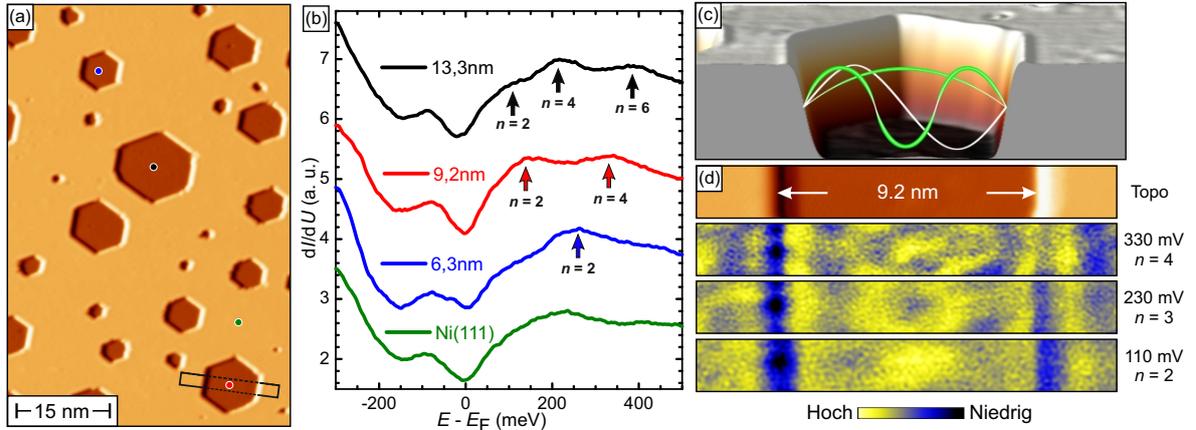


Abbildung 4.5: (a) Lochartige Inseln auf der Ni(111)-Oberfläche. Die Punkte markieren die Zentren der Löcher und somit die Position der Spitze für die RTS. Über die Insel rechts unten liegt noch ein Rechteck, welches den Bereich der in (d) aufgenommenen Topographie und dI/dU -Karten umrandet. (b) Rastertunnelspektroskopiekurven, die an den unterschiedlich markierten Punkten in der Topographie (a) aufgenommen wurden. Zudem sind die Peaks gekennzeichnet, die ein Maximum der Zustandsdichte im Zentrum eines Loches darstellen. Die Interpretation erfolgt im Rahmen eines eindimensionalen Quantentrogmodells, welches in (c) schematisch gezeichnet ist. Bei bestimmten Spannungen entsteht konstruktive Interferenz der stehenden Wellen unter den gegebenen Randbedingungen des Loches. Im Modell sind schematisch die Wellen mit $n_s = 1, 2, 3$ eingezeichnet für die Bedingung $D/\lambda_n = (n + 1)/2$, mit $n = 0, 2, 4, 6, \dots$ (d) Topographie gemessen im markierten Rechteck in (a) und die dazugehörigen dI/dU -Karten bei +110 meV, +230 meV und +330 meV. Das Maximum der Zustandsdichte in der Mitte der Insel steht für gerade n ($n = 2$ und $n = 4$). Ein Minimum der Zustandsdichte liegt bei +230 meV vor.

Bei bestimmten Spannungen und den damit verbundenen bestimmten Wellenlängen kommt es zu konstruktiver Interferenz der stehenden Wellen innerhalb der lochartigen Insel und zu den entsprechenden Peaks in der Spektroskopie. Die Position der Peaks hängt von der Randbedingung (dem Durchmesser) des Loches ab. Ein Maximum in der Zustandsdichte wird erwartet, wenn die Wellenlänge λ einem Vielfachen des Lochdurchmessers (D) entspricht, d.h. wenn $D/\lambda_n = (n + 1)/2$, mit $n = 0, 2, 4, 6, \dots$. Dieses sollte auch im dI/dU Signal zu erkennen sein, indem die Mitte des Loches eine erhöhte Zustandsdichte aufweist. Ebenso sollte ein Minimum im dI/dU Signal bei ungeraden n zu sehen sein. Beispielhaft zeigt Abb. 4.5 (d) die Topografie des Loches mit 9,2 nm Durchmesser und die für die jeweiligen Spannungen dazugehörigen dI/dU -Karten. Bei +110 meV und bei +330 meV ist ein Maximum der Zustandsdichte in der Mitte der Insel zu erkennen, was einem $n = 2$ und $n = 4$ entspricht. Das Minimum ($n = 3$) liegt bei +230 meV. Über die Formel $k_n = 2\pi/\lambda_n$ wird der Wellenvektor berechnet und die so erhaltenen Werte können in die Dispersionsrelation (Abb. 4.4) eingetragen werden, wobei die Farben den jeweiligen Inseln entsprechen. Die Werte liegen alle auf der Dispersionsrelation des Majoritäts-OZ. Somit ist gezeigt, dass ein großer Teil der Quantisierung durch die Majoritätsladungsträger des OZ in den nicht besetzten Zuständen getragen wird. Die Ni(111)-Oberfläche mit den hexagonalen Leerstellen-Inseln ist zweidimensional, weshalb sich

die Frage stellt, warum die Daten in einem eindimensionalen Quantentrogmodell interpretiert werden. Li *et al.* konnten am Beispiel von hexagonalen Leerstellen-Inseln auf Ag(111) zeigen, dass diese Interpretation gerechtfertigt ist [61]. Sie interpretierten ihre Daten im Rahmen eines ein- und zweidimensionalen Modells und erhielten für beide Wege vergleichbare Ergebnisse, weshalb in dieser Arbeit die einfachere Variante (eindimensionales Modell) vorgestellt wird. In der Masterarbeit von Andreas Krönlein wird das zweidimensionale Modell, das auf die hexagonalen Leerstellen-Inseln der Ni(111)-Oberfläche angewandt wird, ausführlich diskutiert [60].

4.4 Kantenzustände bei Ni(111)

Bei der Untersuchung der lochartigen Inseln im Rahmen des eindimensionalen Quantentrogmodells konnte eine Erhöhung der Zustandsdichte an bestimmten Kanten der hexagonalen Inseln beobachtet werden. In diesem Kapitel wird die Beobachtung experimentell weiter analysiert und mögliche Erklärungen erläutert. Doch zunächst wird auf die Ursache und Anordnung von sogenannten *A* und *B* Stufenkanten eingegangen.

4.4.1 Stufenkanten auf fcc-Kristallen

Die Stapelfolge der atomaren Lagen eines fcc Ni(111)-Kristalls ist ABCABCA... Hierbei sitzt ein Atom der ersten atomaren Lage in der Mitte von drei Atomen aus der zweiten atomaren Lage. Ein Atom aus der zweiten Lage befindet sich in der Mitte von drei Atomen aus der dritten atomaren Lage. Diese Stapelfolge wird durch das Kugelmodell in Abb. 4.6 repräsentiert. Die Kugeln der drei dargestellten atomaren Lagen sind unterschiedlich eingefärbt, um sie besser voneinander unterscheiden zu können. Hat man nun hexagonale Löcher auf der Oberfläche, liegt an jeder zweiten Stufenkante des Hexagons eine unterschiedliche atomare Konfiguration vor, wie es in Abb. 4.6 schematisch in Form von einer geometrischen Zeichnung dargestellt ist. Bei Stufenkanten des Typs A liegt eine viereckige Atomkonfiguration vor in Bezug auf die atomare Lage ober- und unterhalb der Kante. Dagegen weisen die Stufenkanten vom Typ B eine dreieckige Atomkonfiguration auf. Die Stufenkanten eines hexagonalen Loches besitzen alternierend Typ A und Typ B.

Die Entstehung der unterschiedlichen Atomkonfigurationen an den Stufenkanten ist abhängig von der Temperatur, d. h. von der Mobilität der Atome, und folgt den Gesetzen von Arrhenius [62]. Liu *et al.* haben berechnet, dass es für Ni(111) eine kritische Temperatur $T_C = (430 \pm 10)$ K gibt, bei der weder Typ A noch Typ B bevorzugt gebildet wird und diese Typen somit gleichmäßig verteilt vorkommen (s. Abb. 4.6). Wird die Probe dagegen oberhalb (unterhalb) von T_C ausgeheilt, bilden sich bevorzugt Stufenkanten vom Typ B (A), wie dies auch in Abb. 4.6 gezeigt ist. Dadurch erscheinen die Inseln nicht mehr gleichzeitig hexagonal, sondern ein Typ

der entsprechenden Stufenkante wird bevorzugt gebildet. Eine Erklärung hierfür liefert der Diffusionsmobilitätskoeffizient D , der sich aus dem Vorfaktor D_0 und der Aktivierungsenergie E_a zusammensetzt und folgendermaßen beschrieben wird:

$$D = D_0 \exp\left(-\frac{E_a}{k_B T}\right). \quad (4.1)$$

Für A Stufenkanten betragen der Vorfaktor $D_0 = (0,188 \pm 0,002)$ eV und die Aktivierungsenergie $E_a = (3,8 - 4,4) \times 10^{-3} \frac{\text{cm}^2}{\text{s}}$ im Temperaturbereich von 300 K bis 550 K. Für den Temperaturbereich 250 K bis 600 K betragen der Vorfaktor $D_0 = (0,140 \pm 0,001)$ eV und die Aktivierungsenergie $E_a = (1,1 - 1,2) \times 10^{-3} \frac{\text{cm}^2}{\text{s}}$ für Stufenkanten vom Typ B [62]. Diese Werte resultieren in zwei Arrheniusfits mit unterschiedlichen Steigungen, die sich bei der kritischen Temperatur $T = T_C$ schneiden.

4.4.2 Experimentelle Ergebnisse

Mit dem Wissen, dass es unterschiedliche Stufenkanten gibt, stellt sich nun die Frage, ob die atomare Konfiguration eine Auswirkung auf die lokale Zustandsdichte an der Stufenkante hat. Zur Analyse fertigte ich eine Reihe von dI/dU -Karten bei unterschiedlichen Spannungen an, von denen einige in Abb. 4.7 dargestellt sind. Bei einer Spannung von -200 mV (Abb. 4.7 (a)) und -150 mV (Abb. 4.7 (b)) erkennt man deutlich, dass abwechselnd die Stufenkanten der hexagonalen Löcher hell und dunkel erscheinen und die lokale Zustandsdichte somit bei jeder zweiten Kante erhöht ist. Dagegen ist die Intensität an den Stufenkanten in Abb. 4.7 (c) bei +100 mV gleichmäßig verteilt. Es sei darauf hingewiesen, dass die Signal-Überhöhung an der jeweils linken Kante der hexagonalen Inseln auf einen Spitzeneffekt zurückzuführen ist. Zusätzlich

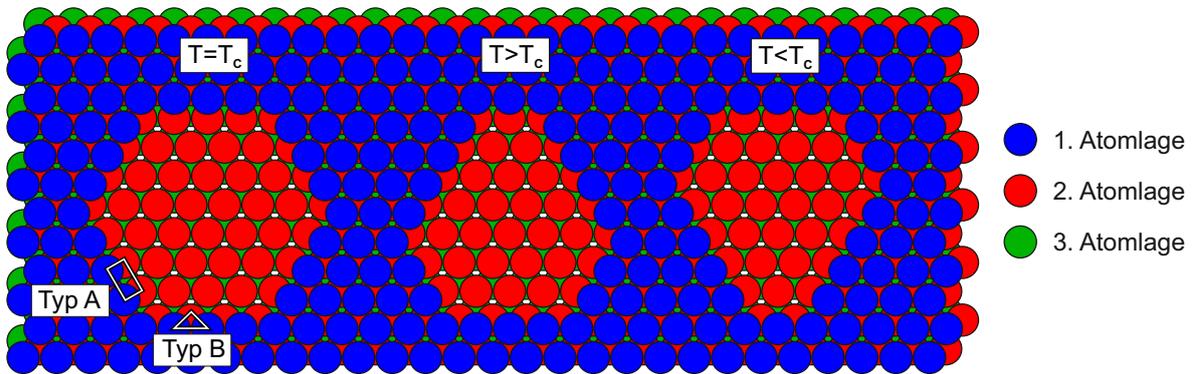


Abbildung 4.6: Schematisches Modell der lochartigen Inseln auf der Ni(111)-Oberfläche. Die gleichseitige hexagonale Insel entsteht bei einer Proben temperatur $T = T_C$. Der Typ A der Stufenkante zeigt eine vieratomige Konfiguration und der Typ B eine dreiatomige Konfiguration. Liegt die Proben temperatur oberhalb (unterhalb) von T_C werden bevorzugt Stufenkanten vom Typ B (A) gebildet. Adaptiert von Liu *et al.* [62].

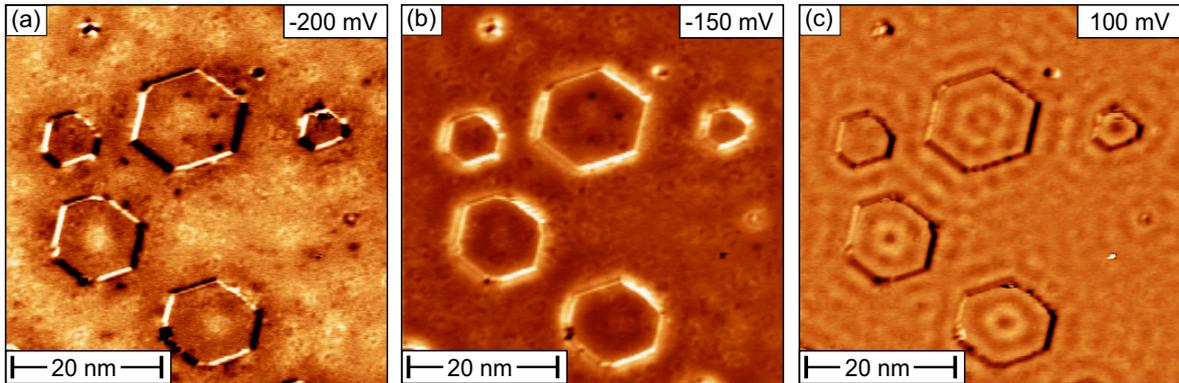


Abbildung 4.7: Der $(50 \times 50) \text{ nm}^2$ große Scan zeigt dI/dU -Karten von lochartigen Inseln mit unterschiedlichem Durchmesser bei (a) -200 mV , (b) -150 mV und (c) $+100 \text{ mV}$. In (a) und (b) ist die Zustandsdichte an jeder zweiten Stufenkante erhöht bzw. erniedrigt. Dagegen zeigen sich in (c) lediglich die stehenden Wellen, wie sie schon auf der Terrasse zu sehen waren.

erkennt man bei $+100 \text{ mV}$ in Abb. 4.7 (c) stehende Wellen, deren Ursprung bereits in Kap. 4.2 erläutert wurde.

Aus den dI/dU -Karten (Abb. 4.7 (a, b)) ist offensichtlich, dass jede zweite Kante eine erhöhte Zustandsdichte besitzt. Zur genauen Identifikation des hierfür verantwortlichen elektronischen Zustandes wurden mehrere hexagonale Inseln mittels GRID-Spektroskopie untersucht. In der Mitte von Abb. 4.8 ist beispielhaft eine dI/dU -Karte einer hexagonalen Insel dargestellt, die mit einer Spannung von $U = -160 \text{ mV}$ aufgenommen wurde. Die Zustandsdichte weist für die markierten Stufenkanten 2 und 4 eine höhere Intensität auf, als dies bei den Stufenkanten 1 und 3 der Fall ist. Es ist zu beachten, dass alle Kanten die gleiche Tendenz zeigen und diese vier Kanten beispielhaft gewählt sind. Die den einzelnen Kanten zugeordneten Grafen (1)-(4) zeigen jeweils ein oberhalb der Stufe gemessenes Spektrum (schwarzer Punkt, schwarze Kurve) und ein Referenzspektrum (blaue Kurve), welches einige nm abseits der Stufe (blauer Punkt) gemessen wurde. Alle hier gezeigten Kurven wurden über mehrere Spektren gemittelt. Ein roter Pfeil markiert die Differenz der Spektren bei einer Spannung von ca. $U = -180 \text{ mV}$ zueinander. Die Pfeillänge und somit der Unterschied bei einer Spannung von $U = -180 \text{ mV}$ variiert deutlich, wenn man die Spektren aus den Grafiken (1) und (2) bzw. (3) und (4) miteinander vergleicht, d.h. je eine Stufenkante mit niedriger und erhöhter Zustandsdichte (vgl. dI/dU -Karte). Aus den Spektren lässt sich schließen, dass eine Stufenkante mit erhöhter Zustandsdichte einen Peak bei $U = -180 \text{ mV}$ aufweist, welcher in der Grafik (3) und (4) sehr deutlich zu sehen ist. Spektren, die an Stufenkanten ohne erhöhte Zustandsdichte aufgenommen wurden, zeigen auch eine kaum erhöhte Zustandsdichte bei einer Spannung von ca. $U = -180 \text{ mV}$ (vgl. Grafik (1) und (3)). Die leichten Variationen in den Spektren zwischen den einzelnen Grafiken kommen von Spitzenänderungen.

Zusammenfassend kann man sagen, dass jede zweite Stufenkante einen Zustand oberhalb bzw. an der Stufe bei ca. -180 mV zeigt. Ebenfalls ist bekannt, dass die hexagonalen Inseln auf fcc

Kristallen alternierende Atomkonfigurationen (Typ A, Typ B) an den Stufenkanten besitzen. Zur Verifikation der Atomkonfiguration an den Stufenkanten benötige ich atomare Auflösung über mehrere Stufenkanten einer Insel hinweg. Zusätzlich bedarf es noch einer dI/dU -Karte derselben hexagonalen Insel bei ca. -180 mV , um die Zustände erhöhter differentieller Leitfähigkeit an den Stufenkanten den jeweiligen Atomkonfigurationen zuzuordnen. Die Topographie, die atomare Auflösung und die dazugehörige dI/dU -Karte der hexagonalen Insel bei -170 mV zeigt Abb. 4.9. Es ist sehr schwierig über Stufenkanten hinweg atomare Auflösung zu erzielen. Dennoch gelang dieses Vorhaben stellenweise (an dieser Stelle herzlichen Dank an Martin Schmitt) und es ist zu erkennen, welche Atomkonfiguration an den unterschiedlichen Stufenkanten vorliegt. Einzelne Pfeile (grün) ordnen die atomaren Auflösungen den unterschiedlichen Stufenkanten (Abb. 4.9 (b-d)) zu. Zur besseren Orientierung ist die atomare Struktur unter- und oberhalb der Stufenkante mit roten und blauen Kugeln nachgebildet und diese soweit über die Stufenkante hinweg fortgesetzt, dass man die Verschiebung der Gitter zueinander erkennen kann. Die Stufenkante in Abb. 4.9 (b) kann dem Typ A zugeordnet werden, die gegenüberliegende Stufenkante (Abb. 4.9 (c)) dem Typ B. Zur weiteren Verifikation dieser These sollte die Stufenkante in Abb. 4.9 (d) ebenfalls Typ B vorweisen, was durch die atomare Auflösung auch

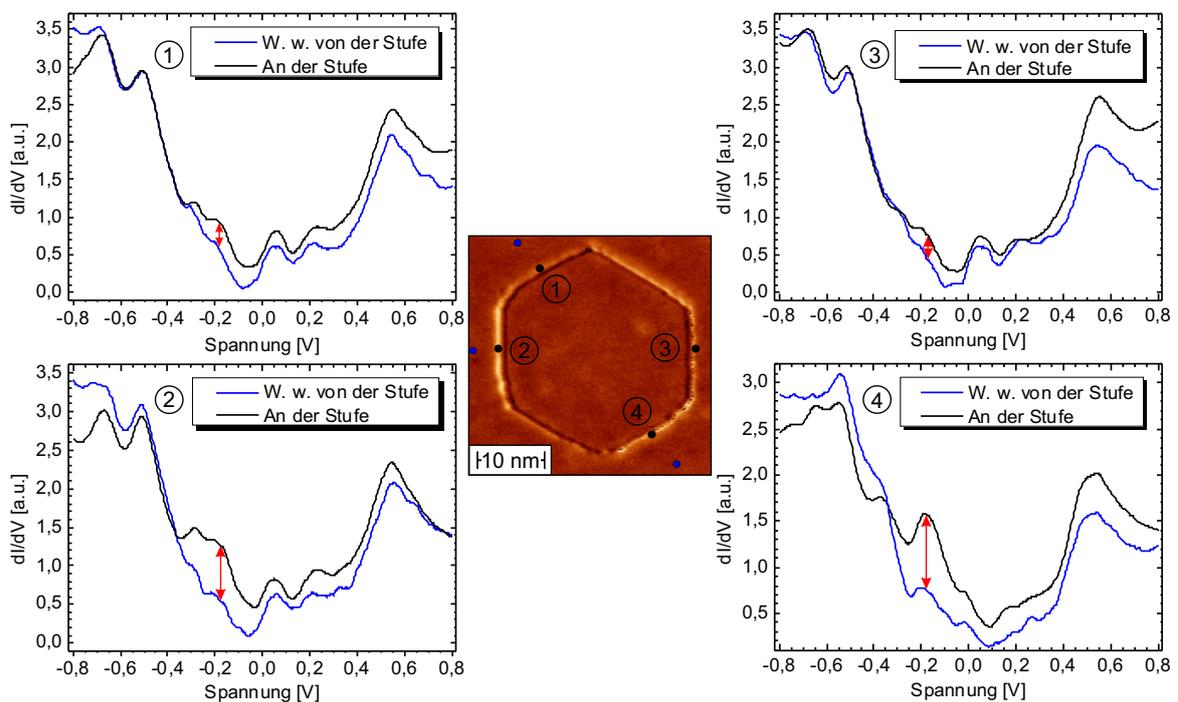


Abbildung 4.8: In der Mitte der Abbildung ist die dI/dU -Karte einer hexagonalen Insel mit einem Durchmesser von 25 nm dargestellt. Scanparameter: $U = -160\text{ mV}$, $I = 1\text{ nA}$, $U_{\text{mod}} = +5\text{ mV}$. Die einzelnen Grafiken, die ein Spektrum an der Stufenkante (schwarz) und eines mit einem Abstand von einigen nm zur Stufenkante (blau) zeigen, sind den einzelnen Stufenkanten zugeordnet. Die roten Pfeile verdeutlichen den Unterschied der Spektren der einzelnen Stufenkanten zueinander. Stabilisierungsparameter: $U = -800\text{ mV}$, $I = 2,5\text{ nA}$, $U_{\text{mod}} = 10\text{ mV}$.

bestätigt wird. Die dI/dU -Karte, die bei $U = -170$ mV aufgenommen wurde, zeigt Abb. 4.9 (e). In diesem Fall wurde die dI/dU -Karte nach dem Erhalt der atomaren Auflösung aufgenommen. Durch das Erzielen der atomaren Auflösung hat sich Material von der Spitze an den beiden oberen Kanten abgelagert. Trotz der dadurch entstandenen leichten Verunreinigungen der Insel erkennt man dennoch, dass jede zweite Stufenkante eine erhöhte Zustandsdichte oberhalb der Kante besitzt. Trägt man alle erhaltenen Ergebnisse zusammen, so haben Stufenkanten des Typ B (dreieckige Atomkonfiguration) eine erhöhte Zustandsdichte.

Zur Überprüfung, ob dieser Zustand an den Stufenkanten spinpolarisiert ist, werden Messungen mit einer magnetischen Spitze durchgeführt. Die Ni(111)-Oberfläche besitzt ferromagnetische Domänen, in denen der Magnetisierungsvektor in der (111)-Ebene liegt [16]. Dies bedeutet, dass die Magnetisierungsrichtung der magnetischen Spitze ebenfalls in der Ebene liegen muss, da die Domänenstruktur aufgrund der Orthogonalität sonst nicht beobachtet werden kann. In den folgenden Messungen werden mit Chrom beschichtete Spitzen verwendet, die die Magnetisierung des Ni aufgrund des kaum vorhandenen Streufeldes nicht beeinflussen. Abbildung 4.10 (a) zeigt eine $(2 \times 2) \mu\text{m}^2$ große RTM Aufnahme. Es sind in der linken Bildhälfte sehr viele Stufen zu erkennen, die häufig aus Schraubenversetzungen hervorgehen und zusammen genommen ein sogenanntes Stufenbündel bilden. Ebenso ist eine sehr große Terrasse in der Bildmitte ausgebildet. In der gleichzeitig zu Abb. 4.10 (a) aufgenommenen dI/dU -Karte (Abb. 4.10 (b)) erkennt man zwei magnetische Domänen, wobei sich eine fast über das gesamte Bild erstreckt. In dem gezoomten Bildausschnitt (Abb. 4.10 (c)) sind die Schraubenversetzungen noch deutlicher zu erkennen. Die gleichzeitig zur Topographie aufgenommene dI/dU -Karte (Abb. 4.10 (d)) zeigt die Domänenwand zwischen den beiden ferromagnetischen Domänen.

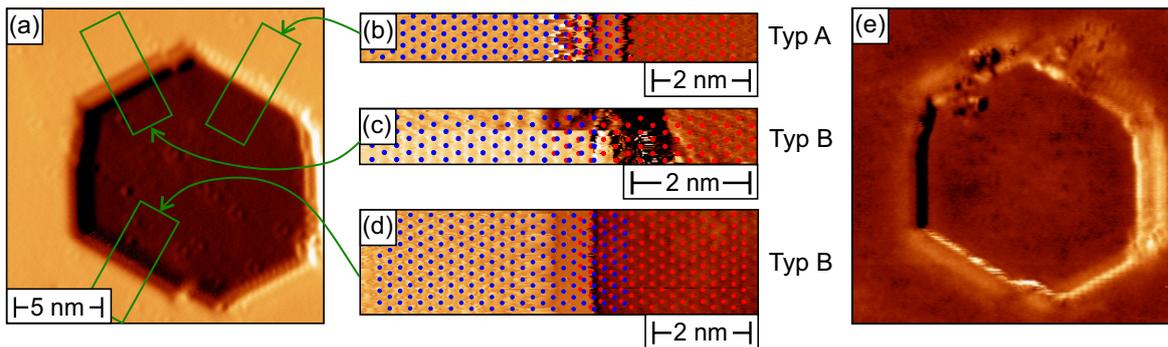


Abbildung 4.9: (a) Topographie einer hexagonalen Insel, an welcher für verschiedene Stufenkanten atomare Auflösung erzielt wurde. (b-d) Die atomare Auflösung der jeweiligen Stufenkante (schwarzes Rechteck in (a)) ist mit einem atomaren Gitter unter- (rot) und oberhalb (blau) der Stufenkante modelliert, um die Verschiebung der Gitter zueinander zu verdeutlichen. (b) und (c) zeigen die zwei unterschiedlichen Stufenkantentypen A und B, wie dies theoretisch erwartet wurde, wobei die theoretische Erwartung durch (d) mit der Stufenkante des Typ B nochmals bestätigt wurde. (e) Die dI/dU -Karte der hexagonalen Insel zeigt trotz der Verunreinigungen durch die Spitze aufgrund der atomaren Auflösung eine Erhöhung der Zustandsdichte an jeder zweiten Stufenkante. Scanparameter: $U = -170$ mV, $I = 1$ nA, $U_{\text{mod}} = +5$ mV.

Zur Überprüfung der Spinpolarisation werden jeweils ein hexagonales Loch der dunkel erscheinenden Domäne und eines der hell erscheinenden Domäne mittels dI/dU -Karten und RTS untersucht (s. Abb. 4.11). Die magnetische Spitze bildet die hexagonalen Inseln der dunklen (Abb. 4.11 (a)) und der hellen (Abb. 4.11 (b)) Domäne mit einer hinreichenden Genauigkeit ab. In den dazugehörigen dI/dU -Karten erkennt man trotz der asymmetrischen Form der Spitze den Zustand an jeder zweiten Stufenkante. Auch an diesen hexagonalen Inseln werden Spektroskopiekurven entlang einer Linie aufgenommen, wobei die wichtigsten Spektren in den Grafiken der Abb. 4.11 (c, d) zusammengefasst sind. Abbildung 4.11 (c) zeigt die RTS für die Insel im Bereich der dunklen Domäne. Es ist sowohl ein Referenzspektrum der Ni(111)-Oberfläche (weit weg von der Stufenkante, blauer Punkt/Graph) abgebildet, als auch die Spektren der linken oberen Stufenkante (schwarzer Punkt/Graph) und der rechten unteren Stufenkante (roter Punkt/Graph). Alle Spektren dieser Abbildung zeigen einen durchschnittlichen Wert an. In guter Übereinstimmung zur dI/dU -Karte (Abb. 4.11 (a)) sieht man im schwarzen Spektrum einen Peak bei ca. -180 mV, welcher in der roten Kurve nicht vorhanden ist. Dies war schon bei den Messungen mit einer nicht-magnetischen Spitze zu erkennen. Ebenso habe ich Spektroskopiekurven entlang einer Linie für die hexagonale Insel aus der hellen Domäne aufgenommen und die Ergebnisse in Abb. 4.11 (d) zusammengefasst. Wieder ist ein Peak in der schwarzen Kurve (Spektrum an der linken oberen Stufenkante) bei ca. -180 mV zu erkennen, welcher in der roten Kurve (Spektrum an der rechten unteren Stufenkante) nicht zu beobachten ist. Ein Referenzspektrum wurde auch hier weit weg von der Stufenkante (blauer Punkt/Graph)

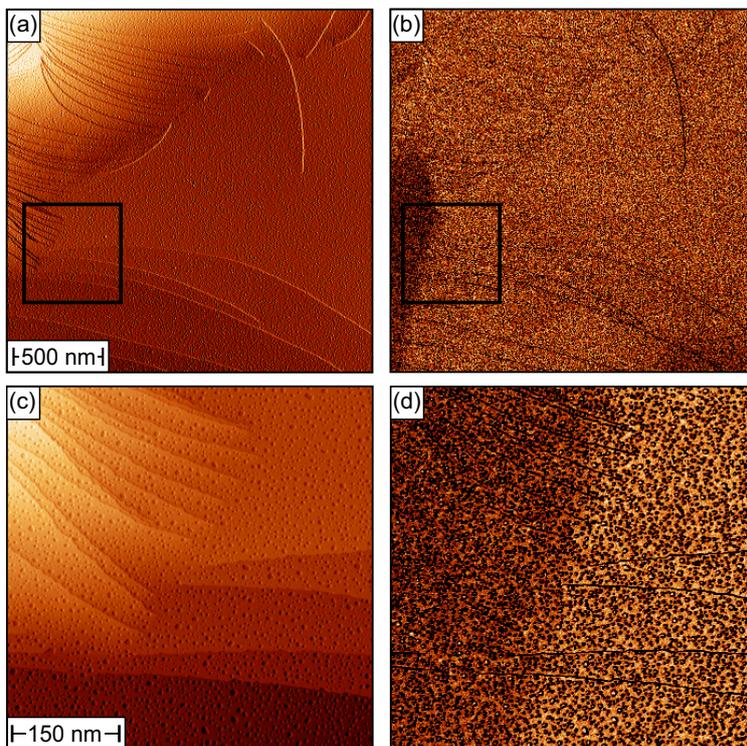


Abbildung 4.10: (a) Eine großflächige (2×2) μm^2 Aufnahme der Ni(111)-Oberfläche und die gleichzeitig aufgenommene dI/dU -Karte (b), die zwei magnetische Domänen abbildet. (c) Ein Bildausschnitt (500×500) nm^2 (schwarzes Rechteck) der Topographie aus (a). (d) In der gleichzeitig zu (c) aufgenommenen dI/dU -Karte erkennt man die Domänenwand zwischen den beiden Domänen. Scanparameter: $U = -500$ mV, $I = 2$ nA, $U_{\text{mod}} = +10$ mV.

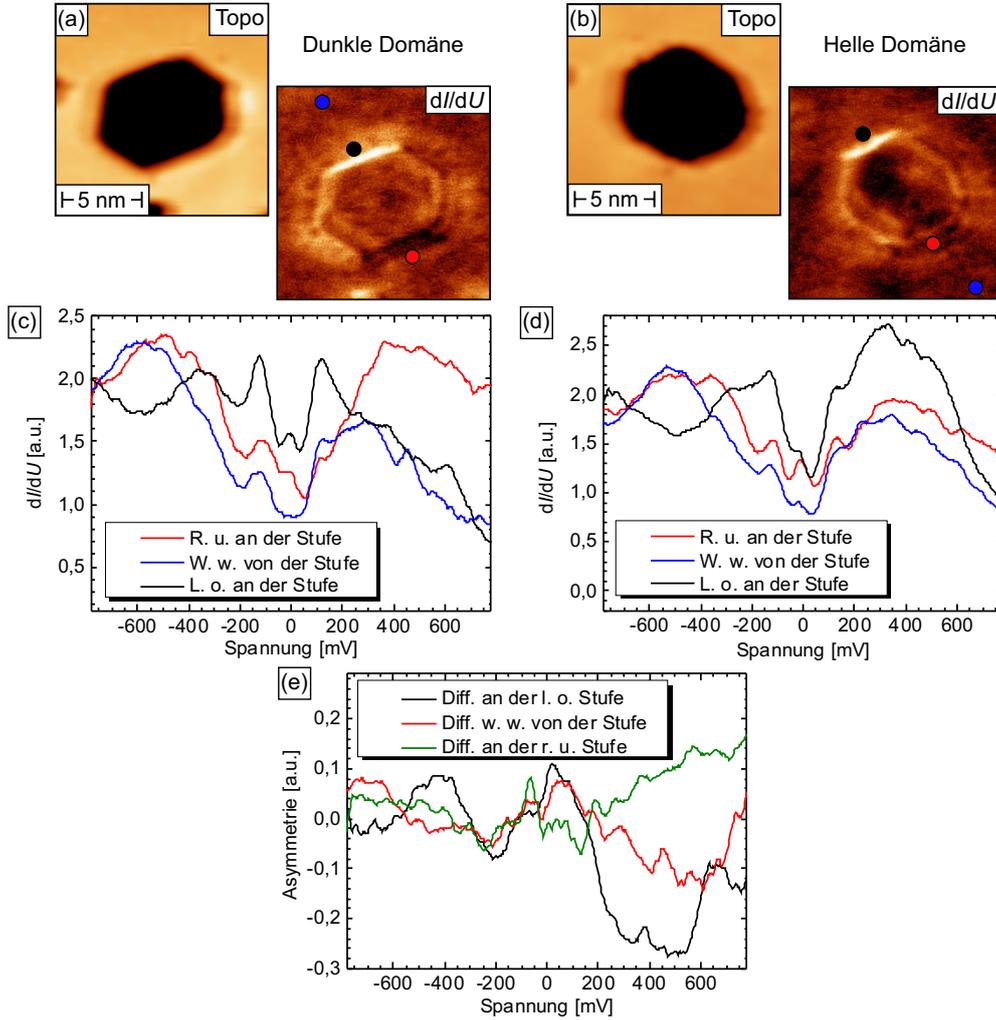


Abbildung 4.11: (a) und (b) zeigen die Topographie und die gleichzeitig aufgenommene dI/dU -Karte je einer hexagonalen Insel der dunklen Domäne und hellen Domäne. Scanparameter: $U = -160$ mV, $I = 1$ nA, $U_{\text{mod}} = +10$ mV. (c) Gemittelte Spektren der Insel aus der dunklen Domäne. Eine Erhöhung der Zustandsdichte bei -200 mV zeigt die schwarze Kurve, die an der Stufenkante aufgenommen wurde. Diese Erhöhung ist in der roten Kurve auf der gegenüberliegenden Kante nicht vorhanden. Das Referenzspektrum des Ni(111) bildet die blaue Kurve ab. (d) Spektren der hexagonalen Insel aus der hellen Domäne. Die blaue Kurve stellt wieder das Referenzspektrum des Ni(111) dar. Wiederum erkennt man einen Peak in der Zustandsdichte bei -200 mV an der Stufenkante (schwarze Kurve), der auf der gegenüberliegenden Stufenkante (rote Kurve) nicht vorhanden ist. (e) Die Asymmetriekurven der in (c) und (d) gezeigten Spektren verdeutlichen Unterschiede für positive Spannungen, aber nicht signifikant im Bereich zwischen -150 mV und -200 mV. Stabilisierungsparameter der Spektren: $U = -800$ mV, $I = 2,5$ nA, $U_{\text{mod}} = 10$ mV.

aufgenommen und abgebildet. Zur Verifikation des magnetischen Ursprungs wird nun die Asymmetrie A der schwarzen Spektren nach

$$A = \frac{dI/dU(\text{dunkle Domäne}) - dI/dU(\text{helle Domäne})}{dI/dU(\text{dunkle Domäne}) + dI/dU(\text{helle Domäne})} \quad (4.2)$$

berechnet. Die Asymmetrie ist zusammen mit der ebenso berechneten Differenz der rechten unteren Stufenkante und der Oberfläche in Abb. 4.11 (e) gezeigt. Wäre der Zustand spinpolarisiert, müsste sich im Spannungsbereich von -200 mV bis -150 mV ein deutlicher Peak oder Dip in der Asymmetrie ausbilden, da sich die Besetzung der Zustände für "Spin up" und "Spin down" unterscheiden sollten. Dies ist allerdings nicht der Fall, da in diesem Bereich die Abweichung um die Nulllinie bei den gewählten Stabilisierungsparametern kaum vorhanden ist. Im Gegensatz dazu unterscheidet sich die Asymmetrie für positive Spannungen sehr deutlich für die einzelnen Fälle, was auf die Spinpolarisation zurückzuführen sein könnte.

Abschließend gibt es aus den experimentellen Daten keinen Hinweis darauf, dass der beobachtete Zustand um -180 mV auf die Spinpolarisation des Ni zurückzuführen ist. Zur weiteren Klärung dieses spektroskopischen Zustands wurden theoretische Rechnungen in Auftrag gegeben. Die Ergebnisse dieser Rechnungen lagen bis zur Abgabe dieser Arbeit noch nicht vor.

5 Dünne Eisenfilme auf Rh(001)

Das folgende Kapitel behandelt den Oberflächenmagnetismus von dünnen Eisenfilmen auf einem nicht magnetischen, kubisch flächenzentrierten (fcc) Rhodium (Rh) (001)-Einkristall. Elementares Eisen (Fe) ist ferromagnetisch und besitzt eine hohe Curietemperatur, weshalb es für Anwendungen sehr interessant ist. In der Grundlagenforschung bilden dünne Fe-Filme je nach Substratwahl sowohl antiferromagnetische als auch ferromagnetische Eigenschaften aus. Die Ausbildung des jeweiligen Magnetismus hängt von der Kompression oder Expansion des Fe Filmes ab verglichen mit der eigentlichen Gitterkonstanten von Fe. So ist zum Beispiel eine Monolage (ML) Fe auf Ir(111) antiferromagnetisch ausgerichtet, aber eine ML Fe auf Mo(110) ferromagnetisch [3, 5]. Rhodium liegt mit einer Gitterkonstanten von $a_{\text{Rh}} = 0,269 \text{ nm}$ zwischen dem antiferromagnetischen fcc Eisen ($a_{\text{fcc-Fe}} = 0,253 \text{ nm}$) und dem ferromagnetischen bcc (engl.: *body-centered cubic*, deut.: kubisch raumzentriert) Eisen ($a_{\text{bcc-Fe}} = 0,287 \text{ nm}$).

5.1 Literatur zu dünnen Eisenfilmen auf Rh(001)

Zu Fe auf Rh(001) gibt es zwei DFT-Studien von Al-Zubi *et al.* und Spišák *et al.* [23, 24]. Beide theoretische Gruppen berechnen, dass sich die ML Fe auf Rh(001) antiferromagnetisch in einer $c(2 \times 2)$ Struktur ausbildet, was auch unter dem Namen "Schachbrettmuster" bekannt ist. Spišák *et al.* führten nur Rechnungen an Fe auf Rh(001) durch und ermittelten dabei auch die strukturellen, chemischen und magnetischen Veränderungen mit und ohne CO-Molekülen in Abhängigkeit der Schichtdicke des Fe Filmes. Dabei kommen sie zu dem Ergebnis, dass die erste Lage Fe auf Rh(001) in einer $c(2 \times 2)$ Struktur antiferromagnetisch mit der leichten Magnetisierungsachse parallel zur Ebene geordnet sein muss. Ab der zweiten Lage bildet sich in der obersten Eisenschicht ein ferromagnetischer Grundzustand, wobei nach den Rechnungen von Spišák *et al.* die Curietemperatur der zweiten Lage unterhalb der Raumtemperatur liegt. Bei 4 ML Fe auf Rh liegt die Curietemperatur mit 530 K immernoch deutlich unterhalb der Curietemperatur vom Volumen-Fe.

Al-Zubi *et al.* haben den Magnetismus verschiedener 3d-Übergangsmetalle (V, Cr, Mn, Fe, Co, Ni) als ML auf einer Rh(001)-Oberfläche betrachtet [24]. Dabei wurde der magnetische Grundzustand der ersten Lage V, Co und Ni auf Rh(001) als ferromagnetisch und bei Cr, Fe und Mn als antiferromagnetisch berechnet. Zudem wurde die magnetokristalline Anisotropie

(MKA) für die ferromagnetische und antiferromagnetische Ordnung kalkuliert, wonach die MKA bei 1 ML Fe auf Rh(001) im antiferromagnetischen Grundzustand zu einer Ausrichtung der magnetischen Momente parallel zur Filmebene tendiert. Durch die Hybridisierung des Fe mit dem Substrat kommt es zu einer weiteren Stabilisierung des AFM Grundzustands.

Experimentell wurde das System Fe auf Rh(001) von Hayashi *et al.* mit Photoelektronenspektroskopie und zirkularem magnetischem Röntgenschroism (engl.: *X-ray magnetic circular dichroism*, XMCD) bei Raumtemperatur untersucht. Sie bezeichneten die erste und die zweite Lage Fe als nicht magnetisch [25–27].

Es gibt seit 2013 auch eine Studie mit SP-RTM und MOKE Experimenten von Takada *et al.* [22]. MOKE Messungen bei 5 K zeigen, dass von der zweiten bis zur fünften Lage das Fe ferromagnetisch ausgerichtet ist. Allerdings sind die magnetischen Momente der zweiten und dritten Lage Fe senkrecht zur Ebene ausgerichtet und die vierte bzw. fünfte parallel zur Ebene. Dies bedeutet, dass es zwischen der dritten und vierten Lage Fe zu einer Umkehr der Magnetisierung von senkrecht zu parallel zur Ebene kommt, wie sie schreiben. Für die erste ML Fe auf Rh(001) erhalten sie kein magnetisches Signal, weshalb sie von einer magnetischen Struktur ausgehen, deren Signal sich bei einer flächenübergreifenden Betrachtung auslöscht. Die Messungen mittels SP-RTM beziehen sich aufgrund der MOKE Ergebnisse nur auf die erste Lage Fe auf Rh(001), wo eine komplizierte magnetische Spinstruktur mit einer Komponente senkrecht zur Filmebene und einer Komponente parallel zum Film festgestellt wurde. Bei der Komponente senkrecht zur Filmebene handelt es sich laut Takada *et al.* um eine (2×3) Struktur, die mit einer Cr-beschichteten Spitze gemessen wurde. Mit einer Fe-beschichteten Spitze, die sensitiv zur Magnetisierung parallel zur Filmebene ist, ergab sich eine gestreifte Struktur, welche auch in einem Modell dargestellt wurde. Offensichtlich widersprechen die auf der ersten ML Fe auf Rh(001) durch Takada *et al.* erzielten SP-RTM-Daten den oben zitierten DFT-Rechnungen, die beide eine antiferromagnetische Spinstruktur vorhersagen.

Bevor ich nun meine experimentellen Ergebnisse vorstelle, die in Zusammenarbeit mit P.-J. Hsu, J. Kügel, T. Mauerer, S. Wilfert und M. Vogt entstanden sind, wird die Herkunft und der Nachweis einer Ladungsdichtewelle genauer erläutert, da dieses Wissen für die nachfolgende experimentelle Analyse benötigt wird. Ein Großteil der Messergebnisse wurde in zwei wissenschaftlichen Artikeln veröffentlicht [63, 64].

5.2 Ladungsdichtewelle

Rudolf Peierls entwickelte 1930 im eindimensionalen Modell den Mechanismus der Ladungsdichtewelle [65]. Ausgehend von einem eindimensionalen Metall mit einer Gitterkonstanten a kommt es unterhalb einer kritischen Temperatur T_C zu einem sogenannten Übergitter (Modulation der Ladungsdichte) mit der Periodizität $\lambda = n \cdot a$ und dem Wellenvektor $q = \frac{2\pi}{\lambda}$, welcher die Bedingung $q = 2k_F$ erfüllt [66, 67]. Der Übergang von $T > T_C$ nach $T < T_C$ stellt

einen sogenannten Metall-Isolator-Übergang oder auch Peierls-Übergang dar, der nach Rudolf Peierls benannt wurde. Bei diesem Übergang wird die Energie des Systems aufgrund von zwei Prozessen verringert. Zum einen kommt es zu einer Energieminimierung durch die Verschiebung des Gitters und zum anderen tritt unterhalb von T_C an der Fermienergie eine Bandlücke Δ auf, die ebenfalls zu einer Verringerung der Energie führt. Die durch die Verschiebung des Gitters gewonnene Energie ist geringer als die Energie, welche durch die Bandlücke Δ an der Fermienergie erhalten wird. Die Bandlücke Δ verschiebt die besetzten Zustände weiter unter die Fermienergie E_F und im eindimensionalen Fall treten Elektron-Loch-Paare auf [67]. Das heißt, es existieren zwei entartete Niveaus in den unbesetzten und besetzten Zuständen, welche sich durch $q = 2k_F$ komplett ineinander überführen lassen, was auch als Fermi-Nesting bezeichnet wird. Im eindimensionalen Fall ist die Modulation der Ladungsdichte maximal bei $T = 0$ K. Bei einem zweidimensionalen Fall benötigt man beliebig viele unterschiedliche Wellenvektoren, um die Fermiflächen ineinander zu überführen und es tritt keine Modulation der Ladungsdichte auf. Im quasi-eindimensionalen Fall können die Fermiflächen teilweise durch sogenannte Elektronentaschen über die Wellenvektoren $q = 2k_F$ ineinander überführt werden. Hierbei kommt es zum partiellen Fermi-Nesting.

Allgemein kann man Gittermodulationen auf drei wesentliche Charakteristika zurückführen [67]. Zum einen benötigt man elektronische Instabilitäten, die durch Elektron-Phonon-Wechselwirkungen hervorgerufen werden, zum anderen öffnen Ladungsdichtewellen eine Bandlücke Δ am Fermienergielevel. Desweiteren gilt, dass die Wellenlänge der Modulation über $\lambda = \frac{\pi}{k_F}$ mit dem Fermi-Wellenvektor definiert ist. Im dreidimensionalen kommt es auch häufig zu einer inkommensurablen Ladungsdichtewelle zwischen Kristallgitter und Ladungsverteilung, d.h. die Gitterkonstante entspricht nicht einem ganzzahlig Vielfachen der Ladungsverteilung. Bei einer kommensurablen Ladungsdichtewelle deckt sich die Ladungsverteilung mit einem ganzzahlig Vielfachen der Gitterkonstanten.

Der erste experimentelle Nachweis der charakteristischen Bandlücke Δ am Fermienergielevel gelang 1976 an NbSe_3 [68]. Bei den temperaturabhängigen Widerstandsmessungen an NbSe_3 weichen die Kurven vom reinen ohmschen Verhalten ab und es entstehen Einbrüche (Senken) der Widerstandskurve bei $T = 129$ K und $T = 49$ K. Diese Einbrüche werden als Ausbildung einer Ladungsdichtewelle interpretiert. Zwei Jahre später wurde mit Röntgenstreuung und Widerstandsmessungen die Ausbildung zweier unabhängiger, inkommensurabler Ladungsdichtewellen bei $T = 144$ K und $T = 59$ K verifiziert [69]. 1999 wurden erste Tunnelspektroskopie-Messungen veröffentlicht, die einen Einbruch um das Fermienergielevel ($U = 0$ V) zeigen, der für sinkende Temperaturen immer ausgeprägter wird [70]. Weitere Systeme, die Ladungsdichtemodulationen zeigen, sind $\text{In/Si}(111)$ [71, 72], 1T-TiSe_2 [73], 1T-TaS_2 [74], 2H-TaSe_2 [75], Rekonstruktionen auf $\text{W}(001)$ und $\text{Mo}(001)$ [76, 77], sowie der bedeutendste Vertreter bei den dreidimensionalen Fällen Cr [78].

Der Nachweis einer Ladungsdichtewelle kann durch temperaturabhängige Beugungsexperimente

erfolgen, da bei diesen Experimenten eine Verschiebung von Atompositionen durch Satelliten neben den Hauptspots zu erkennen ist. Winkelaufgelöste Photoelektronenspektroskopie eignet sich sehr gut zum Nachweis der Elektronentaschen bzw. des Fermi-Nestings. Zur Detektion der Ladungsverteilung können NMR, Röntgenspektroskopie und Rastersondenverfahren angewandt werden. Für den weiter interessierten Leser sei an dieser Stelle auf das Buch von G. Grüner verwiesen [79].

5.3 Probenpräparation

Für die Präparation des Rh(001)-Einkristalls gibt es in der Literatur unterschiedliche Verfahren. Zur Präparation werden für gewöhnlich Sputter-Heiz-Zyklen verwendet, wobei es Unterschiede in der verwendeten Gasart (Argon/Neon) [80], in der Heiztemperatur (900 K - 1600 K) [22,80,81] und der Dauer des Heizens (5 min - 60 min) [26, 81] gibt.

Meist wird auf eine oxidierende Atmosphäre, wie sie z.B. durch niedrige Sauerstoff-Partialdrücke erzeugt werden kann, verzichtet. Eine Ausnahme bildet hier die Studie von Hwang *et al.*, welche explizit die Notwendigkeit des Heizens unter Sauerstoffatmosphäre beschreiben [80]. Die folgenden Messungen zeigen, dass durch das Heizen unter Sauerstoffatmosphäre die Kohlenstoffverunreinigungen auf der Oberfläche des Rh(001)-Kristalls deutlich reduziert werden können. Diese Beobachtung wurde auch schon am W(110)-Kristall gemacht, wo die Sauerstoffatmosphäre ebenfalls von essentieller Bedeutung ist [82,83]. Auf einer sauberen Rh(001)-Oberfläche weichen die von mir beobachteten magnetischen Strukturen auf der ersten ML Fe signifikant von den Ergebnissen von Takada *et al.* ab [22].

Für die folgenden Messungen auf einem Rh(001)-Einkristall der Firma MaTeck [84] wurden verschiedene Präparationen durchgeführt, um eine saubere Oberfläche herzustellen. So wurde der Kristall bei verschiedenen Präparationen zwischen Raumtemperatur und 700 K gesputtert und danach zwischen 900 K und 1300 K geheizt. Die in Abb. 5.1 (a) dargestellte Oberfläche wurde zunächst bei einer Probertemperatur von 700 K gesputtert und anschließend auf 960 K für einige Minuten geheizt. Man erkennt gut die atomaren Stufenkanten, die die Terrassen separieren. Allerdings erscheint die Oberfläche nicht atomar flach, sondern eher hügelig mit einigen Versetzungslinien auf den Terrassen, die mit schwarzen Pfeilen markiert sind. Abbildung 5.1 (b) zeigt einen Scan auf einer der Terrassen. Deutlich ist eine große Anzahl an Punktdefekten und die hügelige Oberfläche (hell/dunkel Kontrast) zu erkennen.

Die Oberfläche verändert sich stark, wenn der Kristall 10 min bei Raumtemperatur gesputtert wird und anschließend bei 1300 K für 150 s unter Sauerstoffatmosphäre geheizt wird. Direkt im Anschluss wird der Kristall für wenige Sekunden bei derselben Temperatur ohne Sauerstoff weiter geheizt (Abb. 5.1 (c)), um Sauerstoffrekonstruktionen an der Oberfläche zu vermeiden. Man kann sowohl Stufenkanten als auch atomar flache Terrassen erkennen, wobei zwei der drei Stufenkanten in Schraubenversetzungen (weiße Pfeile) enden. Zoomt man auf eine der

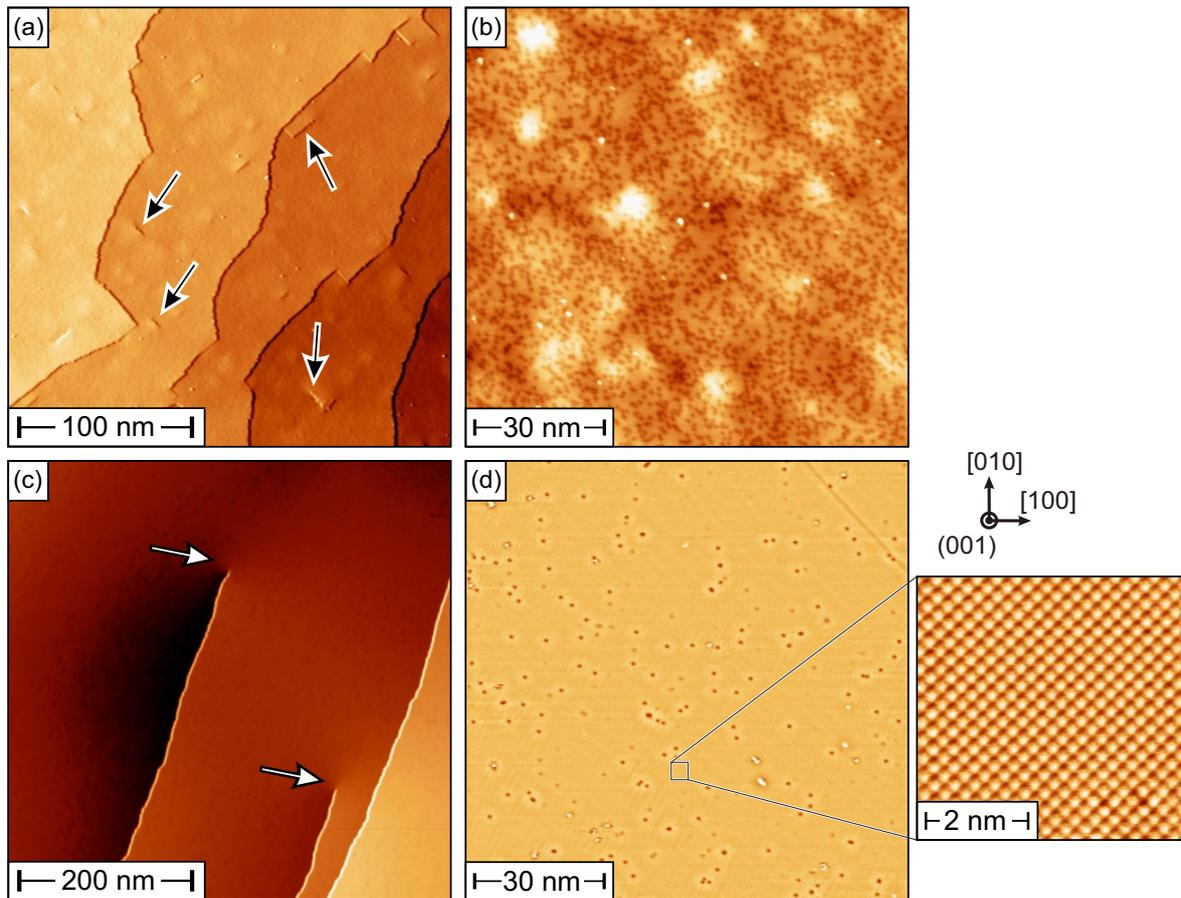


Abbildung 5.1: (a) Großflächige RTM-Aufnahme der Rh(001)-Oberfläche, die bei $T_S = 700$ K gesputtert und anschließend bei 960 K geheizt wurde. Es sind atomare Stufenkanten zu erkennen, die die hügeligen Terrassen voneinander separieren. Die schwarzen Pfeile deuten auf Versetzungslinien hin. Zoomt man auf eine der Terrassen (b) erkennt man zahlreiche Punktdefekte. Die Richtungen des Kristalls sind rechts eingezeichnet. (c) (500 × 500) nm Scan der sauberen Rh(001)-Oberfläche. Zwei der drei Stufenkanten enden in Schraubenversetzungen (weiße Pfeile). Scanparameter: $U = +1$ V, $I = 300$ pA. Auf einer sauberen Oberfläche (d) lässt sich auch atomare Auflösung erzielen (e). Scanparameter: $U = +2$ mV, $I = 10$ nA.

Terrassen, erhält man ein Bild, wie es in Abb. 5.1 (d) gezeigt ist. Die punktförmigen Defekte sind durch das Heizen unter Sauerstoffatmosphäre im Vergleich zu Abb. 5.1 (b) deutlich reduziert. Diese Beobachtung deutet stark darauf hin, dass die Defekte Kohlenstoffverunreinigungen sind, welche sich sehr gut durch Sauerstoff reduzieren lassen, wie dies schon bei anderen Oberflächen gezeigt wurde [82, 83]. Auf der sauberen Rh(001)-Oberfläche kann atomare Auflösung erzielt werden. Die dabei ermittelte Gitterkonstante von $a = (0,26 \pm 0,02)$ nm auf der (001) Ebene stimmt gut mit dem Literaturwert überein. Die unter Abb. 5.1 (c) gezeigte Oberfläche ist repräsentativ für die weiteren Messungen.

Fe wurde über einen kommerziellen Elektronenstrahlverdampfer von der Firma Omicron auf die Oberfläche aufgebracht. Das ultrareine Eisen (Reinheit 99,998%) wurde in Form eines

Stabes in den Verdampfer eingebaut. Das Material wurde während des Abkühlprozesses der Probe aufgedampft, wobei die Temperatur der Probe ungefähr bei 315 K lag. Diese Temperatur wurde verwendet, da höhere Temperaturen zu einer Legierungsbildung führten und tiefere Temperaturen das Filmwachstum gestört haben. Der Druck während dem Aufdampfen befindet sich unterhalb von $p = 3 \cdot 10^{-10}$ mbar. Die einzelnen Monolagen Fe enthalten bei angenommenem pseudomorphem Wachstum 13,82 Atome pro nm^2 und die Wachstumsrate wurde mittels RTM im Submonolagenbereich zu 1 AL (atomare Lage) pro Minute berechnet.

5.4 Wachstum dünner Eisenfilme auf Rh(001)

Im folgenden Abschnitt wird das pseudomorphe Wachstum diskutiert. Die erste atomare Lage (AL) Fe wächst pseudomorph und wurmartig. Ein Beispiel mit 0,5 AL Fe auf Rh(001) zeigt Abb. 5.2 (a). Erhöht man die Bedeckung auf 1,4 AL Fe erhält man wiederum Inseln der zweiten Lage, die auf der geschlossenen ersten Lage Fe wachsen. Wie auch die Inseln der ersten Monolage besitzen die Inseln der zweiten Lage Kanten, die größtenteils entlang äquivalenter $\langle 110 \rangle$ -Richtungen des Rh(001)-Kristalls ausgerichtet sind, wie in Abb. 5.2 (b) zu sehen ist. Dabei beträgt die Kantenlänge zwischen 5 und 10 nm. Auf den Inseln kann man periodische Streifen entlang der [100]- und [010]-Richtungen des Substrates erkennen, die im weiteren Verlauf dieser Arbeit diskutiert werden. Bevor die dritte Lage zu wachsen beginnt, schließt die zweite Lage Fe fast komplett. Die dritte Lage weist ebenfalls Streifen von größerer Periodizität auf, wobei die Orientierung der Streifen verglichen mit dem Substrat gleich bleibt. Die Kanten der Inseln zeigen nun eine klare Richtung entlang der $\langle 110 \rangle$ -Richtungen des Rh(001)-Kristalls. Bei einer Bedeckung von 2,3 AL Fe (s. Abb. 5.2 (c)) erkennt man auf manchen Inseln schon die vierte Lage. Dies bedeutet, dass das Wachstum nun nicht mehr Lage für Lage (Frank-van-der-Merwe Wachstum), sondern stattdessen mittels Inselwachstum (Volmer-Weber Wachstum) stattfindet, was im Gegensatz zu früheren Beobachtungen steht [25]. Erhöht man die Bedeckung auf 3,4 AL ist das Inselwachstum klar in Abb. 5.2 (d) zu erkennen, in welcher Inseln bis zur sechsten Lage identifiziert werden können. Die Identifizierung der einzelnen Lagen wurde sowohl über die Höhe und Anzahl der Stufenkanten als auch anhand der Streifen festgestellt, da die Periodizität für die zweite, dritte und vierte Lage unterschiedlich ist [85]. Auf die Periodizität der Streifen und deren mögliche Ursache wird nach der Charakterisierung der dünnen magnetischen Fe-Filme mittels SP-RTM eingegangen.

5.5 SP-RTM an dünnen Eisenfilmen auf Rh(001)

Im folgenden Abschnitt wird der Magnetismus der einzelnen Lagen Fe diskutiert. Dabei werden für die magnetischen Messungen mit Chrom beschichtete W-Spitzen verwendet, deren Magne-

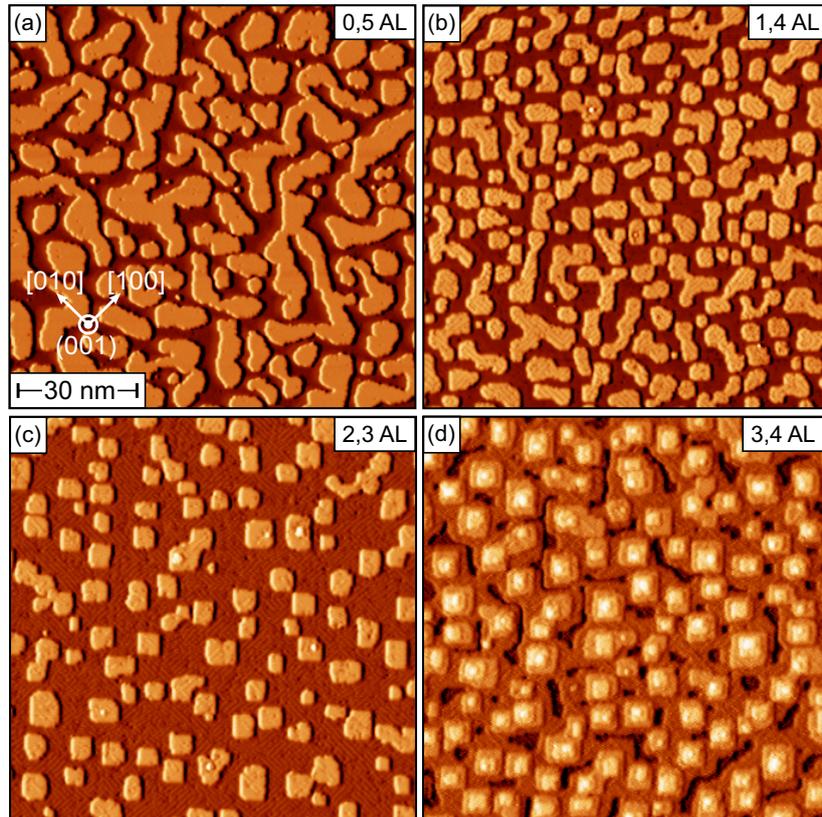


Abbildung 5.2: Wachstum Fe auf Rh(001). (a) 0,5 AL Fe auf Rh(001) zeigen pseudomorphes wurmartiges Inselwachstum ohne Vorzugsrichtung. (b) Bei 1,4 AL wächst die zweite Lage ebenfalls zunächst inselförmig, wobei die Kanten eine Vorzugsrichtung entlang der $\langle 110 \rangle$ -Richtungen besitzen. Auf der zweiten Lage erkennt man periodische Streifen. (c) Auf der geschlossenen zweiten Lage sind die Streifen gut zu sehen. Bei einer Bedeckung von 2,4 AL findet man auf einigen Inseln der dritten Lage schon die vierte Lage Fe, auf welchen ebenfalls Streifen vorhanden sind, die stellenweise hier auch zu erkennen sind [85]. (d) Die höchste hier abgebildete Bedeckung (3,4 AL) zeigt eindeutig den Übergang vom Lage-für-Lage Wachstum zu reinem Inselwachstum ab der dritten Lage Fe auf Rh(001). Scanparameter: $U = -1$ V, $I = 200$ pA.

tisierung im Regelfall senkrecht zur Ebene ist. Wenn andere Spitzenmaterialien aufgedampft wurden, wird dies im Text an geeigneter Stelle erwähnt.

Die erste Lage Fe wächst bei 315 K pseudomorph auf der sauberen Rh(001)-Oberfläche, wie in Abb. 5.3 (a) zu erkennen ist, welche mit einer Cr-beschichteten Spitze aufgenommen wurde, deren Magnetisierung senkrecht zur Probenoberfläche liegt. Mit Ausnahme von einigen sehr kleinen Löchern ist die erste Lage geschlossen und die zweite Lage Fe hat sich schon stellenweise in Form von kleinen Inseln gebildet. Bei dieser Bedeckung kommt es nicht zur Ausbildung einer dritten Lage Fe. In der gleichzeitig zu Abb. 5.3 (a) aufgenommenen dI/dU -Karte Abb. 5.3 (b) erkennt man auf der ML Fe in diesem Scanbereich keinen magnetischen Kontrast.

Im Gegensatz dazu erscheinen die Inseln der zweiten Lage Fe hell und dunkel, was für eine Magnetisierung der Inseln senkrecht zur Probenoberfläche spricht, da diese Messungen mit einer

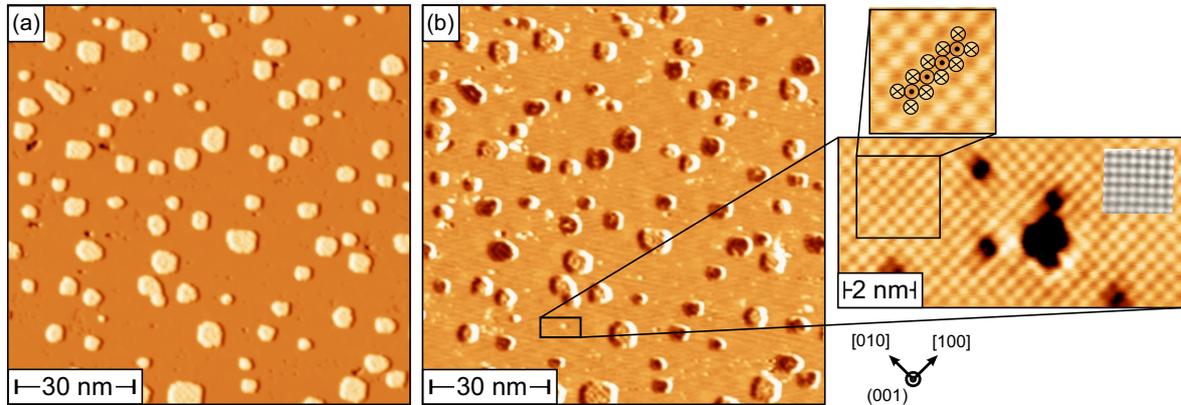


Abbildung 5.3: (a) Mit einer Cr-beschichteten W-Spitze, deren Magnetisierung senkrecht zur Probenoberfläche ist, wurde die Topographie und gleichzeitig eine dI/dU -Karte (b) bei 1.1 AL Fe auf Rh(001) aufgenommen. Der magnetische Kontrast auf den Inseln der zweiten Lage Fe ist nur in der dI/dU -Karte zu erkennen. Scanparameter: $U = -1$ V, $I = 200$ pA. In der Vergrößerung ist die antiferromagnetische Anordnung der Fe-Atome abgebildet. Zur Verdeutlichung ist rechts oben die atomare Struktur der ersten Lage Fe dargestellt und links oben das Schema der antiferromagnetischen Ordnung auf der ersten AL Fe in einem weiteren zoomten Bereich abgebildet. Scanparameter: $U = +3$ mV, $I = 80$ nA.

magnetischen Spitze durchgeführt wurden, die sensitiv zu einer senkrechten Magnetisierung ist. Somit sind die Inseln der zweiten Lage ferromagnetisch und die leichte Magnetisierungsachse zeigt senkrecht zur Oberfläche in die (001)-Richtung des Kristalls.

In der Vergrößerung der ersten AL Fe erkennt man die antiferromagnetische $c(2 \times 2)$ Struktur wieder, welche im Rahmen von DFT-Rechnungen vorhergesagt wurde [23, 24]. Allerdings ist die leichte Magnetisierung der antiferromagnetischen Anordnung senkrecht zur Oberfläche, was von den Theoretikern so nicht berechnet wurde. Die magnetische Struktur lässt sich dadurch identifizieren, dass die Einheitszelle der gemessenen Struktur im Vergleich zur atomaren Struktur verdoppelt und um 45° gedreht ist. Zum Vergleich bildet das Inset rechts oben die atomare Struktur der ersten AL Fe auf Rh(001) ab, die mit einer W-Spitze erhalten wurde. Aufgrund der Magnetisierung von Spitze und Probe senkrecht zur Probenoberfläche erschließt sich eine magnetische Anordnung der Spins, wie sie schematisch in einer weiteren Vergrößerung gezeigt ist.

Bei Messungen auf einer Probe mit 2,3 AL Fe (Abb. 5.4 (a)) sind die Inseln an manchen Stellen schon zusammengeschmolzen, aber bei den meisten Inseln verläuft die Inselkante entlang der $\langle 110 \rangle$ -Richtung des Rh(001)-Kristalls. Dieses Bild wurde mit einer Fe-beschichteten Spitze aufgenommen, deren Magnetisierung zu Beginn parallel zur Probenoberfläche ist, wie man aus dem magnetischen Kontrast der Domänenwände der dI/dU -Karte schließen kann (s. Abb. 5.4 (b)). Nach einer plötzlichen Änderung der Spitzenmagnetisierung werden im folgenden Scan sowohl Domänen als auch Domänenwände abgebildet, wie in Abb. 5.4 (c) gut zu sehen ist. Die Pfeile stellen eine Möglichkeit der Spinorientierung dar, allerdings wäre eine entgegengesetzte Spinorientierung ebenfalls denkbar, da die Richtung der Spitzenmagnetisierung

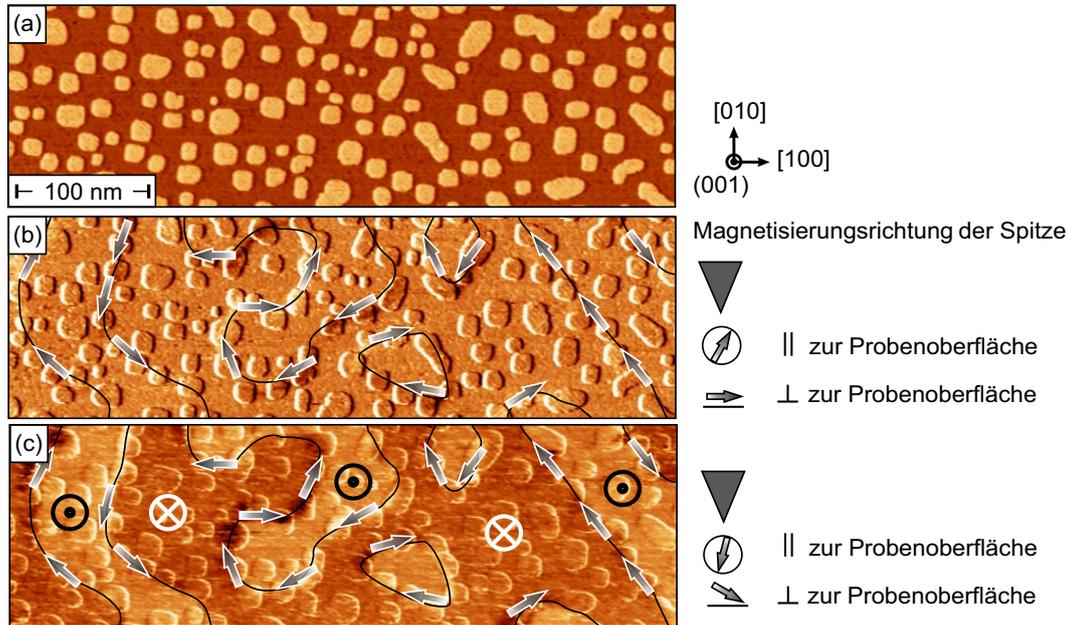


Abbildung 5.4: (a) Topographie bei 2,3 AL Fe auf Rh(001), die mit einer Fe-beschichteten W-Spitze aufgenommen wurde. (b) In der gleichzeitig zu (a) aufgenommenen dI/dU -Karte erkennt man die Domänenwände zwischen den einzelnen Domänen. Die Magnetisierung der Spitze, die rechts neben den dI/dU -Karten schematisch anhand von zweidimensionalen Modellen abgebildet ist, liegt komplett in der Ebene des Films. Die Pfeile zeigen die Magnetisierungsrichtung der Spitze parallel und senkrecht zur Probenoberfläche. Scanparameter: $U = -0,5 \text{ V}$, $I = 500 \text{ pA}$, $U_{\text{mod}} = 10 \text{ mV}$. (c) Nach einem Spitzenwechsel hat die Magnetisierung der Spitze gedreht und zusätzlich noch eine Komponente aus der Ebene heraus erhalten. Dadurch wird eine Abbildung der Domänen und der Domänenwände möglich. Auch hier zeigen die Pfeile die Magnetisierungsrichtung der Spitze parallel und senkrecht zur Probenoberfläche an. Die Magnetisierung senkrecht zur Ebene wird durch die Kreise abgebildet. Scanparameter: $U = -0,7 \text{ V}$, $I = 1 \text{ nA}$, $U_{\text{mod}} = 10 \text{ mV}$. Die Daten wurden mir mit freundlicher Genehmigung von J. Kügel zur Verfügung gestellt.

unbekannt ist. Der Kontrast der Domänenwände hat sich durch die Änderung der Spitze von Abb. 5.4 (b) nach (c) invertiert. So erscheinen nun die Kanten oben links immer dunkel und unten rechts hell. Diese immer gleich erscheinende Form der Domänenwände spricht für eine Spinstruktur, deren Rotation immer der gleichen Richtung folgt. Eine rotierende Spinstruktur ist beispielsweise von der Doppellage (DL) Fe auf W(110) oder der Monolage Mn auf W(110) bekannt, welche durch die Dzyaloshinskii-Moriya Wechselwirkung verursacht wird, die wiederum auf der Spin-Bahn-Wechselwirkung basiert [86–88]. Es wären sowohl Bloch- als auch Néelwände konsistent mit dem erhaltenen Bild der Domänen und Domänenwände, wobei Néelwände durch die Dzyaloshinskii-Moriya Wechselwirkung favorisiert werden. Die DL Fe auf Rh(001) kann somit auch als Skyrmion mit sehr langer Wellenlänge betrachtet werden [89–91]. Zur Verifikation der Domänenwand müssten Messungen im Magnetfeld durchgeführt werden, was mit dem momentanen Aufbau des RTMs nicht möglich ist [87].

Abbildung 5.5 zeigt eine Übersicht der magnetischen Domänenstruktur in Abhängigkeit von

der Dicke des Fe-Films. Die linke Spalte stellt dabei immer die großflächige Topographie dar und die rechte Spalte zeigt die gleichzeitig aufgenommenen dI/dU -Karte mit der magnetischen Domänenstruktur. Zwischen der Topographie und der dI/dU -Karte wird die Topographie in einer Vergrößerung dargestellt, um das Wachstum zu verdeutlichen. Alle in dieser Abbildung gezeigten Messungen wurden mit einer Cr-beschichteten W-Spitze aufgenommen, deren leichte Magnetisierungsrichtung senkrecht zur Probenoberfläche zeigt.

Bei einer Bedeckung von 1,7 AL Fe auf Rh(001) wachsen die Inseln der zweiten Lage größtenteils zusammen und bilden eine wurmartige Struktur (vgl. Abb. 5.5 (a) und Vergrößerung). Auf einigen sehr wenigen Inseln der zweiten Lage kann man schon die Keimbildung der dritten Lage Fe erkennen. Der Zusammenschluss der Inseln hat einen starken Einfluss auf die magnetische Struktur der zweiten Lage Fe. Bei Filmen mit vielen Inseln werden Domänenwände an schmalen Stellen eingebaut und kosten demnach wenig Energie. Koaleszieren die Inseln, werden die potentiellen Domänenwände länger und kosten mehr Energie. Demnach ist es energetisch günstiger die Domänenwände an schmalen Stellen einzubauen, die Anzahl der Domänenwände zu reduzieren und die einzelnen Domänen zu vergrößern, wie dies in Abb. 5.3 (b) zu sehen ist [92–94]. Die Breite der Domänen hängt vom Zusammenschluss der Inseln ab und umfasst einen Bereich von einigen Nanometern bis zu einigen zehn Nanometern.

Abbildung 5.5 (c) zeigt eine fast komplett geschlossene zweite AL Fe und einige Inseln der dritten Lage, deren Kantenlänge weniger als 10 nm beträgt und entlang der $\langle 110 \rangle$ -Richtungen des Rh(001)-Kristalls verlaufen. Die fast komplett geschlossene zweite Lage verursacht eine weitere Reduktion der Domänenwände und dementsprechend Vergrößerung der Domänen (Abb. 5.5 (d)). Es sind Domänen von mehreren 100 Nanometern Breite zu erkennen. Oft verlaufen die Domänenwände entlang der Stufenkantenbündel des Rh(001)-Kristalls (mittig in Abb. 5.5 (d)), wobei dies keine Bedingung darstellt, da sich der Verlauf der Domänenwände auch über die Terrassen erstreckt. Die Inseln der dritten Lage zeigen wenig Einfluss auf die Domänenwände, wobei die Breite einer solchen Domänenwand auf etwas mehr als 4 nm abgeschätzt werden kann.

Erhöht man die Bedeckung auf 2,6 AL erkennt man im Wachstum eine deutliche Veränderung, da das Fe nun nicht mehr Lage für Lage wächst, sondern Inselwachstum bevorzugt wird, wie dies in Abb. 5.5 (e) und in der Vergrößerung deutlich zu sehen ist. Wiederum wird die Domänenstruktur durch das Wachstum beeinflusst, da sich durch das Inselwachstum die dipolare Energie der Oberfläche erhöht, welche durch den vermehrten Einbau von Domänenwänden wieder verringert wird [95]. Die Breite der Domänen beträgt nun nur noch einige zehn Nanometer (vgl. Abb. 5.5 (f)). Auch bei dieser Bedeckung scheinen die Inseln keinen Einfluss auf die Domänen und Domänenwände zu haben, die sehr unregelmäßig geformt sind. Eine ähnliche Domänenstruktur wurde auf dem Probensystem Fe/Ni/Cu(001) schon beobachtet [96].

Abbildung 5.5 (g) zeigt die höchste gemessene Bedeckung mit 3,4 AL. In der Vergrößerung sieht man, dass die dritte Lage noch einige Lücken zeigt und die Inseln der vierten Lage immer noch den $\langle 110 \rangle$ -Richtungen des Rh(001)-Kristalls folgen. Zudem ist die fünfte Lage und stellenweise

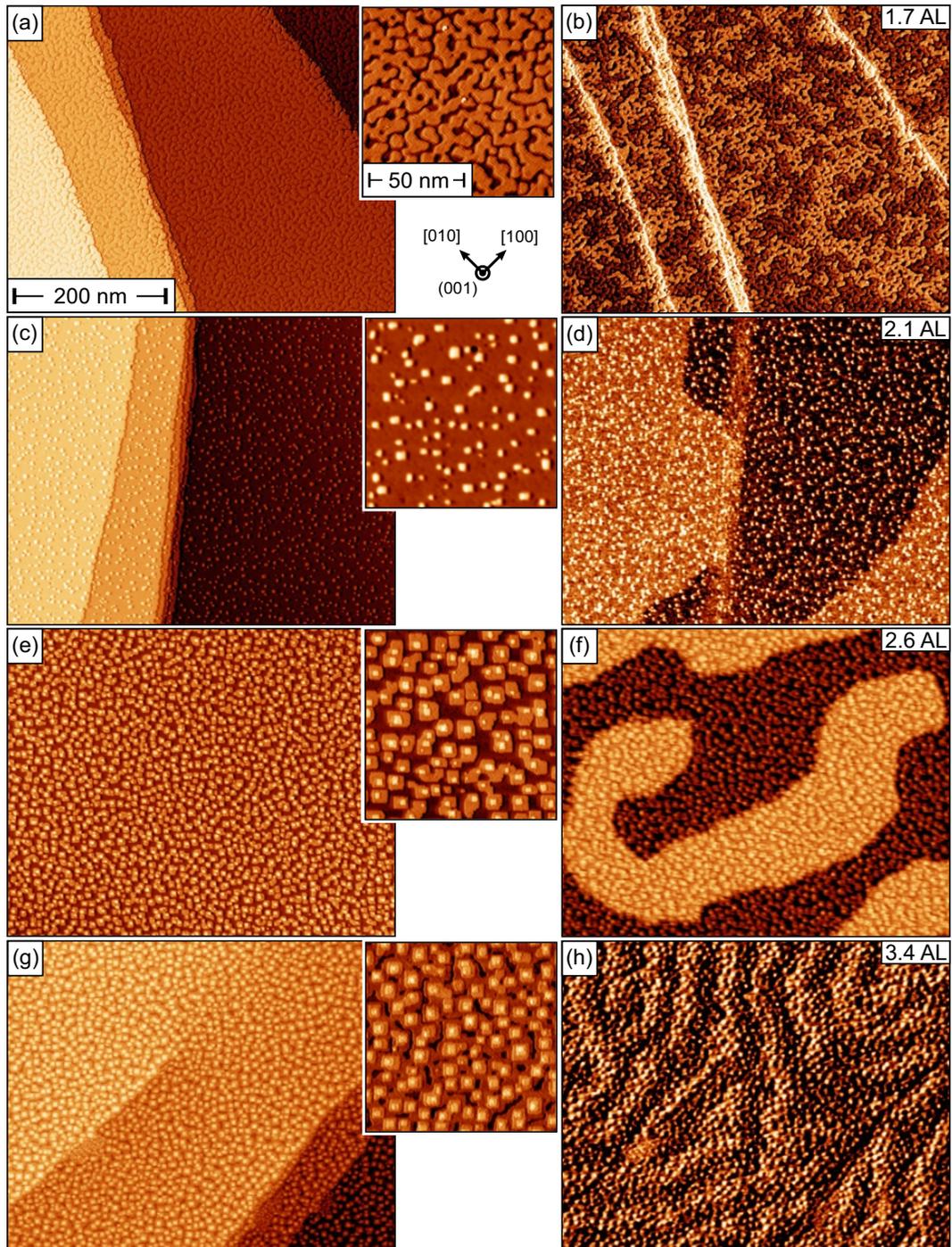


Abbildung 5.5: Von oben nach unten steigt die Fe-Bedeckung der Rh(001)-Oberfläche. Die Aufnahmen wurden mit einer Cr-beschichteten Spitze durchgeführt. In der linken Spalte ist die Topographie, in der Mitte eine Vergrößerung und rechts die zugehörige dI/dU -Karte mit der Domänenstruktur der SP-RTM Messung abgebildet: (a) 1,7 AL (Scanparameter: $U = -0,6 \text{ V}$, $I = 1,5 \text{ nA}$), (c) 2,1 AL (Scanparameter: $U = -0,7 \text{ V}$, $I = 3 \text{ nA}$), (e) 2,6 AL (Scanparameter: $U = -0,7 \text{ V}$, $I = 1,5 \text{ nA}$), (g) 3,4 AL (Scanparameter: $U = -0,5 \text{ V}$, $I = 2,5 \text{ nA}$).

auch die sechste Lage Fe zu erkennen. Wiederum ändert sich die magnetische Struktur mit zunehmender Schichtdicke, indem die Domänen noch kleiner werden als es bei 2,6 AL Lagen schon beobachtet wurde. Bei dieser Bedeckung ist schon eine deutliche Komponente der Magnetisierung parallel zur Oberfläche zu sehen, da der Kontrast bei weitem nicht so stark ist wie bei den vorherigen Aufnahmen. Diese Beobachtungen passen gut zu den MOKE Ergebnissen von Takada *et al.* [22].

Die Umkehr der Magnetisierung resultiert aus dem Zusammenspiel der MKA, der dipolaren Energie oder Streufeldenergie, der Domänenwandenergie, sowie der magnetischen Formanisotropie. Insbesondere in dünnen Filmen bedingt die MKA häufig eine leichte Magnetisierungsachse senkrecht zur Probenoberfläche im Gegensatz zur magnetischen Formanisotropie, deren leichte Magnetisierungsachse bevorzugt parallel zur Probenoberfläche zeigt. Mit steigender Fe-Bedeckung steigt der Energiebeitrag der magnetischen Formanisotropie, wodurch der Einbau von Domänenwänden begünstigt wird, da dies zwar Energie kostet, aber dadurch die leichte Magnetisierungsachse im Sinne der MKA noch senkrecht zur Probenoberfläche gehalten werden kann. Ab einer kritischen Dicke t_c ist der Einfluss der magnetischen Formanisotropie zu groß und die leichte Magnetisierungsachse kippt von senkrecht zu parallel zur Probenoberfläche. Die kritische Dicke t_c liegt bei Fe/Rh(001) zwischen 3,5 und 4,0 AL, wie MOKE Messungen von Takada *et al.* zeigen [22]. Die in dieser Arbeit vorgestellten Daten weisen auch in diese Richtung.

Eine ähnliche Situation wurde auch an Fe Filmen auf 5 AL Ni/Cu(001) beobachtet [97, 98]. Bei diesem Probensystem wurden auch mit steigender Filmdicke vermehrt Domänenwände eingebaut bis dies nicht weiter zu einer Energieminimierung führt und stattdessen die leichte Magnetisierungsachse ebenfalls um 90° dreht. Die kleinste Domänengröße vor der Änderung der leichten Magnetisierungsachse bei Fe/Ni/Cu(001) beträgt $0,2 \mu\text{m}$ bis $0,3 \mu\text{m}$. Für das System Fe/Rh(001) zeigen unsere Messungen, dass die Domänen vor der Änderung der leichten Magnetisierungsachse zwischen 20 nm und 30 nm groß sind. Der Unterschied zwischen diesen beiden Systemen beträgt somit eine Größenordnung.

Eine theoretische Erklärung der Magnetisierungsumkehr lieferten Y. Yafet und E. M. Gyorgy 1988, welche Wu *et al.* auf ihr Probensystem angewandt haben [98, 99]. Für die minimale Domänengröße L_{\min} bei der Magnetisierungsumkehr erhalten sie $L_{\min} = 0,33 \mu\text{m} = \frac{2,27 J \pi^2}{\Omega_L}$, in welcher die Austauschkopplung der nächsten Nachbarn J und die langreichweitige Ordnung der Dipolarwechselwirkung Ω_L eine wichtige Rolle spielt [98]. Für beide Systeme (Fe/Ni/Cu(001) und Fe/Rh(001)) würde man einen ähnlichen Wert für die Austauschkopplung der nächsten Nachbarn erwarten und somit auch eine ähnliche Domänengröße für die Magnetisierungsumkehr. Nachdem die Domänengröße bei Fe/Rh(001) eine Größenordnung kleiner ist, könnte die Austauschkopplung ebenfalls eine Größenordnung kleiner sein. Eine Erklärung kann auch die tetragonale Verzerrung der Fe-Filme auf Rh(001) liefern [23], da es zu einem Wettbewerb zwischen der fcc-Struktur (γ -Fe, antiferromagnetisch) der ersten Lage und der bcc-Struktur (α -Fe,

ferromagnetisch) der zweiten Lage kommt. Durch die beiden unterschiedlichen Wachstumsmodi und der Wechselwirkung mit dem Substrat kann die geringe effektive Austauschwechselwirkung der nächsten Nachbarn J erklärt werden und auch die relativ niedrige Curietemperatur von der zweiten Lage Fe auf Rh(001).

5.6 Temperaturabhängigkeit des Magnetismus

Die Curietemperatur hängt von der Filmdicke ab und wurde für 2 AL Fe auf ca. 80 K geschätzt [25]. Zur Bestimmung der Curietemperatur wurden Messungen in Zusammenarbeit mit Matthias Vogt und Tobias Mauerer an einem VT-RTM (RTM mit variabler Temperatur) durchgeführt. Dabei wurde ein Fe-Film mit einer Dicke von ca. 2,3 AL präpariert (s. Abb. 5.6 (a)) und die Oberfläche mit einer magnetischen Spitze untersucht. Während der Aufnahme der temperaturabhängigen Daten wurde der Film nicht neu präpariert. Abbildung 5.6 zeigt in der linken Spalte die Topographie, in der mittleren die dI/dU -Karte, die das magnetische Signal abbildet und in der rechten Spalte wurde die Ableitung der Topographie von der dI/dU -Karte subtrahiert, um Spitzeneffekte zu vermindern. Die Spitze wurde vor den Messungen mit Fe beschichtet. In Abb. 5.6 (b, c) erkennt man deutlich den magnetischen Kontrast, der mit den Ergebnissen für eine ähnliche Filmdicke bei einer Probertemperatur von 5 K vergleichbar ist. Erhöht man die Probertemperatur auf 50 K und 70 K (Abb. 5.6 (d, g)), so kann man die magnetischen Domänen erkennen (Abb. 5.6 (e, f, h, i)), aber die Struktur der Domänen wird unregelmäßiger und der Kontrast mit steigender Temperatur schwächer. Bei 90 K (Abb. 5.6 (j)) ist der magnetische Kontrast kaum noch vorhanden (Abb. 5.6 (k, l)). Die Ergebnisse dieser Messreihe passen tendenziell zu der Temperaturabhängigkeit, wie sie von Hayashi *et al.* gemessen wurde [25]. Eine weitere Diskussion der temperaturabhängigen magnetischen Daten in Zusammenhang mit der Ausbildung einer elektronischen Modulation folgt in den nächsten Kapiteln.

5.7 Ausbildung einer periodischen Modulation

Bisher wurde nur der Magnetismus der dünnen Eisenfilme auf Rh(001) betrachtet. Allerdings kommt es ab der zweiten atomaren Lage zur Ausbildung einer periodischen Modulation, die im folgenden Abschnitt diskutiert wird. Dabei werde ich zu Beginn die experimentellen Beobachtungen vorstellen und anschließend die Daten im Rahmen verschiedener Modelle vergleichen.

Die beobachteten Streifen der zweiten Lage verlaufen entlang der [100]- und [010]-Richtungen des Rh(001)-Substrates, wie dies in Abb. 5.7 (a) zu erkennen ist. Die Periodizität der Streifen wird über mehrere gemittelte Linienprofile entlang der [010]-Richtung zu $(1, 13 \pm 0, 12)$ nm

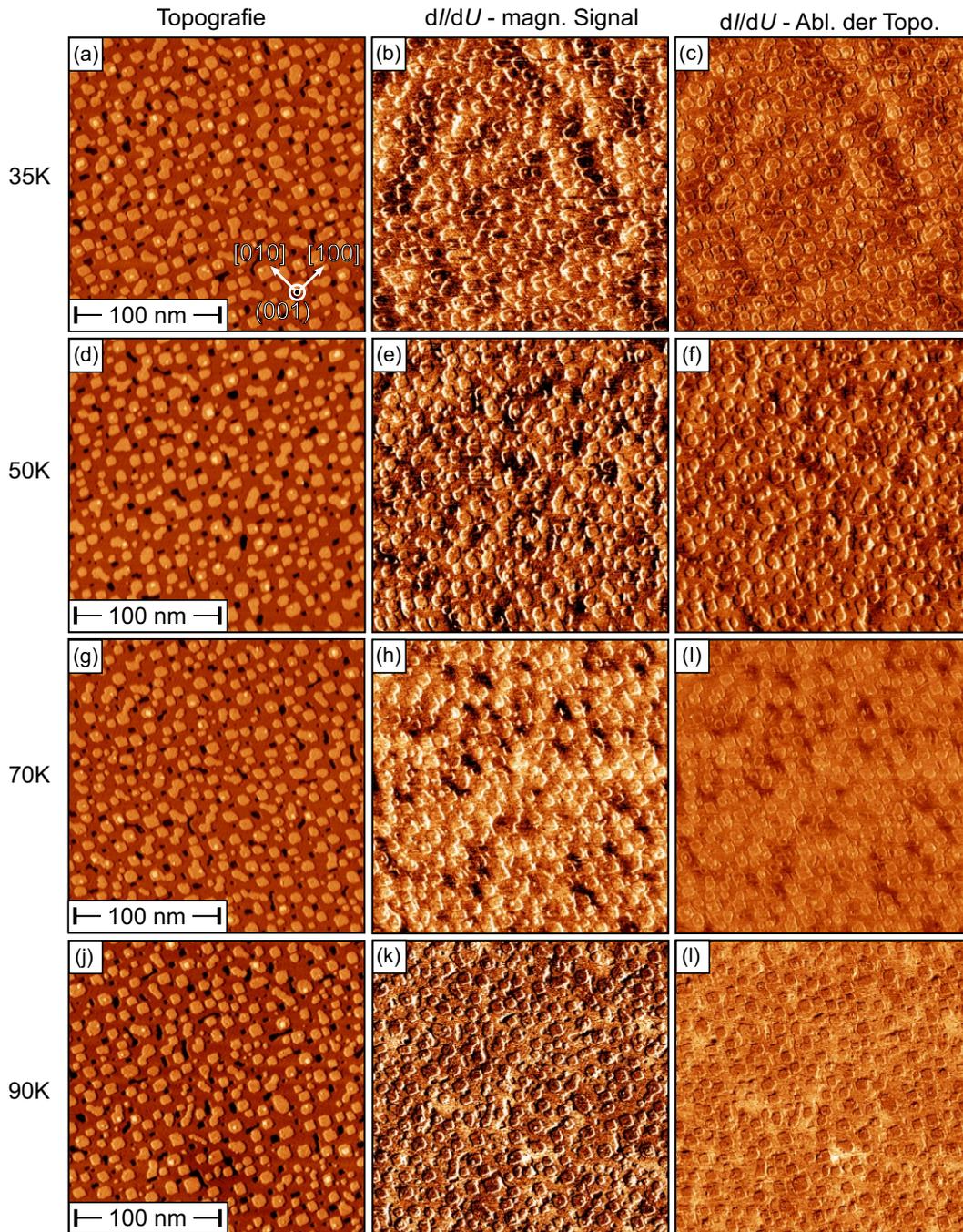


Abbildung 5.6: Der Magnetismus in Abhängigkeit der Proben­temperatur bei einer Fe-Bedeckung von 2,3 AL. Von oben nach unten wurde die Proben­temperatur von 35 K über 50 K und 70 K auf 90 K erhöht. In der linken Spalte ist die Topographie (a, d, g, j), in der mittleren die dI/dU -Karte (b, e, h, k), die das magnetische Signal abbildet, gezeigt und in der rechten Spalte ist die dI/dU -Karte mit der Ableitung der Topographie subtrahiert (c, f, i, l), um die Spitzeneffekte in den dI/dU -Karten zu vermindern. Scanparameter: $U = -0,8$ V, $I = 3$ nA, $U_{\text{mod}} = 10$ mV.

(Abb. 5.7 (b)) und entlang der [100]-Richtung zu $(1, 12 \pm 0, 12)$ nm (Abb. 5.7 (c)) bestimmt. Eine genauere Methode bildet die Analyse der Periodizitäten der Streifen über die FFT (Abb. 5.7 (d)) der Topographie (Abb. 5.7 (a)). Bei der FFT wird über das gesamte Bild integriert und somit über alle Streifen gemittelt, wohingegen bei den Linienprofilen nur ein Ausschnitt betrachtet wird. Für die FFT ergeben sich $(1, 10 \pm 0, 10)$ nm für die Streifen entlang der [100]-Richtung und $(1, 13 \pm 0, 13)$ nm entlang der [010]-Richtung. Die auf diese zwei Arten erhaltenen Werte stimmen sehr gut miteinander überein. Thermischer Drift spielt bei diesem Scanwinkel eine kleine Rolle, da die Streifen um $\pm 45^\circ$ gegen die langsame bzw. schnelle Scanrichtung gedreht sind. Im Rahmen ihrer Fehler passen diese Werte auch gut mit den Daten aus der Dissertation von Tobias Mauerer und der gemeinsamen Veröffentlichung (P.-J. Hsu *et al.*) zusammen [64, 85].

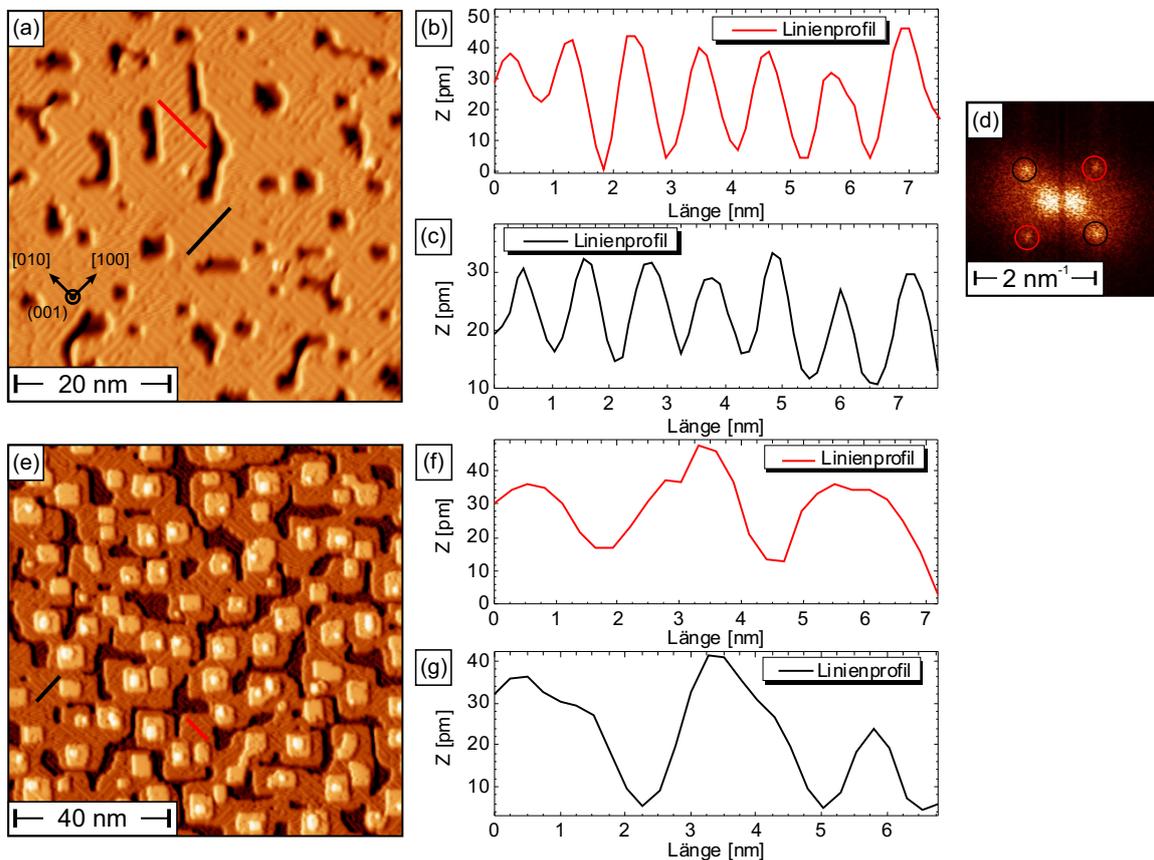


Abbildung 5.7: (a) Die Topographie der Streifen gemessen auf der zweiten Lage Fe auf Rh(001). Scanparameter: $U = -0,2$ V, $I = 1$ nA. Über die gemittelten Linienprofile entlang der [010]-Richtung (rote Linie) (b) und entlang der [100]-Richtung (schwarze Linie) (c) des Rh(001)-Substrates konnte die Periodizität zu $(1, 13 \pm 0, 08)$ nm und $(1, 12 \pm 0, 12)$ nm bestimmt werden. (d) Aus der FFT ergeben sich für die [010]-Richtung (rote Kreise) und die [100]-Richtung (schwarze Kreise) eine Periodizität von $(1, 13 \pm 0, 13)$ nm und $(1, 10 \pm 0, 10)$ nm. (e) Die Streifen der dritten Lage Fe auf Rh(001). Scanparameter: $U = -0,5$ V, $I = 2,5$ nA. Aus den gemittelten Linienprofilen entlang der [010]-Richtung (rote Linie) (f) und der [100]-Richtung (schwarze Linie) (g) erhält man eine Periodizität der Streifen von $(2, 67 \pm 0, 84)$ nm und $(2, 52 \pm 0, 68)$ nm.

Die Periodizität der Streifen steigt mit jeder Lage Fe weiter an. Für die dritte Lage Fe auf Rh(001) (Abb. 5.7 (e)) konnte ich aus gemittelten Linienprofilen eine Periodizität von $(2, 31 \pm 0, 21)$ nm entlang der [010]-Richtung (Abb. 5.7 (f)) und von $(2, 62 \pm 0, 17)$ nm entlang der [100]-Richtung (Abb. 5.7 (g)) berechnen. Auch diese Werte stimmen mit den Werten von T. Mauerer überein [85]. Eine Analyse über die FFT war an diesem Datensatz nicht möglich, da die Oberfläche sehr viele Stufenkanten aufweist, die das Signal der Streifen überdecken.

Eine weitere wichtige Erkenntnis bildet die Spannungsabhängigkeit der Streifen, die ausführlich in der Dissertation von T. Mauerer diskutiert wird [85]. Ein kleiner topographischer Auszug stellt Abb. 5.8 dar. Dabei sind die Streifen bei $U = -0,2$ V deutlich (Abb. 5.8 (a)), bei $U = -1,0$ V schwach (Abb. 5.8 (b)) und bei $U = +1,0$ V (Abb. 5.8 (c)) gar nicht ausgeprägt. Dieses Verhalten deutet stark auf einen elektronischen Ursprung der Streifen hin, da die Streifen im Rahmen des lateralen Auflösungsvermögens von ca. 50 pm nicht durch eine Verschiebung des atomaren Gitters an der Oberfläche verursacht werden, wie J. Kügel zeigen konnte (s. Abb. 5.8 (d)). Während der Aufnahme des atomar aufgelösten Bildes änderte sich spontan die Richtung der Streifen um 90° ohne dabei das Gitter stark zu beeinflussen. Während des Schaltvorgangs kommt es zu keiner Veränderung der Gitterkonstanten im Bereich von $>10\%$. Eine Verschiebung des atomaren Gitters findet beispielsweise bei der Au(111)-Oberfläche statt [100].

Um dem Ursprung der Streifen auf den Grund zu gehen, werden Topographie, dI/dU -Karten und Spektroskopiekurven miteinander verglichen. Die Topographie ist in Abb. 5.9 (a) dargestellt und die dazugehörigen dI/dU -Karten werden in den Abb. 5.9 (b-e) gezeigt. Bei positiven Spannungen erkennt man keine Streifen, wie dies schon anhand von Abb. 5.8 erläutert wurde. Dagegen sieht man die Streifen bei negativen Spannungen deutlich. In Abb. 5.9 (d) ist mit einem schwarzen gestrichelten Rechteck der Bereich für die Linien-Spektroskopie markiert. Bei einer Linien-Spektroskopie werden entlang der langen Kante des Rechtecks in definierten Abständen Spektroskopiekurven aufgenommen. Die in aufsteigender Nummerierung gezeigten Spektren

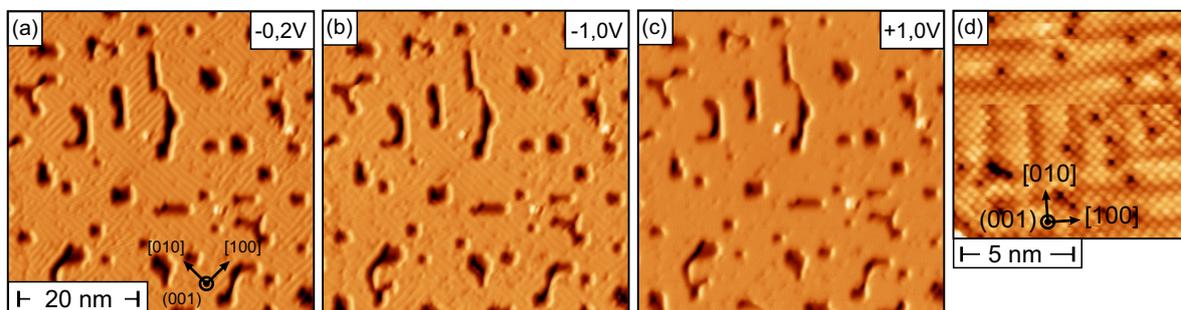


Abbildung 5.8: (a) Die Topographie bei 2 AL Fe auf Rh(001) lässt die Streifen deutlich bei einer Spannung von $U = -0,2$ V erkennen. (b) Bei $U = -1,0$ V erscheinen die Streifen schwächer als bei einer Spannung von $U = -0,2$ V. (c) Die Streifen sind bei einer positiven Spannung von $U = +1,0$ V nicht zu sehen. (d) Atomare Auflösung der Streifen, wobei die Richtung der Streifen spontan während des Scannens wechselt. Scanparameter: $U = -0,01$ V, $I = 20$ nA. Die Daten zur atomaren Auflösung wurden mir mit freundlicher Genehmigung von J. Kügel zur Verfügung gestellt.

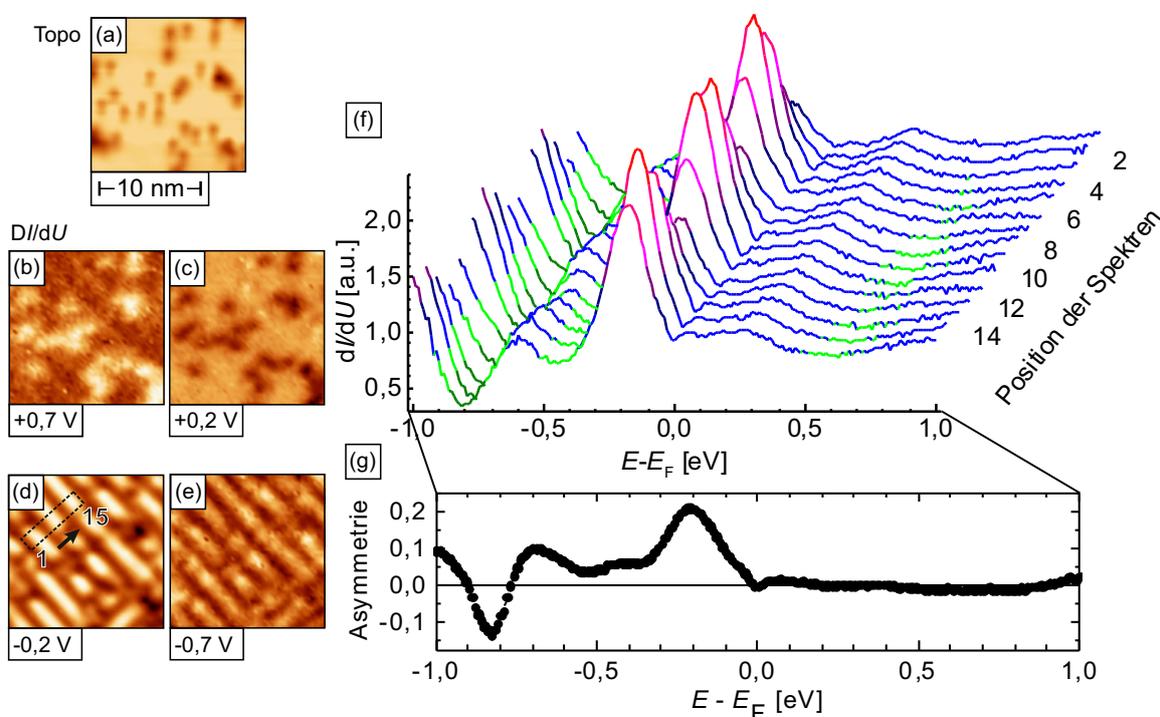


Abbildung 5.9: (a) Der Scanbereich zeigt die Topographie von 2 AL Fe auf Rh(001), welche zur weiteren Analyse herangezogen wurde. (b-e) dI/dU -Karten bei positiven Spannungen ($U = (+0,2 / +0,7)$ V) zeigen keine Streifen. Bei negativen Spannungen ($U = (-0,2 / -0,7)$ V) erkennt man deutlich die Streifen. Das schwarze gestrichelte Rechteck markiert die Position der in (f) gezeigten Spektren von 1 bis 15. (g) Die spannungsabhängige Asymmetrie der Streifen zeigt für positive Spannungen keine Veränderungen, aber bei negativen Spannungen eine deutliche Variationen bei den Peak- und Dippositionen ($U = (-0,2 / -0,6 / -0,8)$ V) der RTS. Die Daten wurden mir mit freundlicher Genehmigung von J. Kügel zur Verfügung gestellt.

–entsprechend ihrer Position im markiertem Bereich– weisen einen markanten Peak bei $-0,2$ V, einen weiteren deutlich kleineren bei $-0,6$ V und eine Senke bei $-0,8$ V auf (Abb. 5.9 (d)). Die Intensität des Peaks bei $-0,2$ V variiert je nach Position im schwarzen Rechteck. Auf den hellen Streifen besitzt der Peak eine deutlich höhere Intensität als auf den dunklen Streifen. Die Variation der Intensität der RTS lässt sich über die energie(spannungs-)abhängige Asymmetrie noch deutlicher berechnen und abbilden. Die spannungsabhängige Asymmetrie erhält man durch Subtraktion des Spektrums auf einem hellen Streifen von einem Spektrum des dunklen Streifens bei einer bestimmten Spannung bzw. Energie geteilt durch deren Summe, was durch folgende Formel ausgedrückt wird:

$$A = \frac{dI/dU(\text{dunkler Streifen}) - dI/dU(\text{heller Streifen})}{dI/dU(\text{dunkler Streifen}) + dI/dU(\text{heller Streifen})} \quad (5.1)$$

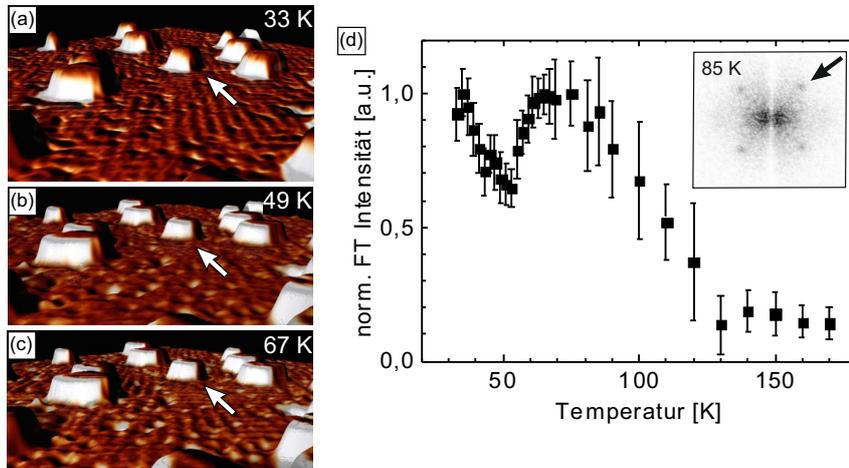


Abbildung 5.10: (a-c) Gerenderte 3D-RTM-Bilder, die die Topographie von 2 AL Fe auf Rh(001) bei verschiedenen Temperaturen zeigen. (d) Die Grafik zeigt die normierten Intensitäten der FT der Periodizität der Streifen für die zweite AL Fe auf Rh(001). Ein Beispiel einer FT zeigt das Inset. Mit einem Linienprofil durch das Zentrum der FT und durch das Zentrum der Kreise erhält man die Intensität der FT abhängig vom Ort, die im Anschluss normiert wurde. Die Daten wurden mir mit freundlicher Genehmigung von T. Mauerer zur Verfügung gestellt.

Das Ergebnis ist in Abb. 5.9 (g) gezeigt. Bei positiven Spannungen bzw. Energien variiert die Asymmetrie nicht im Gegensatz zu negativen Spannungen. Hier gibt es deutliche Asymmetrien bei den Energien $E - E_F = (0, 2/ - 0, 6/ - 0, 8)$ eV. Die größte Asymmetrie ist demnach bei $-0, 2$ eV zu erkennen, die mit der maximalen Intensität der Streifen zusammenfällt.

Des Weiteren wurde die Temperaturabhängigkeit der Streifen untersucht, die in Abb. 5.10 gezeigt wird. Hierzu wurde über einen Temperaturbereich von 33 K bis 170 K mit Schrittweiten von 5 K bis 10 K die Topographie von 2 AL Fe auf Rh(001) aufgenommen, wobei für die drei verschiedenen Temperaturen 33 K, 49 K und 67 K die gerenderten 3D-RTM-Bilder in Abb. 5.10 (a-c) beispielhaft gezeigt sind. Alle drei Bilder sind am gleichen Ort der Probe aufgenommen, wie man an der Insel in der Mitte der Bilder (weißer Pfeil) gut erkennen kann. Die Streifen der zweiten Lage Fe sind bei 33 K und 67 K gut ausgeprägt, während sie bei 49 K nur schwach ausgebildet sind. Eine Erklärung hierfür kommt im weiteren Verlauf dieser Arbeit. Analysiert man die Topographie für alle aufgenommenen Temperaturen und führt eine Fouriertransformation durch, kann die Ausprägung der Streifen anhand der Intensität der Spots in der Fouriertransformation ermittelt werden. Beispielhaft ist eine Fouriertransformierte bei 85 K im Inset von Abb. 5.10 (d) gezeigt, wobei ein Spot der Streifen mit einem schwarzen Pfeil markiert ist. Zur Ermittlung der Intensität der Streifen wurde ein Linienprofil durch die Mitte der Fouriertransformierten und der Spots der Streifen gelegt und die maximale Intensität auf 1 normiert. Die Normierung wurde entsprechend für alle weiteren aufgenommenen Temperaturen durchgeführt. Trägt man nun die normierte Intensität über die Temperatur auf, erhält man einen Graphen, wie er in Abb. 5.10 (d) gezeigt ist. Betrachtet man die Kurve genauer, so

geht die Intensität der Streifen von 33 K auf 55 K zurück und steigt danach wieder auf ein Maximum bei 75 K an. Beim weiteren Erhöhen der Proben temperatur geht die Intensität der Streifen wieder zurück bis sie bei 130 K unterhalb des Signal-zu-Rausch-Verhältnisses fällt. Würde die Intensität exponentiell von 33 K bis 130 K sinken, wäre dies ein deutliches Indiz für eine Ausbildung einer Ladungsdichtewelle. Allerdings kommt es zu einem Einbruch und erneuten Anstieg der Intensität zwischen 50 K und 80 K, wobei bei 80 K der Ansatzpunkt des Ferromagnetismus auf der zweiten Lage Fe ist. Demnach wäre es möglich, dass die periodische Modulation mit dem Ferromagnetismus gekoppelt ist, was im folgenden Kapitel weiter diskutiert wird.

5.8 Diskussion der periodischen Modulation und des Magnetismus

Zu Beginn werden die gemessenen Daten analysiert, welche einen Zusammenhang von periodischer Modulation und Magnetismus nahelegen. Im Anschluss daran werden theoretische Berechnungen mittels der Ginzburg-Landau-Theorie vorgestellt, die von F. P. Toldin und F. F. Assaad durchgeführt wurden.

Abbildung 5.11 zeigt das gleichzeitige Auftreten von Magnetismus und periodisch elektronischer Modulation, dabei ist in (a) die Topographie und in (b) die gleichzeitig aufgenommene differentielle Leitfähigkeit dargestellt. Innerhalb des blauen Rechtecks der Topographie wurden mehrere Linienprofile aufgenommen, welche gemittelt wurden und deren Ergebnis in Abb. 5.11 (c) im unteren Bereich abgebildet ist. Das Rechteck wurde so gewählt, dass die Streifen über eine magnetische Domänenwand hinaus gehen. Analog zur Topographie wurde im gleichen Bereich der dI/dU -Karte (schwarzes Rechteck) Linienprofile er- und gemittelt und das resultierende Linienprofil ist ebenfalls in Abb. 5.11 (c) im oberen Bereich gezeigt.

Dieses gemittelte Linienprofil kann man anfitten (rote Kurve) und erhält die Breite der Domänenwand, die sich über die Ableitung des Fits zu $w = (4,45 \pm 0,35)$ nm berechnet. Die eingezeichneten Hilfslinien zeigen keine Verschiebung der Peakpositionen der Korrugation in der Topographie gegenüber den Peakpositionen in der dI/dU -Karte vor und hinter der Domänenwand. Zudem verlaufen die Streifen einmal parallel zur Domänenwand (schwarzes Rechteck) und einmal senkrecht zur Domänenwand (weißes Rechteck). Ebenso lassen sich in der dI/dU -Karte an der magnetischen Domänengrenze auch Grenzen der Streifendomänen erkennen (weißer Pfeil). Das Vorkommen der Streifen senkrecht und parallel über die Domänengrenze hinweg, sowie das Zusammenfallen der Domänengrenzen spricht gegen eine Kopplung von Magnetismus und Streifen bzw. gegen Streifen, die magnetischen Ursprung besitzen.

Die Temperaturabhängigkeit der Streifen mit einem ausgeprägten lokalen Minimum bei ca. 55 K legt die Vermutung nahe, dass der Magnetismus und die periodische Modulation konkurrierende

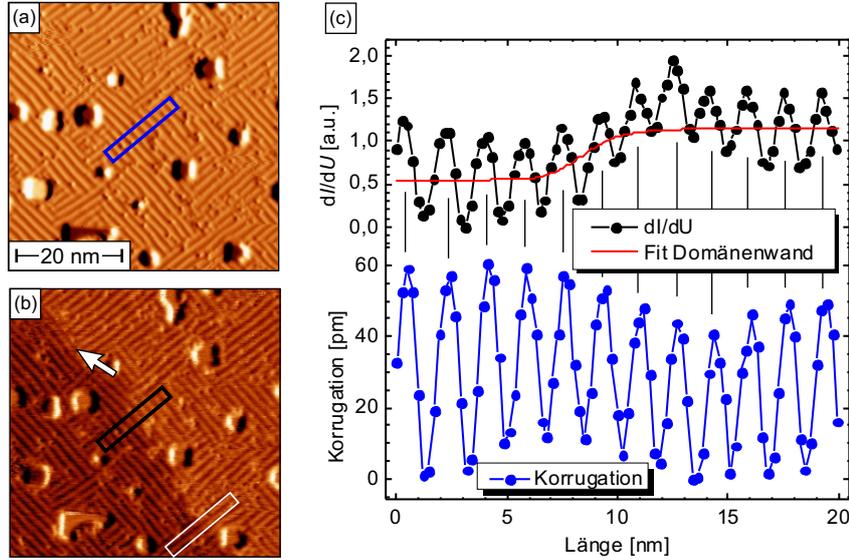


Abbildung 5.11: (a) Die Topographie und die gleichzeitig aufgenommene dI/dU -Karte (b) von 2 AL Fe auf Rh(001) zeigen sowohl die Streifen entlang der [100]- und [010]-Richtung des Substrates als auch die ferromagnetischen Domänen. Innerhalb des blauen und schwarzen Rechtecks wurden Linienprofile ermittelt und deren gemittelte Linienprofile in (c) dargestellt. Die Periodizität der Streifen scheint unabhängig von der Domänenwand zu sein. Mit einem Fit an das gemittelte Linienprofil der dI/dU -Karte und deren Ableitung lässt sich die Breite der Domänenwand zu $w = (4,45 \pm 0,35)$ nm berechnen. Das weiße (schwarze) Rechteck zeigt die Streifen senkrecht (parallel) zur Domänenwand. Scanparameter: $U = -0,7$ V, $I = 1$ nA, $U_{\text{mod}} = 10$ mV. Die Daten wurden mir mit freundlicher Genehmigung von J. Kügel zur Verfügung gestellt.

Ordnungsphänomene sind. Im Rahmen der temperaturabhängigen Ginzburg-Landau (GL) Theorie konnten die zwei Phänomene (Ladungsordnung, magnetische Ordnung) modelliert werden (s. Abb. 5.12). Die Ladungsordnung und die magnetische Ordnung erlauben zwei skalare Ordnungsparameter einzuführen. Diese sind der Ladungsordnungsparameter Φ und die Magnetisierung m . Der Ladungsordnungsparameter kann über die Intensität der Spots der Fouriertransformierten definiert werden und der Magnetisierungsparameter hängt ab von dem Ising-artigen Verhalten. Auf beide Ordnungsparameter wirkt eine \mathbb{Z}_2 Symmetrie, so dass $\Phi \rightarrow -\Phi$ und $m \rightarrow -m$. Die globale Symmetriegruppe lautet demnach $\mathbb{Z}_2 \oplus \mathbb{Z}_2$.

Entwickelt man die Freie Energie F nach Φ und m erhält man die Ginzburg-Landau Freie Energie, die nur die Terme der zugehörigen Symmetriegruppe enthält und folgendermaßen lautet [101]:

$$F = F_0 + \frac{a}{2}(T - T_P)\Phi^2 + \frac{b}{4}\Phi^4 + \frac{a'}{2}(T - T_C)m^2 + \frac{b'}{4}m^4 + \frac{\gamma}{2}\Phi^2m^2. \quad (5.2)$$

γ bildet die Kopplungskonstante zwischen Magnetisierungsparameter m und Ladungsordnungsparameter Φ . Die erwartete Temperaturabhängigkeit der quadratischen Terme wurde in dieser Darstellung schon berücksichtigt.

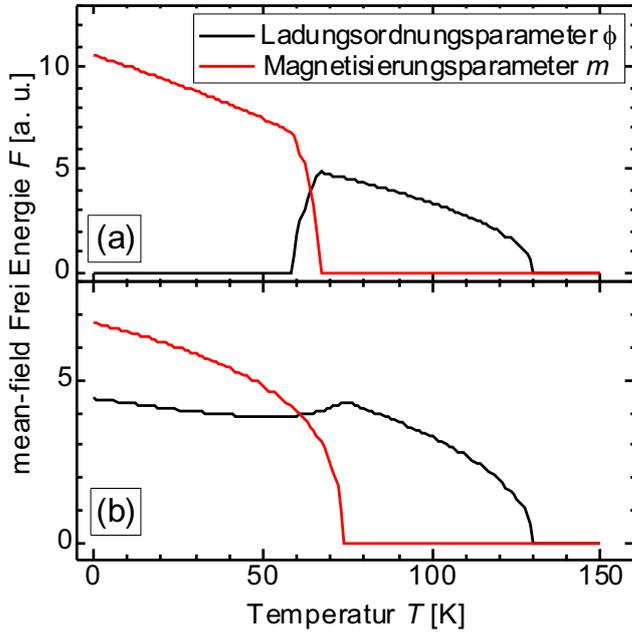


Abbildung 5.12: Entwicklung der temperaturabhängigen Ginzburg-Landau Freien Energie. (a) Die Entwicklungsparameter der GL Freien Energie F bis zur vierten Ordnung lauten nach Gl. (5.2): $a = 0,9$, $a' = 1$, $T_P = 130$, $T_{C'} = 100$, $b = 2,4$, $b' = 0,9$, $\gamma = 1,4$, $c = c' = 0$. (b) Bei der Entwicklung bis zur sechsten Ordnung blieben alle Parameter unverändert nach 5.3, außer $c = c' = 0,015$.

Im thermischen Gleichgewicht kann die Freie Energie minimiert werden, was bedeutet, dass $b, b' > 0$ sein müssen. Es gibt vier mögliche Lösungen der Minimierung der Freien Energie F , die von den Koeffizienten abhängen. Die triviale Lösung wäre, dass beide Ordnungsparameter verschwinden. Zwei nicht-triviale Lösungen wären, dass nur ein Ordnungsparameter abklingt und eine weitere Lösung gibt es, bei welcher beide Ordnungsparameter ungleich Null sind. Bei 90 K ist eine Ladungsordnung vorhanden, aber keine Magnetisierung messbar. Dies bedeutet, dass $T_{C'} < T_P$ und $a, a' > 0$ sind, so dass bei der Temperatur $T = T_P$ die Ladung (Ladungsordnungsparameter Φ) ordnet. Der Ladungsordnungsparameter Φ bildet unter den Bedingungen $ab'/a' < \gamma < a'b/a$ und $\gamma^2 < bb'$ ein Maximum bei der kritischen magnetischen Temperatur $T_C = (a'bT_{C'} - \gamma aT_P)/(a'b - \gamma a)$ aus.

Ein Beispiel für den Verlauf der Ordnungsparameter ist in Abb. 5.12 (a) gezeigt, wobei bis zur vierten Ordnung entwickelt wurde. In diesem Beispiel würde der Ladungsordnungsparameter verschwinden und man würde keine Streifen unterhalb des Ansatzpunktes des Magnetismus ($m > 0$) sehen, was im Widerspruch zu den gemessenen Daten steht. Dieses Verhalten resultiert aus dem Term $\frac{a}{2}(T - T_P)\Phi^2$, welcher negativ für $T < T_P$ ist, und der positiven Kopplung mit m im Term $\frac{\gamma}{2}\Phi^2 m^2$. Verringert man die Temperatur, wird m größer und die starke Kopplung zu γ reduziert den Wert von Φ gegen Null, wodurch die Freie Energie F ebenfalls kleiner wird. Allerdings ist der Ladungsordnungsparameter instabil bei $\Phi = 0$, wenn man die Terme höherer Ordnung betrachtet. Für den Phasenübergang ist die Instabilität vielleicht irrelevant, aber dennoch wird das Wachstum in einem weiten Temperaturbereich davon beeinflusst. Zudem wachsen die Ordnungsparameter unterhalb der kritischen Temperatur unbestimmt, was man für reelle Materialien nicht erwarten würde, da man davon ausgeht, dass ein Sättigungswert

eintritt.

Zur Verbesserung des Ansatzes werden nun auch Terme der sechsten Ordnung berücksichtigt und Gl. (5.2) ändert sich zu

$$F = F_0 + \frac{a}{2}(T - T_P)\Phi^2 + \frac{b}{4}\Phi^4 + \frac{c}{6}\Phi^6 + \frac{a'}{2}(T - T_{C'})m^2 + \frac{b'}{4}m^4 + \frac{\gamma}{2}\Phi^2m^2 + \frac{c'}{6}m^6. \quad (5.3)$$

Gleichung (5.3) erfordert zur Stabilität $c, c' > 0$. Der Einbezug der sechsten Ordnung führt dazu, dass der Ladungsordnungsparameter Φ nicht gegen Null geht, sondern einen Einbruch aufweist, wie dies auch experimentell beobachtet wird. Die sechste Ordnung dämpft das Wachstum des magnetischen Ordnungsparameters unterhalb von $T_{C'}$. Zusammen betrachtet erkennt man in den theoretischen Kurven den Ansatz des Magnetismus und den damit verbundenen Einbruch im Ladungsordnungsparameter. Beide Parameter steigen für $T \rightarrow 0$ wieder leicht an.

Ladungsordnung und magnetische Ordnung können sich gegenseitig beeinflussen, was auf die elektronische Struktur am Fermi-niveau zurückzuführen ist. Die Fermioberfläche ändert sich am Fermi-niveau stark, was zum einen durch die Austauschwechselwirkung, die die magnetische Ordnung hervorruft, verursacht wird und zum anderen durch partielles Fermi-Nesting, wenn eine Ladungsdichtewelle vorliegt. Der Nachweis einer Ladungsdichtewelle und des potentiellen Fermi-Nestings kann durch winkelaufgelöste Photoelektronenspektroskopie erfolgen, da hier die Fermioberfläche gut abgebildet werden kann. Diese Messungen müssten auch temperaturabhängig durchgeführt werden. Es gibt schon vorläufige Messungen, die vermutlich die antiferromagnetische Ordnung der ersten Lage zeigen. Hierzu werden noch weitere Messungen benötigt, um diese Beobachtung zu bestätigen, und potentielles Fermi-Nesting auf der zweiten Lage Fe zu untersuchen und zu analysieren.

6 Wachstum und elektronische Eigenschaften der CePt₅-Oberflächenlegierung

Im letzten experimentellen Abschnitt meiner Arbeit wird das schwere Fermionensystem CePt₅ behandelt. Zu Beginn werde ich auf die Motivation zur Untersuchung dieses Systems eingehen und in diesem Zusammenhang die theoretischen Grundlagen zum Verständnis eines schweren Fermionensystems erläutern. Anschließend folgt eine Wachstumsstudie, die mit LEED-Daten von C. Praetorius verglichen wird [102]. Die Wachstumsstudie wurde zusammen mit den LEED-Daten gemeinsam veröffentlicht [103].

6.1 Schwere Fermionensysteme

Bevor ich auf das Verständnis eines schweren Fermionensystems eingehe, werde ich ein Kondosystem erläutern, welches fast alle Wechselwirkungen eines schweren Fermionensystems beinhaltet. Bereits 1934 beobachteten de Haas *et al.* bei temperaturabhängigen Widerstandsmessungen auf einer Gold-Probe einen erneuten Anstieg des Widerstand unterhalb von 4 K [104]. Dieser Effekt konnte damals nicht erklärt werden. Erst 30 Jahre später konnte Kondo theoretisch erläutern, dass dieser Effekt auf eine Wechselwirkung der Leitungselektronen des Substrates (Gold) mit einem lokalisierten Elektronenspin einer magnetischen Verunreinigung zurückzuführen ist [105, 106]. Der Kondo-Effekt, der nach seinem Entdecker benannt wurde, kann demnach nur beobachtet werden, wenn der Gesamtspin der Elektronen der Verunreinigung ungleich Null ist, d.h. bei magnetischen Adsorbaten. Ein vereinfachtes Model von Anderson (Anderson single-impurity model) basiert auf einer einzigen magnetischen Verunreinigung, die auf einem nicht-magnetischen Substrat vorkommt [107]. Dabei kommt es zu einem Orbitalzustand, der mit keinem, einem oder zwei Elektronen gefüllt werden kann.

Ein Beispiel für ein Kondosystem bildet Cer auf Ag(111) [108], wobei es mit anderen Materialien sehr viele Beispiele gibt und hier nur Auszüge zitiert werden [109, 110]. Der einfach besetzte $4f^1$ -Zustand unterhalb des Ferminiveaus bei E_{4f} hat einen Abstand von E_C , der der Coulombenergie entspricht, vom $4f^2$ -Zustand, der mit zwei Elektronen besetzt ist, die einen

entgegengesetzten Spin besitzen [111]. Abbildung 6.1 (a), die von M. Ternes *et al.* adaptiert wurde, zeigt schematisch die Energieniveaus. Die beiden $4f$ -Zustände werden durch Hybridisierungseffekte mit den Zuständen des metallischen Ag(111) verbreitert. Austauschprozesse können nun ein Elektron mit Spin "up" ("down") über zwei verschiedene virtuelle Wege in den Spin "down" ("up") flippen und dabei einen Spin-angeregten Zustand erzeugen. Dabei entleert Weg 1 zuerst den $4f^1$ -Zustand und wird anschließend wieder mit einem Elektron aus dem metallischem Substrat mit entgegengesetztem Spin gefüllt. Weg 2 füllt den $4f^2$ -Zustand zuerst mit dem zweiten Elektron mit entgegengesetztem Spin und entfernt nach sehr kurzer Verweildauer wieder ein Elektron. Im Endzustand besitzen beide beteiligten Elektronen den

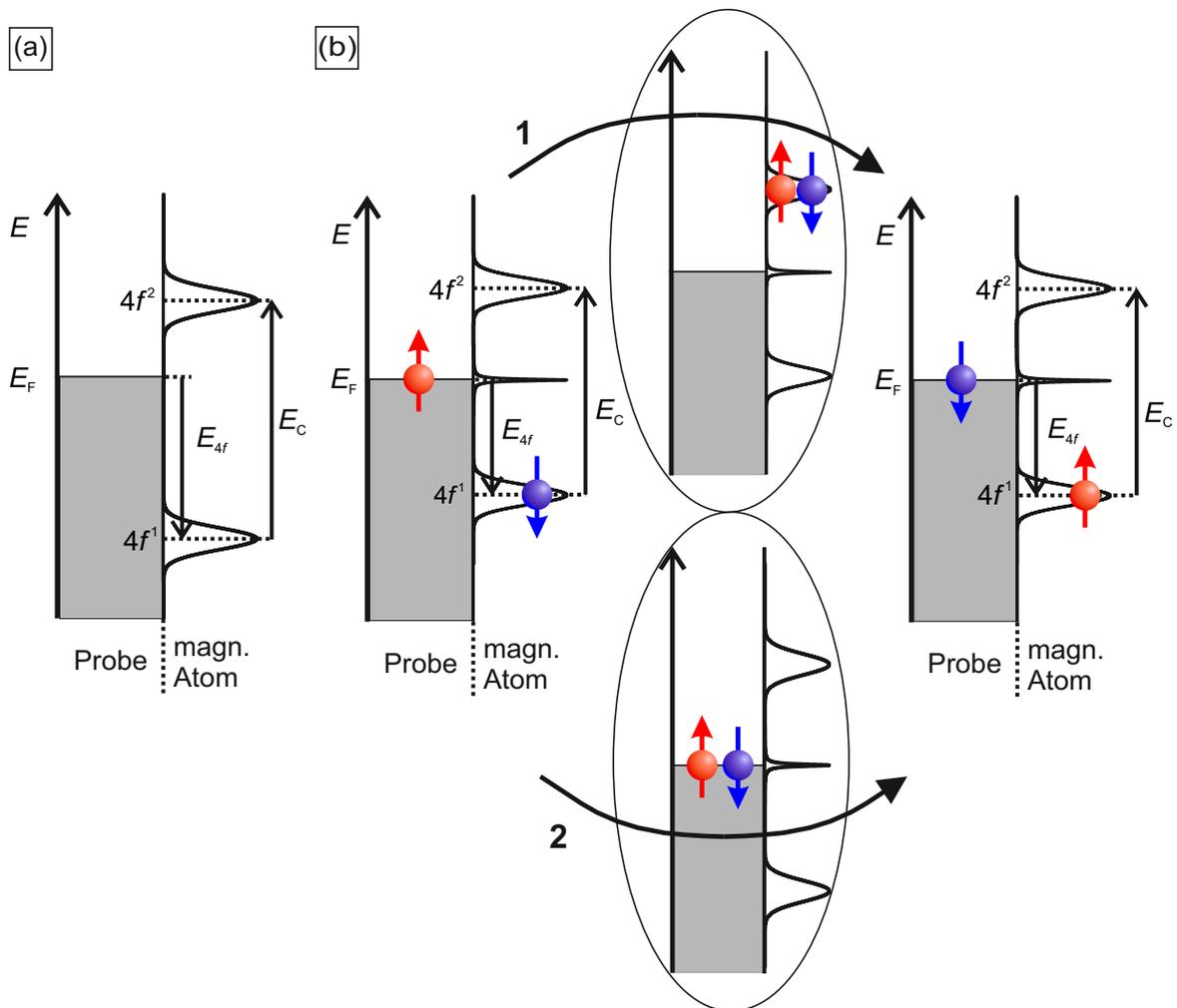


Abbildung 6.1: (a) Der einfach besetzte $4f^1$ -Zustand des magnetischen Atoms des Kondosystems Cer auf Ag(111) liegt bei E_{4f} unterhalb des Fermi-niveaus und hat einen Abstand von E_C zum $4f^2$ -Zustand. (b) Über zwei virtuelle Prozesse (Weg 1, Weg 2) werden die wechselwirkenden Spins des Kondosystems geflippt. Hierbei wird entweder der $4f^2$ -Zustand des magnetischen Atoms mit zwei Spins (Weg 1) besetzt oder ein Zustand an der Fermienergie der Probe mit zwei Spins (Weg 2). Abbildung adaptiert aus Ref. [111].

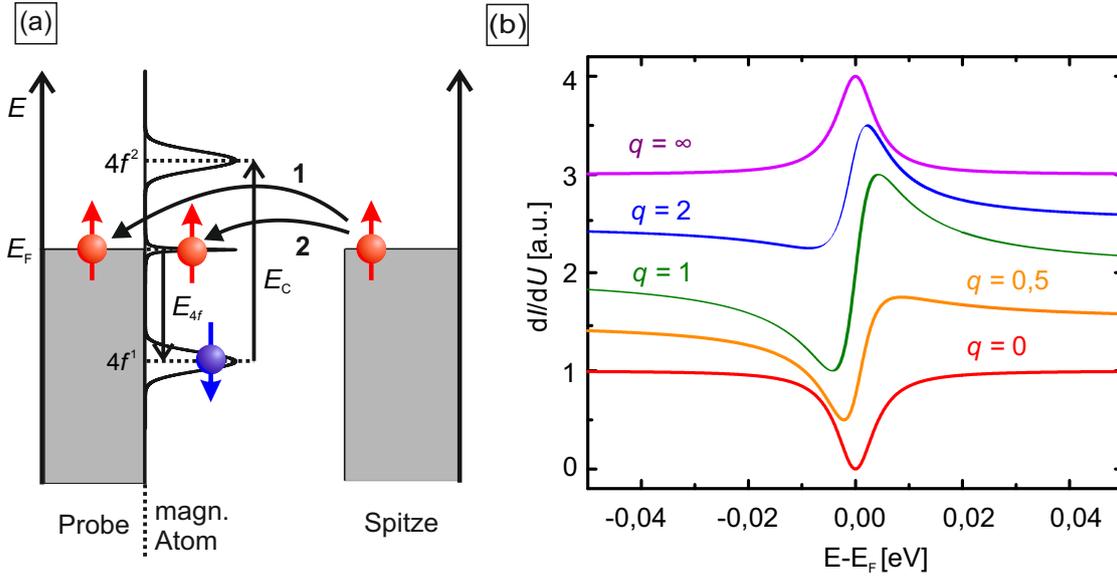


Abbildung 6.2: (a) Ein Elektron tunnelt direkt von der Spitze in die Probe (1) oder von der Spitze indirekt in die Kondo-Resonanz (2). (b) Für unterschiedliche q -Werte erhält man unterschiedliche Spektren. Tunnelt die Elektronen größtenteils direkt (indirekt), so entsteht eine Senke (ein Peak). Findet sowohl direktes als auch indirektes Tunneln statt, so bildet sich ein asymmetrischer Peak. Abbildung adaptiert aus Ref. [111].

jeweils anderen Spinzustand, wie dies in Abb. 6.1 (b) gezeigt wird. Beide Prozesse verletzen die Energieerhaltung, sind aber aufgrund der Energie-Zeit-Unschärfe möglich, solange die Zeit im Übergangszustand sehr kurz ist (virtueller Prozess). Finden viele solcher Prozesse kohärent statt, entsteht ein neuer Grundzustand an der Fermienergie, welcher die Kondo-Resonanz bildet [111]. Dabei schirmen die Spins des Substrates das magnetische Moment des Atoms ab und dies resultiert in einen Mehrteilchenzustand. Die Breite (halbe Halbwertsbreite Γ) einer solchen Kondo-Resonanz bestimmt über $\frac{\Gamma}{k_B} = T_K$ die Kondo-Temperatur T_K bei $T = 0$ K. Für endliche Temperaturen wird die Kondotemperatur über folgende Formel berechnet [112]:

$$T_K = \frac{\sqrt{(2\Gamma)^2 + (\alpha k_B T)^2}}{2k_B} \quad (6.1)$$

Dabei ist α der Kurvenverlauf, der auf die Verbreiterung der Fermi-Dirac-Verteilung des Anfangs- und Endzustands aufgrund des Übergangs- (Kondo-)zustandes entsteht. Sowohl die Peakhöhe als auch die Peakbreite der Kondoresonanz hängen von der Temperatur ab. Für Ce auf Ag(111) wurde eine Peakbreite von 50 meV bei einer Messtemperatur von $T = 5$ K angegeben [108]. Allgemein kann die Kondo-Resonanz als Peak, asymmetrischer Peak oder Senke erscheinen, was vom q -Wert abhängt, der das Verhältnis zwischen direktem (1) und indirektem (2) Tunnelprozess bildet (s. Abb. 6.2 (a)) [111]. Wird hauptsächlich direkt (indirekt) getunnelt erscheint eine Senke (Peak) oder ein asymmetrischer Peak bei einem annähernd gleichen Verhältnis von (1) zu (2), wie dies in Abb. 6.2 (b) schematisch gezeigt ist. Bei Cer

tunneln die Elektronen aufgrund der stark lokalisierten $4f$ -Orbitale sehr häufig direkt in die s -, p - oder d -Orbitale des Substrates, wodurch eine Senke in der Spektroskopiekurve für Cer-Atome bzw. Cerverbindungen erwartet wird [111, 113].

Der Übergang zu einem schweren Fermionensystem wird am Beispiel der Cerverbindung CeCoIn₅ gezeigt [8]. Bei CeCoIn₅ ordnet das Cer und dementsprechend die stark lokalisierten Momente in einer dichtgepackten Verbindung. Durch die dichte Ordnung kommt es zu einer weiteren langreichweitigen Wechselwirkung, der Ruderman-Kittel-Kasuya-Yosida (RKKY) Wechselwirkung, die eine magnetische Ordnung bevorzugt und somit im Wettbewerb zum paramagnetischen Zustand eines Kondosystems steht [114–116]. Bei der Kohärenztemperatur des schweren Fermionensystems gibt es einen Übergang von einer Fermiflüssigkeit zu einer Luttingerflüssigkeit. Ebenso tritt ein Übergang vom paramagnetischen Zustand (delokalisierte f -Elektronen) in den geordneten antiferromagnetischen Zustand (lokalisierte f -Elektronen) auf. Das Hauptmerkmal eines Kondogitters (-systems) bildet seine Temperaturabhängigkeit, deren Verhalten anhand des Beispiels CeCoIn₅ erläutert wird. Durch die Hybridisierung der in einem Gitter delokalisierten Orbitale des Cer (f -Band) mit den Leitungselektronen des CoIn₅ (spd -Band) kommt es zu niederenergetischen Anregungen, welche sich ähnlich zur Kondoresonanz, wie oben gezeigt, verhalten [8]. Eine schematische Skizze der eben genannten Vorgänge ist in Abb. 6.3 zu sehen. In Abb. 6.3 (a) ist ein Kondosystem abgebildet und in (b) ein Kondogitter. Die Hybridisierung des f -Bandes (rot) mit einem spd -Band (grün) zeigt Abb. 6.3 (c) [8]. Aufgrund der Hybridisierung unterhalb der Kohärenztemperatur entsteht eine direkte und indirekte Hybridisierungslücke, die das Tunneln von Elektronen direkt (Weg 1) in das spd -Band oder indirekt (Weg 2) über die Kondoresonanz in das spd -Band widerspiegelt. Für den direkten Weg sollte bei niedrigen Temperaturen ein Dip in der Spektroskopiekurve erscheinen, wie dies auch experimentell von Aynajian *et al.* gezeigt wird (s. Abb. 6.3 (d)) [8]. Die Kohärenztemperatur von CeCoIn₅ beträgt $T_C = 45$ K [117], wobei die Hybridisierungslücke bei 20 K auf $2\nu = 8$ meV gemessen wird, wie aus den Messungen von Aynajian *et al.* hervorgeht. Die Oberflächenlegierung CePt₅/Pt(111) bildet nach Klein *et al.* ebenfalls ein schweres Fermionensystem mit einer Hybridisierungslücke von 2 meV bei 13 K [28, 118]. Mit dem RTM sollte die Entstehung einer Hybridisierungslücke des schweren Fermionensystems CePt₅/Pt(111) messbar sein, wie dies auch schon bei vielen anderen Einkristallen gezeigt wurde [119–121]. Anhand der vorherigen Erläuterungen eines schweren Fermionensystems sollte man einen Einbruch der Leitfähigkeit um $E_F = 0$ meV bei CePt₅ erkennen können, wenn die Temperatur unterhalb der Kohärenztemperatur des CePt₅ liegt und die Energieauflösung hoch genug ist. Der Vorteil des CePt₅ zur Untersuchung mit dem RTM ist, dass CePt₅ als dünner Film direkt in der Präparationskammer gewachsen werden kann. Dies hat den weiteren Vorteil, dass die Filmdicke und die Konzentration variiert werden kann. Bei Einkristallen, wie CeCoIn₅, kann die Konzentration und Menge der unterschiedlichen Materialien innerhalb des Einkristalls nur sehr schwer bzw. gar nicht verändert werden. Somit muss bei Einkristallen für jede Konzentration

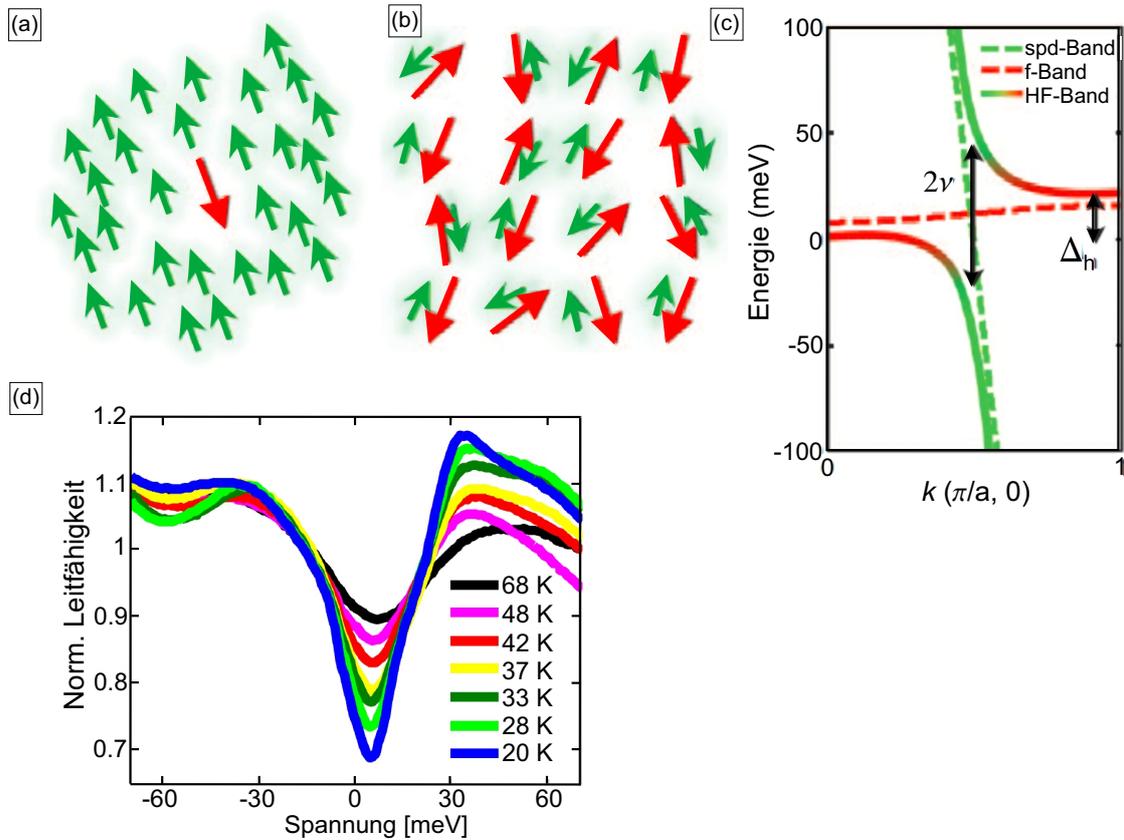


Abbildung 6.3: (a) Bei einem Kondosystem bildet sich unterhalb der Kondotemperatur ein Elektronensee des metallischen Substrats (grüne Pfeile) mit einem stark lokalisierten Elektronenspin (roter Pfeil) des magnetischen Adsorbats. (b) Ein Kondogitter bildet sich dagegen unterhalb der Kohärenztemperatur bei einem schweren Fermionensystem aus. (c) Das *spd*-Band (grün) hybridisiert unterhalb der Kohärenztemperatur mit dem *f*-Band (rot) und es kommt zur Ausbildung einer direkten Hybridisierungslücke 2ν bzw. einer indirekten Hybridisierungslücke Δ_h . (d) Bei einer starken Kopplung an das *spd*-Band, wie dies bei CeCoIn_5 auftritt, entsteht in der normierten/differentiellen Leitfähigkeit eine Senke bei $E_F = 0$ meV, dessen Breite der direkten Hybridisierungslücke (Weg 1) 2ν entspricht. Die Breite und Tiefe der Senke ist abhängig von der Temperatur. Abbildung adaptiert und entnommen aus Ref. [8] und dem dazugehörigen Supplemental Material.

ein neuer Kristall gewachsen und vermessen werden. Solche Einkristalle werden für gewöhnlich nicht in ein- und derselben UHV-Kammer hergestellt und untersucht. Bevor ich nun auf die Probenpräparation, die Wachstumsstudie und die RTS eingehe, fasse ich die Ergebnisse der Literatur für die unterschiedlich dicken CePt_5 -Oberflächenlegierungen zusammen.

6.2 Literaturvergleich

Die Oberflächenlegierung CePt_5 wurde schon in einigen Studien untersucht, in welchen sowohl die Struktur bestimmt wurde als auch Messungen im Hinblick auf ein schweres Fermionensystem

unternommen wurden [28, 118, 122–124]. Ein Überblick über die strukturellen Ergebnisse der einzelnen Studien ist in Tabelle 6.1 gezeigt. Zum besseren Verständnis dieses Abschnittes sei an dieser Stelle die Bedeutung einer Rekonstruktion erläutert. Unter einer Rekonstruktion oder auch Überstruktur/-gitter versteht man die Verschiebung von Atomen an einer Festkörperoberfläche im Vergleich zur atomaren Struktur im Volumen des Festkörpers. Diese Verschiebungen beinhalten immer eine Relaxation der Oberfläche (Energieminimierung). In den folgenden Unterkapiteln werden nun die in der Literatur beobachteten Rekonstruktionen, die abhängig von der Dicke der Legierung t sind, vorgestellt.

$t < 2$ u.c.

Für dünne CePt₅-Legierungen ($t < 2$ u.c.) (Einheitszelle, engl.: unit cell, u.c.) erhalten Tang *et al.* eine ungeordnete Oberflächenlegierung, Essen *et al.* erhalten für Bedeckungen mit weniger als 1 u.c. CePt₅ ein diffuses LEED-Bild und für Bedeckungen zwischen 1 u.c. und 2 u.c. eine ideale (2×2) Rekonstruktion im LEED-Bild [122, 123]. Baddeley *et al.* beobachten für Bedeckungen mit weniger als 2 u.c. im LEED-Bild eine Kombination einer schwachen (2×2) und einer $(5, 6 \times 5, 6)R30^\circ$ Rekonstruktion [124]. In den LEED-Bildern von C. Praetorius lässt sich für weniger als 2 u.c. eine Rekonstruktion erahnen, aber nicht beweisen [102]. Meine RTM Messungen zeigen, dass für diese Bedeckungen die Oberfläche nicht rekonstruiert ist bzw. nur ein sehr geringer Bruchteil der Oberfläche.

$t = 2$ u.c.

Für 2 u.c. erhalten Tang *et al.* näherungsweise eine (2×2) Rekonstruktion im LEED-Bild, die –abhängig von der Legierung (CePt₅ oder CePt₃)– bei genauer Betrachtung eine $(1, 94 \times 1, 94)$ oder eine $(1, 96 \times 1, 96)$ Rekonstruktion abbildet. Es sind Satelliten um die Hauptpunkte zu erkennen, die eine übergeordnete Struktur erkennen lassen. In den LEED Bildern von Essen *et al.* sieht man ebenfalls gleichzeitig eine (2×2) und eine $(1, 98 \times 1, 98)R30^\circ$ Rekonstruktion. Die Satelliten werden hier allerdings interpretiert als Streuung und Überlagerung der beiden zuvor genannten Strukturen. Für diese Schichtdicke erhalten Baddeley *et al.* ebenfalls eine scharfe (2×2) und eine Rekonstruktion, die einer $(5, 6 \times 5, 6)R30^\circ$ Rekonstruktion ähnlich ist und von ihm als Struktur A bezeichnet wurde. Die von Baddeley sogenannte Struktur B zeigt eine $(1, 8 \times 1, 8)$ Rekonstruktion im LEED und eine langreichweitige Ordnung (Periodizität ≈ 10 nm) im RTM. Diese Struktur wird als mehrere Lagen dick bezeichnet, was mit Augerelektronenspektroskopie unterlegt wird [124].

Schicht- dicke t	Experi- mentelle Metho- de	Tang <i>et al.</i> [122]	Baddely <i>et al.</i> [124]	Essen <i>et al.</i> [123]	Diese Arbeit
<2 u.c.	LEED	(1×1)	$(5, 6 \times 5, 6)R30^\circ$ und schwache (2×2)	ideale (2×2)	matte (2×2)
	STM	—	Struktur A	—	nicht-periodisch (np)
2 u.c.	LEED	$(1, 94 \times 1, 94)$ mit Satelliten	(2×2) und ähnlich zu $(5, 6 \times 5, 6)R30^\circ$	ideale (2×2) and $(1, 98 \times 1, 98)R30^\circ$	$(1, 98 \times 1, 98)$
	STM	—	Strukturen A/B/C	—	Struktur B
3 u.c.	LEED	$(1, 96 \times 1, 96)$ mit Satelliten	(2×2) und ähnlich zu $(5, 6 \times 5, 6)R30^\circ$	$(1, 98 \times 1, 98)R30^\circ$ und (2×2)	$(\frac{10}{9}\sqrt{3} \times \frac{10}{9}\sqrt{3})R30^\circ$ mit Satelliten
	STM	—	Strukturen A/B/C	—	Struktur C
4 u.c.	LEED	—	(2×2) mit Satelliten	$(1, 98 \times 1, 98)R30^\circ$	komprimierte $(2 \times 2)R30^\circ$
	STM	—	Struktur C	—	Struktur C'
5- 10 u.c.	LEED	$(1, 96 \times 1, 96)R30^\circ$ und $(1, 96 \times 1, 96)$	(2×2) und $(2 \times 2)R30^\circ$	$(1, 98 \times 1, 98)$ und $(1, 98 \times 1, 98)R30^\circ$	komprimierte (2×2) und $(2 \times 2)R30^\circ$
	STM	—	Strukturen D und E	—	Strukturen D und C'
>10 u.c.	LEED	$(1, 96 \times 1, 96)$	—	—	komprimierte (2×2)

Tabelle 6.1: Die Tabelle fasst die LEED und RTM Ergebnisse zu den unterschiedlichen Schichtdicken des $CePt_5$ der Referenzen [122–124] und meinen Ergebnissen zusammen. Die unterschiedlichen Strukturen sind in Anlehnung an Ref. [124] benannt.

$t = 3$ u.c.

Tang *et al.* sehen für den Schichtdickenbereich von 2 u.c. bis 3 u.c. wiederum eine $(1, 96 \times 1, 96)$ und eine $(1, 96 \times 1, 96)R30^\circ$ Rekonstruktion, die er als Domänen bezeichnet mit unterschiedlichem Cer-Anteil. Für diese Schichtdicke erhalten Essen *et al.* eine (2×2) und eine $(1, 98 \times 1, 98)R30^\circ$ Rekonstruktion im LEED. Baddeley *et al.* erkennen für unterschiedliche

Nachheiztemperaturen jeweils unterschiedliche koexistierende Rekonstruktionen. Bei 1000°C Nachheiztemperatur sieht er fast ausschließlich Struktur C im RTM und im LEED eine (2×2) mit Satelliten um die Hauptspots.

$t = 4$ u.c.

Für den Bereich um 4 u.c. erkennen Tang *et al.* die gleichen Rekonstruktionen, wie sie schon im Bereich von 2 u.c. bis 3 u.c. vorgekommen sind. Essen *et al.* erhalten für diesen Bereich nur noch die $(1,98 \times 1,98)R30^\circ$ Rekonstruktion im LEED. Baddeley sieht im LEED die (2×2) Rekonstruktion mit Satelliten und im RTM kommt fast ausschließlich die Struktur C vor.

$t = 5$ u.c. bis 10 u.c.

Für den Bereich zwischen 5 u.c. und 10 u.c. erkennen Tang *et al.* sowohl eine $(1,96 \times 1,96)$ als auch eine im Vergleich zu den kristallographischen Richtungen des Pt(111) um 30° gedrehte Struktur. Essen *et al.* sehen auch eine um 30° gedrehte und eine nicht-gedrehte $(1,98 \times 1,98)$ Rekonstruktion. Ebenso wie Tang *et al.* und Essen *et al.* erhalten Baddeley *et al.* zwei Domänen mit einer (2×2) und einer $(2 \times 2)R30^\circ$ Rekonstruktion. Im RTM werden diese Rekonstruktionen als Struktur D und E bezeichnet.

Noch dickere Legierungen haben Tang *et al.* weiter untersucht und erkennen in den LEED-Bildern nur noch die nicht-gedrehte Rekonstruktion.

6.3 Klassifizierung der Schichtdicken

6.3.1 Probenpräparation und Bildung einer Oberflächenlegierung

Die Präparation der Probe erfolgt für meine RTM-Messungen in der Präparationskammer und die Untersuchung mit dem RTM in der direkt anschließenden Analysekommer. Zur Präparation der Pt(111)-Oberfläche wurde diese 10 min gesputtert, um ungewünschte Adsorbate auf der Oberfläche zu entfernen (Parameter: Kinetische Energie der Ionen $E = 500$ eV, Sputterstrom $I_{\text{Probe}} = 2 \mu\text{A}$). Anschließend wird die Probe für 3 min bei 1300 K geheizt, um die Oberfläche zu glätten und direkt weiter bei 1100 K unter Sauerstoffatmosphäre weiter geheizt, um Kohlenstoffverunreinigungen an der Oberfläche zu entfernen. Im Anschluss daran wurde die Probe wieder zum Entfernen von Sauerstoffrekonstruktionen für 10 min gesputtert (Parameter: $E = 500$ eV, $I_{\text{Probe}} = 2 \mu\text{A}$) und nochmals für 1 min auf 1300 K geheizt, um wieder eine glatte Oberfläche zu erzeugen. Auf die saubere Pt(111)-Oberfläche wurde nun bei ca. $T_{\text{Probe}} = 335$ K Cer aufgedampft und nach dem Aufdampfen durch nochmaliges Erhitzen des Kristalles auf

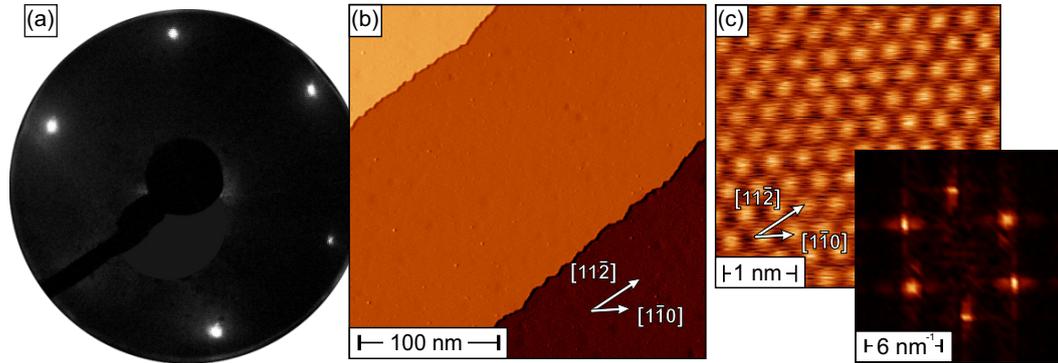


Abbildung 6.4: (a) LEED-Bild der sauberen Pt(111)-Oberfläche ($E_p = 63$ eV). (b) (250×250) nm² Scan der sauberen Pt(111)-Oberfläche. Die Stufenkanten separieren drei Terrassen. Scanparameter: $U = +1$ V, $I = 300$ pA. Die Richtungen des Kristalls sind eingezeichnet. (c) Auf einer sauberen Oberfläche lässt sich atomare Auflösung erzielen. Scanparameter: $U = +1$ mV, $I = 90$ nA. Die Abstände der Atome betragen $a = (0,265 \pm 0,013)$ nm. Die Fouriertransformierte ist im Inset gezeigt, woran man deutlich die hexagonale Struktur erkennt, wie auch im LEED-Bild und in der atomaren Auflösung.

1000 K die Oberflächenlegierung hergestellt. Anschließend wurde die Oberfläche mit dem RTM untersucht. Für die LEED-Daten, die von C. Praetorius in einer anderen Kammer als der in Kap. 3 Vorgestellten aufgenommen wurden, wurde der Kristall nur gesputtert und geheizt. Der Cer-Verdampfer ist in der Kammer von C. Praetorius direkt an die Präparationskammer angebracht und kann nicht durch eine Schiebeventil von der Präparationskammer abgetrennt werden, was im Gegensatz zu der in Kap. 3 vorgestellten Kammer steht, bei welcher ein Schiebeventil zwischen Verdampfer und Präparationskammer installiert ist. Durch die Sauerstoffatmosphäre kann es dazu führen, dass das reine Cer oxidiert und man somit Ceroxid auf die Probe aufdampft.

Nach oben stehender Präparation erhält man eine saubere Pt(111)-Oberfläche, die in Abb. 6.4 sowohl mittels LEED (Abb. 6.4(a)) als auch mittels RTM (Abb. 6.4(b, c)) gezeigt ist. Die hexagonale Oberflächenstruktur erkennt man gut im LEED [102]. Durch die Variation der Elektronenstrahlenergie wird die dreizählige Rotationssymmetrie des Substrats im LEED sichtbar, indem die Intensität nebeneinanderliegender Spots variiert. Abbildung 6.4(b) zeigt einen (250×250) nm² großen Scanbereich der sauberen Pt(111)-Oberfläche. Dabei separieren zwei atomare Stufenkanten, die eine Höhe von $h = (0,215 \pm 0,012)$ nm besitzen, drei atomar flache Terrassen. Auf einer sauberen Oberfläche, wie die hier gezeigte, kann atomare Auflösung erzielt werden und es konnte aus der hier gezeigten Messung der Atomabstand zu $a = (0,265 \pm 0,013)$ nm bestimmt werden. Die hexagonale Struktur wird auch durch die Fouriertransformierte (Inset in Abb. 6.4(c)) der atomaren Auflösung bestätigt.

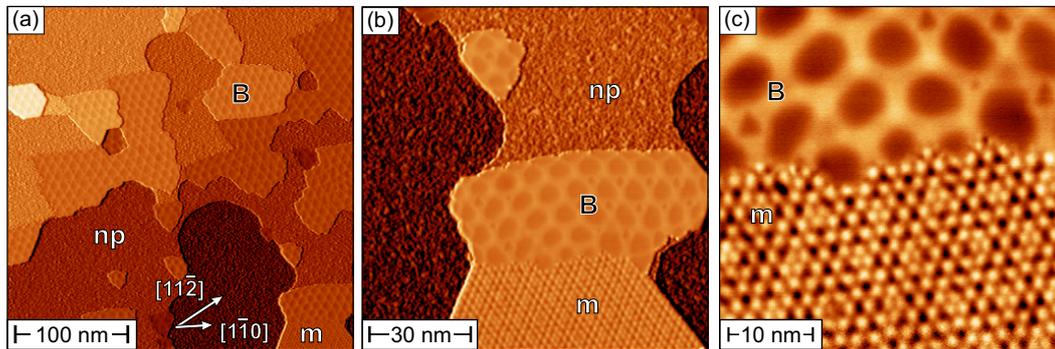


Abbildung 6.5: (a) Wenige Prozent der Oberfläche sind mit einer Minoritätsstruktur m , ein Teil mit der Struktur B und ein Großteil der Oberfläche mit einer nicht-periodischen Struktur np bedeckt. (b) und (c) sind vergrößerte Aufnahmen der eben erwähnten Strukturen. Scanparameter: $U = +2\text{ V}$, $I = 50\text{ pA}$.

6.3.2 Dünne Filme

Präpariert man nun eine Oberflächenlegierung mit einer Dicke von 1 u.c., erkennt man im LEED eine vage (2×2) Struktur, deren Gitterkonstante um den Faktor zwei größer ist als die Gitterkonstante von Pt(111). Die sechsfach symmetrischen Spots sind allerdings sehr breit und nur schwach ausgeprägt. Dieses LEED-Bild ist in dieser Arbeit nicht gezeigt. Im RTM sieht man größtenteils eine ungeordnete, nicht-periodische (np) Struktur, wie dies auch Abb. 6.5 (a) zeigt. Die Minoritätsstruktur, die hier m genannt wird, bedeckt nur wenige Prozent der Oberfläche. Diese lässt sich allerdings nicht großflächig herstellen. Die Periodizität der Minoritätsstruktur m beträgt $(1,94 \pm 0,30)$ nm entlang der $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ -Richtungen des Pt(111)-Kristalls, wobei leichte Abweichungen von den Kristallrichtungen festzustellen sind. Struktur B , die hier schon erscheint, wird anhand einer folgenden Abbildung analysiert. Vergleicht man diese Bedeckung nun mit Ergebnissen aus der Literatur, so kann ich keine Struktur erkennen, die um 30° zur $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ -Richtung des Pt(111) gedreht ist [124], noch eine (2×2) [123] oder (1×1) Struktur [122]. Abbildung 6.6 (a) zeigt schematisch die Einheitszelle (u.c.) der Oberflächenlegierung CePt₅. Dabei beträgt der nächste-Nachbarnabstand der roten Ceratome $b = 0,439$ nm und der Abstand der Cer-Atome senkrecht zur Probenoberfläche $c = 0,537$ nm. Abbildung 6.6 (b) stellt mehrere aneinandergereihte Einheitszellen der unterschiedlichen atomaren Lagen in Form eines dreidimensionalen Kugelmodells dar. Die Einheitszelle besteht aus drei Ebenen, die in Abb. 6.6 (b) nebeneinander abgebildet sind. Die erste und dritte Ebene bestehen sowohl aus Cer- als auch aus Platin-Atomen (grau) und sind in einem hexagonalen CePt₂-Gitter angeordnet. Die mittlere Ebene bildet ein sogenanntes Kagomé-Gitter, welches nur aus Pt-Atomen besteht. Dabei kommt es zu einer hexagonalen ringförmigen Anordnung der Atome und der Platz in der Mitte des Hexagons bleibt leer. Der freie Platz befindet sich unter- bzw. oberhalb eines Cer-Atoms der atomaren Lage darüber bzw. darunter. Allerdings bildet sich an der Oberfläche als terminierende Lage der CePt₅-Oberflächenlegierung ein komplett gefülltes hexagonales

Gitter aus Platin-Atomen. Dieses Strukturmodell wurde durch LEED-IV Studien belegt und liefert auch eine Erklärung für die weiteren Messungen im Verlauf dieser Arbeit [29].

Abbildung 6.7 zeigt LEED- und STM-Daten bei einer mittleren Dicke der Oberflächenlegierung CePt_5 von 2 u.c. Im LEED (Abb. 6.7 (a)) erkennt man nun deutlicher die (2×2) Struktur, die Spots sind jedoch immer noch sehr breit und überlagern die Spots des Substrates. Die Struktur des CePt_5 ist verglichen mit der doppelten Gitterkonstanten des Pt ((2×2) Struktur) etwas komprimierter, was mit der von Tang *et al.* [122] beobachteten (1.94×1.94) Rekonstruktion zwar übereinstimmt, aber die von Tang *et al.* gemessene Rotation nicht widerspiegelt. Essen *et al.* [123] sehen auch eine Rotation und eine ideale (2×2) Rekonstruktion, was meinem Ergebnis widerspricht. Letzteres gilt auch für Baddley *et al.* [124]. Der $(300 \times 300) \text{ nm}^2$ große Scanbereich in Abb. 6.7 (b) zeigt die Strukturen *B* und *C*, sowie die nicht-periodische Struktur *np* und die Struktur *m*. Letztere bedeckt allerdings wiederum nur wenige Prozent der Oberfläche. Der Großteil der Oberfläche wird von der Struktur *B* eingenommen, welche mit höherer Auflösung in der differentiellen Leitfähigkeit in Abb. 6.7 (c) dargestellt ist. Dabei symbolisieren die blauen Punkte die hexagonale Struktur des Übergitters und die grünen Punkte die hexagonale Struktur des CePt_5 -Gitters. Nimmt man nun die Fouriertransformierte (Abb. 6.7 (d)) dieses Bildes, so liegen die hexagonalen Spots des CePt_5 -Gitters außen (grüne Kreise) und die hexagonalen Spots des Übergitters sehr nahe am Zentrum des Bildes (blaue Kreise). Diese Markierung gilt für alle folgenden Bilder. Eine quantitative Auswertung von Abb. 6.7 (c) ergibt eine Periodizität des CePt_5 -Gitters von $(0,562 \pm 0,028) \text{ nm}$ und die Periodizität des Übergitters beträgt $(9,02 \pm 0,45) \text{ nm}$, welche ein geradzahliges Vielfaches der Gitterstruktur ist. Beide Gitter haben die gleiche Ausrichtung gegenüber den Kristallrichtungen des $\text{Pt}(111)$ -Substrates. Die oberste Pt-Lage bildet nach früheren Veröffentlichungen ein Kagomé-Gitter [122, 123]. Neuere LEED-IV-Studien gehen von einer geschlossenen hexagonalen $\text{Pt}(111)$ -Oberfläche aus [29]. Im LEED ist deutlich die (2×2) Struktur zu erkennen, allerdings konnte das Übergitter nicht aufgelöst werden. Dies kann zum einen daran liegen, dass die Periodizität der Überstruktur in der Größenordnung der Kohärenzlänge des LEED liegt oder zum anderen am Auflösungsvermögen

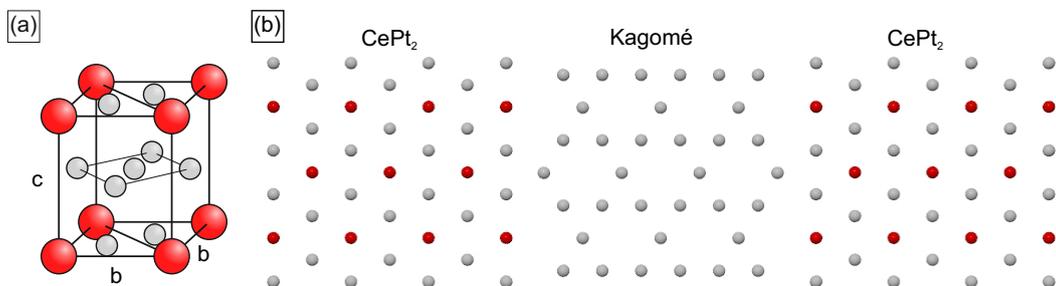


Abbildung 6.6: (a) Schematische Zeichnung der Einheitszelle der CePt_5 -Oberflächenlegierung mit den Gittervektoren $b = 0,439 \text{ nm}$ in der Ebene und $c = 0,537 \text{ nm}$ senkrecht zur Ebene. Rote (graue) Kugeln stellen Cer-(Platin-)atome dar. (b) Dieses gerenderte Kugelmodell zeigt expandiert die unterschiedlichen atomaren Lagen (CePt_2 , Kagomé, CePt_2) mehrerer Einheitszellen der CePt_5 -Oberflächenlegierung.

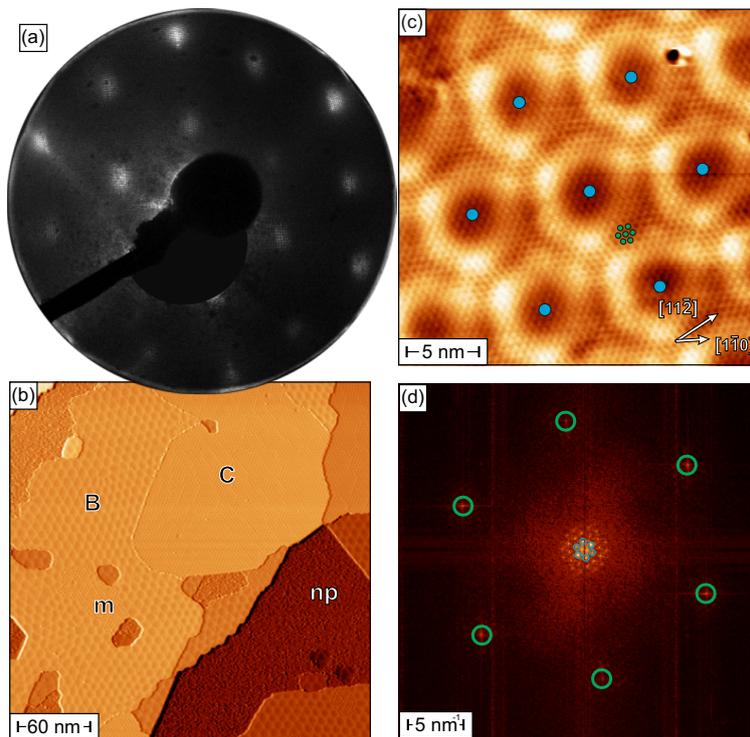


Abbildung 6.7: (a) Im LEED zeigen sich bei einer mittleren Dicke der Oberflächenlegierung von 2 u.c. sehr breite Spots, die einer (2×2) Struktur entsprechen ($E_p = 63$ eV). (b) In der großflächigen RTM-Aufnahme erkennt man die Strukturen *B* und *C*, sowie eine nicht-periodische Struktur *np* und eine Struktur *m*, die nur wenige Prozent der Oberfläche einnimmt. Scanparameter: $U = +1$ V, $I = 300$ pA. (c) Hochaufgelöste Karte der differentiellen Leitfähigkeit von Struktur *B* und die dazugehörige Fouriertransformierte (d). Scanparameter: $U = +1$ V, $I = 300$ pA. Die Gitterkonstante des CePt₅ und die Periodizität der Überstruktur sind in grün und blau markiert.

des LEED, da die Übergitterstruktur sehr nahe beieinander liegende Spots im LEED erzeugt. Beide Argumente würden zu breiten LEED Spots führen. LEED- und RTM-Daten zeigen keine widersprüchlichen Ergebnisse, sondern sind unterschiedliche Methoden, die unterschiedliche Aspekte desselben Verhaltens zeigen.

Baddeley *et al.* beobachten ebenfalls die Struktur *B* und interpretieren sie als eine einige atomare Lagen dicke, CePt₂ terminierte Oberflächenlegierung, die jedoch nicht vollständig relaxiert ist [124]. Bei meinen Messungen erhalte ich diese Struktur jedoch nur für Filme mit weniger als 2,5 u.c.. Ebenso ist die von mir gemessene Periodizität der Überstruktur etwas kleiner als die bei Baddeley *et al.* angegebenen 10 nm. Auf die *np* Struktur wird in dieser Arbeit nicht weiter eingegangen, da diese Oberfläche keine geordnete Struktur darstellt. Die Struktur *m* nimmt nur wenige Prozent der Oberfläche ein und wird deshalb ebenfalls nicht berücksichtigt. Auf die Struktur *C* wird im nächsten Abschnitt weiter eingegangen.

6.3.3 Filme mittlerer Dicke

Bei einer mittleren Dicke von 3 u.c. kommt es im Vergleich zu Abb. 6.7 (a) zu einer deutlichen Änderung im LEED-Bild. Die Auswertung der Positionen der Maxima in Abb. 6.8 (a) ergibt, dass die Gitterkonstante des CePt₅ immer noch nahezu das Doppelte der Gitterkonstanten des reinen Pt(111) beträgt. Allerdings ist die Struktur im LEED um 30° zur $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ -Richtung gedreht. Die Spots sind nun auch viel schärfer und es sind sogenannte Satelliten um die Haupt-

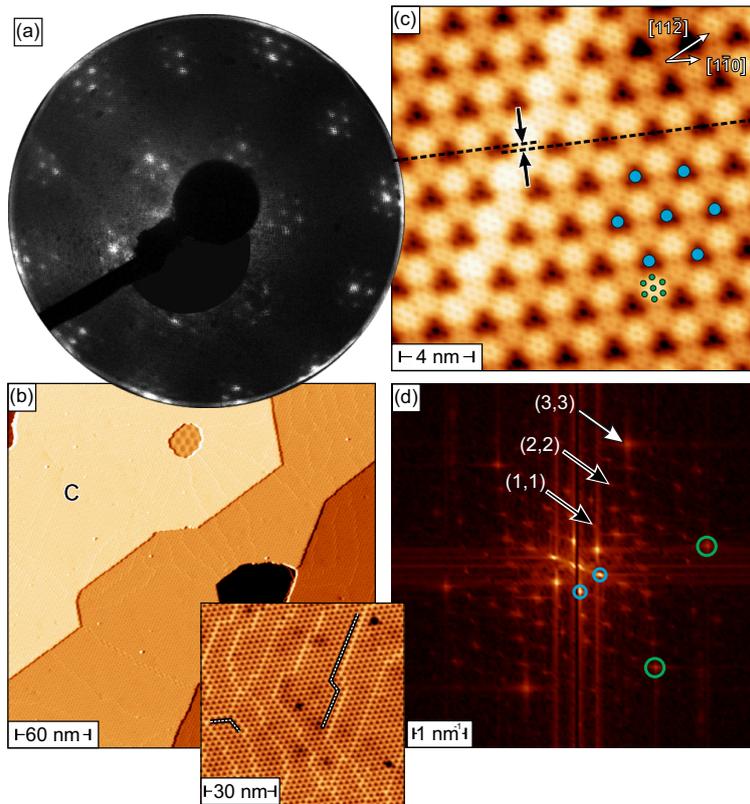


Abbildung 6.8: (a) Im LEED zeigen sich bei einer mittleren Dicke der Oberflächenlegierung von 3 u.c. Satelliten um die atomaren Spots des CePt_5 -Gitters ($E_p = 63 \text{ eV}$). (b) Die großflächige RTM-Aufnahme zeigt hauptsächlich Struktur C , sowie die nicht-periodische Struktur np (schwarz) und einen kleinen Teil der Oberfläche, der mit Struktur B bedeckt ist. Scanparameter: $U = +1 \text{ V}$, $I = 300 \text{ pA}$. Im RTM-Bild im Inset sind Domänenwände, die entlang der $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ -Richtungen verlaufen, zu erkennen, welche beispielhaft mit zwei weiß gestrichelten Linien markiert sind. (c) Hocho aufgelöstes Bild der Struktur C mit einer Domänenwand. Die schwarz gestrichelten Linien beschreiben den Versatz von der linken zur rechten Domäne und umgekehrt. Wiederum ist die atomare Struktur der Oberflächenlegierung CePt_5 in grün markiert und das Übergitter blau, wie dies auch in der Fouriertransformierten (d) des Bildes eingezeichnet ist. In der Fouriertransformierten sind mit schwarzen Pfeilen die (1,1) und (2,2) Spots markiert. Auf den (3,3) Spot, welcher mit dem atomaren Spot der CePt_5 -Oberflächenlegierung zusammenfällt, zeigt ein weißer Pfeil. Bei dieser Dicke ist zu beachten, dass das atomare Gitter des CePt_5 und das Gitter der Überstruktur um 30° zueinander gedreht ist.

spots des CePt_5 Gitters zu erkennen. Der relative Abstand der Satelliten zu den Hauptspots beträgt 0,187, was bei einer Abweichung von 3% einem Abstand von $1/(3\sqrt{3})$ entspricht. Diese Abweichung passt sehr gut in die Fehlertoleranz. Somit ergibt sich die Periodizität der Überstruktur der CePt_5 -Oberflächenlegierung zu $(3\sqrt{3} \times 3\sqrt{3})R30^\circ$. Abbildung 6.8 (b) zeigt die großflächige Bedeckung bei 3 u.c. mit der Struktur C . Die Struktur B und np (schwarzer Bereich) bedecken nur einen geringen Teil der Oberfläche. Im Inset ist die Struktur C mit hellen Linien zu erkennen, die durch den Scanbereich entlang der $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ -Richtungen verlaufen. Die Domänenwände (beispielsweise entlang der weiß gestrichelten Linien) unterteilen die einige 10 nm großen Domänen.

Die atomare Struktur der CePt₅-Oberflächenlegierung (grüne Punkte) ist im hochaufgelösten RTM-Bild von Abb. 6.8 (c) dargestellt. Der Abstand der nächsten Nachbarn in der terminierenden Pt-Oberfläche lässt sich zu $(0,548 \pm 0,027)$ nm bestimmen, was sehr gut zu dem Kagomé-Gitter des CePt₅ passt. Ebenso ist die hexagonale Struktur des Übergitters (blaue Punkte) zu erkennen, deren Periodizität $(2,87 \pm 0,14)$ nm beträgt. Dabei ist hier zu beachten, dass das Übergitter (blau) und das reguläre Gitter (Atomgitter) der nächsten Nachbarn (grün) im Vergleich zueinander um 30° gedreht sind. Ebenso ist das Kagomé-Gitter auch um 30° zur Pt(111)-Oberfläche rotiert, was man auch im LEED (Abb. 6.8 (a)) erkennen kann. LEED und RTM zeigen ein konsistentes Ergebnis, da bei beiden Analysemethoden die Rotation zu sehen ist. Beide Ergebnisse der unterschiedlichen Periodizitäten stimmen gut mit den Werten von Baddeley *et al.* überein, der für das Übergitter einen Wert von $(0,512 \pm 0,015)$ nm und für das Kagomé-Gitter einen Wert von $(2,68 \pm 0,08)$ nm erhält [124]. Die Überstruktur ist auch hier im Vergleich zur atomaren Struktur um 30° gedreht.

In Abb. 6.8 (c) erstreckt sich die Domänenwand (heller Streifen) von links unten nach mitte oben und trennt die linke von der rechten Domäne. Die schwarz gestrichelten Linien verlaufen direkt entlang der Minima des Übergitters und somit ist die Verschiebung von der linken zur rechten Domäne und umgekehrt deutlich zu erkennen. Anhand der atomaren Auflösung kann der Versatz zu einer Gitterkonstanten der rekonstruierten CePt₅-Oberflächenlegierung bestimmt werden. In der Fouriertransformierten (Abb. 6.8 (d)) von Abb. 6.8 (c) kann man ebenfalls wieder Satelliten (blau) um die Spots der atomaren Struktur (grün) des CePt₅ herum erkennen. Die schwarzen Pfeile deuten auf die (1,1) und (2,2) Spots der Überstruktur. Demnach fällt der (3,3) Spot (weißer Pfeil) mit dem atomaren Spot der CePt₅-Oberflächenlegierung zusammen, womit sich das Übergitter als $(3\sqrt{3} \times 3\sqrt{3})R30^\circ$ -Struktur herausstellt. Somit stimmen die RTM-Daten sehr gut mit den Daten aus dem LEED (Abb. 6.8 (a)) überein.

Eine ähnliche Struktur wurde für die Monolage CeAu₂ auf Au(111) gefunden und als Moiré-Gitter bezeichnet [125]. Essen *et al.* interpretieren das LEED-Bild aus Abb. 6.8 (a) als Mehrfachstreuung an unterschiedlichen Gittern, die z.B. lateral existieren können [123]. Nach Essen *et al.* sollten die (2×2) Rekonstruktion und die $(1,98 \times 1,98)R30^\circ$ Rekonstruktion z.B. lateral auf einer Längenskala unterhalb der Kohärenzlänge des LEED koexistieren, was nicht gegeben ist, wie das RTM Bild (Inset in Abb. 6.8 (c)) deutlich zeigt. Ebenso sollte nach der Interpretation von Essen *et al.* die (2×2) Rekonstruktion im LEED zu sehen sein, die allerdings in Abb. 6.8 (a) nicht zu erkennen ist. Bei dünneren Filmen war die (2×2) Struktur deutlich zu sehen (s. Abb. 6.7 (a)).

Es gibt auch noch die Möglichkeit, dass die Gitter vertikal gleichzeitig existieren. Demnach gibt es zwei Optionen, die durch das LEED alleine nicht unterschieden werden können. Das ist zum einen die eben genannte Mehrfachstreuung an zwei Gittern, die vertikal koexistieren, und zum anderen die Bildung eines Moirés, welches sich aufgrund der periodischen Variation der unterschiedlichen Absorptionsplätze des Films und der unterschiedlichen Gitterkonstanten

von Film und Substrat bildet. Bei der zuerst genannten Möglichkeit würde man im RTM einen glatten Film erwarten und bei der zweiten eine Wölbung der Oberfläche. Im RTM-Bild (Abb. 6.7 (b)) ist tatsächlich eine Modulation der Oberfläche zu erkennen, was für die Bildung eines Moiré-Gitters spricht. Anhand der LEED- und RTM-Daten kann nun der genaue Zusammenhang zwischen dem Substrat, der Oberflächenlegierung CePt₅ und dem Moiré-Gitter berechnet werden. Das Gitter der Oberflächenlegierung ist sowohl gegenüber dem Substrat betrachtet als auch gegenüber dem Moiré um 30° gedreht. Des Weiteren ist die Periodizität des Moiré-Gitters ein Vielfaches der Gitterkonstanten des CePt₅-Films, nämlich $a_{\text{Moiré}} = 3\sqrt{3}a_{\text{Film}}$. Ein Moiré-Gitter muss ein Vielfaches der Gitterkonstante des Substrates sein, somit ergibt sich die zweite Bedingung zu $a_{\text{Moiré}} = n \cdot a_{\text{Substrat}}$. Für den Film erhält man nach Einsetzen $a_{\text{Film}} = n \cdot \sqrt{3}/9a_{\text{Substrat}}$. Aus der Kombination der RTM- und der LEED-Daten kann gefolgert werden, dass die Gitterkonstante des Filmes größer als $\sqrt{3}a_{\text{Substrat}}$ (untere Grenze) und gleichzeitig kleiner als die doppelte Gitterkonstante des Substrates $2a_{\text{Substrat}}$ (obere Grenze) sein muss. Demnach muss $n = 10$ sein und das Moiré-Gitter ist eine (10×10) Struktur. Das Gitter des CePt₅-Films beläuft sich auf eine $(\frac{10}{9}\sqrt{3} \times \frac{10}{9}\sqrt{3})R30^\circ$ Struktur, die gegenüber dem Substrat gedreht ist. Ein gleiches Ergebnis, nämlich $(1, 1\sqrt{3} \times 1, 1\sqrt{3})R30^\circ$, hatten auch Garnier *et al.* für ein ähnliches LEED-Bild erhalten [126]. Unter der Annahme, dass der CePt₅-Film die Gitterkonstante des Substrats nicht beeinflusst, kann die Gitterkonstante des CePt₅-Films zu $a = 0,534$ nm bestimmt werden und entspricht somit einer Kompression gegenüber dem Volumenmaterial CePt₅ um 0,5%. Bei der Präparation von Filmen mit einer Dicke zwischen 2 u.c. und 3 u.c. kann es vorkommen, dass die Strukturen aus Abb. 6.7 (a) und Abb. 6.8 (a) gleichzeitig auftreten, wie dies auch schon Essen *et al.* zeigte [123]. Anhand der einzelnen LEED-Bilder ergibt sich ein Unterschied von $(0,97 \pm 0,03)$ zwischen den Gitterkonstanten des Films, wobei die kleinere Gitterkonstante dem dickeren Film zugeordnet wird. Nach einem ähnlichen Vorgehen wie zuvor beschrieben kommt man auf eine berechnete Gitterkonstante von 0,551 nm bei einer mittleren Dicke von 2 u.c., was einer $(1,98 \times 1,98)$ Struktur entspricht. Abbildung 6.9 stellt die Entwicklung der Oberflächenstrukturen von CePt₅-Filmen im Schichtdickenbereich zwischen 3 u.c. und 4,5 u.c. dar. Das LEED-Bild in Abb. 6.9 (a) zeigt eine $(3\sqrt{3} \times 3\sqrt{3})R30^\circ$ Struktur, wie auch schon in Abb. 6.8 (a) zu sehen war, da beide Oberflächen von Struktur *C* dominiert sind. Bei einer mittleren Dicke von 3 u.c. erhält man eine RTM-Aufnahme, die Abb. 6.9 (b) entspricht, in welcher die Oberfläche zu über 90% von der Struktur *C* bedeckt ist. Die Periodizität der Struktur *C* beträgt auch hier $(2,87 \pm 0,14)$ nm und die Korrugation ungefähr 80 pm. Nur ein kleiner Teil der Oberfläche wird von der Struktur *C'* (dunkel gefärbter Bereich in Abb. 6.9 (b)) eingenommen, deren Korrugation bei ungefähr 40 pm liegt. Die Struktur *C'* behält die Periodizität und die Rotation der Struktur *C* bei. Das dreidimensionale gerenderte Bild im Inset von Abb. 6.9 (b) zeigt einen Ausschnitt des RTM Bildes aus Abb. 6.9 (b), wobei die Struktur *C* *C'* umrahmt. Bei genauerer Analyse des Überganges *C* zu *C'* erkennt man, dass die Moiré Gitter um 1/3 der Periodizität des Gitters entlang der

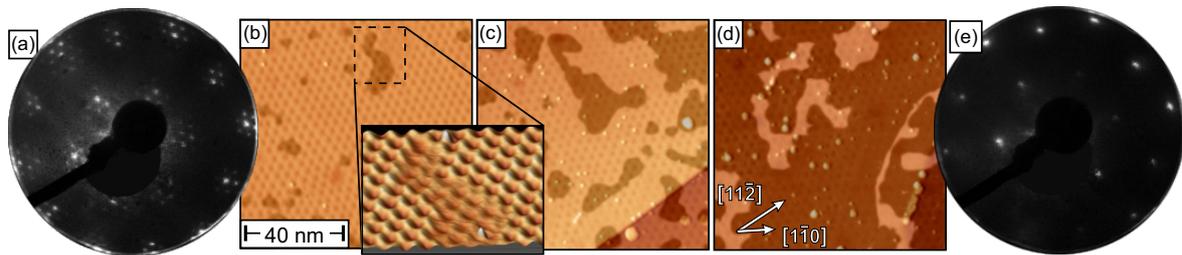


Abbildung 6.9: (a) Im LEED, welches der vorherigen Abb. 6.8 (a) entspricht, zeigen sich bei einer mittleren Dicke der Oberflächenlegierung von 3 u.c. Satelliten um die atomaren Spots des CePt₅-Gitters ($E_p = 63$ eV). (b) Bei einer Filmdicke von 3 u.c. bedeckt die Struktur *C* (hell eingefärbter Bereich) zu über 90% die Oberfläche und nur wenige Prozent werden von der Struktur *C'* (dunkel eingefärbter Bereich) eingenommen. Im Inset sieht man einen dreidimensional gerenderten Ausschnitt des RTM Bildes. (c) Erhöht man die Filmdicke weiter, so bedeckt bei einer CePt₅-Filmdicke von 3,75 u.c. die Struktur *C'* schon zu 35% die Oberfläche (dunkle Bereiche nehmen zu). (d) Mit einer Filmdicke von 4,25 u.c. wird die Oberfläche zu über 80% von der Struktur *C'* eingenommen. (e) Die LEED Aufnahme bei einer ungefähren Dicke von 4,25 u.c. zeigt, dass die Orientierung des CePt₅-Filmes sich nicht verändert hat, aber die Satelliten nicht mehr zu erkennen sind.

$\langle 1\bar{1}0 \rangle$ -Richtung verschoben sind, d.h. hier findet eine Phasenverschiebung zwischen Struktur *C'* und *C* statt. Bei weiterer Erhöhung der CePt₅-Filmdicke steigt der Oberflächenanteil der Struktur *C'* und die Struktur *C* nimmt ab, wie man anhand der Abb. 6.9 (b-d) verfolgen kann. In Abb. 6.9 (c) (Filmdicke 3,75 u.c.) beträgt der Anteil der Struktur *C'* ungefähr 35% und in Abb. 6.9 (d) bei einer Filmdicke von 4,25 u.c. über 80%. Die Intensität der Satellitenpunkte der Struktur im LEED werden mit zunehmender Filmdicke immer schwächer und können oberhalb von 4 u.c. nicht mehr aufgelöst werden. Dieses Verhalten kann durch eine kinematische Näherung erklärt werden, in welcher die Intensität der Satelliten mit dem Quadrat der Korrugation der Oberfläche einhergeht und somit konsistent zu den gemessenen Daten ist.

Abbildung 6.10 zeigt ein Modell, anhand dessen der Unterschied in Bezug auf Korrugation und Phasenverschiebung der Struktur *C'* zur Struktur *C* erklärt werden kann. Das Modell entspricht einem Querschnitt aus dem Bereich des Insets von Abb. 6.9 (b). Grüne, gelbe und braune Kugeln repräsentieren die unterschiedlichen atomaren Lagen des fcc-Platinkristalls. Der Unterschied zwischen Struktur *C* und *C'* beträgt eine Einheitszelle CePt₅, was in dem Kugelmodell gezeigt wird. Solch ein Unterschied kann aufgrund der Einheitszelle des CePt₅ nur zustande kommen, wenn das Substrat eine doppelte atomare Stufenkante bildet, wie dies im Zentrum der Abbildung gezeigt ist. Der CePt₅-Film wird durch graue und rote bzw. blaue Kugeln, die nochmal jeweils Platin- und Cer-Atome repräsentieren, dargestellt. Die Gitterkonstanten des CePt₅-Filmes und des Substrates unterscheiden sich geringfügig. Dadurch kommt es erst zu einer Entstehung eines Moiré-Gitters. Dies wiederum hat zur Folge, dass die Cer-Atome verschiedene Gitterplätze einnehmen, was im Modell durch die unterschiedliche Färbung der Kugeln dargestellt wird. Dabei steht eine blaue Kugel für einen Adsorptionsplatz auf dem Pt-Atom und eine rote Kugel für einen Adsorptionsplatz zwischen den Pt-Atomen.

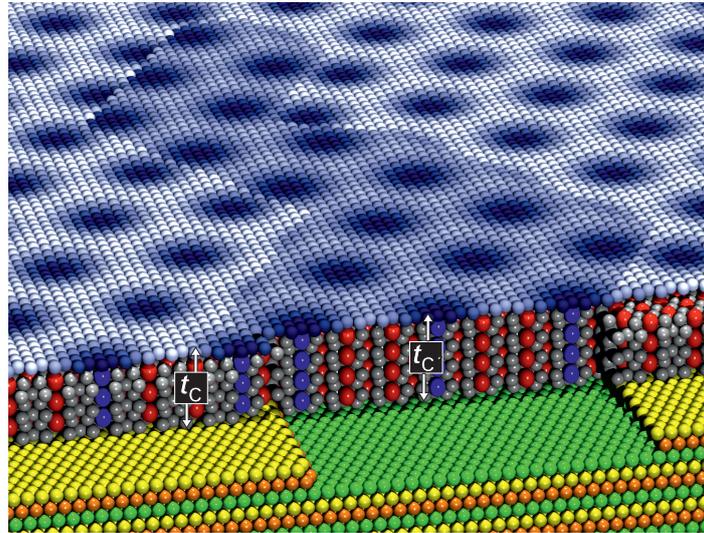


Abbildung 6.10: Ein strukturelles Modell der CePt_5 -Oberflächenlegierung, in welchem die Struktur C (heller Bereich) und C' (dunkler Bereich) anhand eines Durchchnitts entsprechend der Oberfläche des Insets von Abb. 6.9 (b) erklärt werden können. Die Platin-Atome sind weiß, gelb, braun, grau und grün eingefärbt. Die Cer-Atome zwischen (auf) den Platin-Atomen rot (blau).

Bei der Ausbildung einer $(3\sqrt{3} \times 3\sqrt{3})R30^\circ$ Struktur, welche das Modell repräsentiert (analog zum Inset in Abb. 6.9 (b)), kommt es nun zu einer alternierenden Abfolge zweier blauer Kugeln (Platz zwischen den Atomen) und einer roten Kugel (Platz auf einem Atom) entlang der $\langle 11\bar{2} \rangle$ -Richtung.

Zur besseren Visualisierung der Korrgation wird die Oberfläche in einem weiß-blauen Farbcode dargestellt. Im Modell entsprechen die zwei Strukturen C und C' unterschiedlichen Filmdicken $t_C = n$ u.c. und $t_{C'} = (n + 1)$ u.c., wodurch die zwei gemachten Beobachtungen erklärt werden können. Die Verschiebung um ein Drittel der Periodizität entlang der $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ -Richtung kann sehr gut durch die Verschiebung der Adsorptionsplätze aufgrund der doppelten Stufenkante des Substrates erläutert werden, dessen Stapelfolge ABC-ABC-... ist. Des Weiteren ist bekannt, dass die Korrgation eines Moiré-Gitters mit steigender Filmdicke abnimmt, was tatsächlich mit dem RTM beobachtet wurde und gleichfalls zum Verschwinden der Satelliten Spots unterhalb der Detektionsgrenze führt [2, 127].

6.3.4 Dicke Filme

Bei dicken Filmen (ab $t \geq 6$ u.c.) findet eine erneute Rotation der Überstruktur statt, so dass die atomare Struktur des Filmes und die Überstruktur nun wieder in die gleiche Richtung zeigen, wie dies bei Filmen mit 1 u.c. der Fall war. Anhand der LEED-Bilder in Abb. 6.11 kann diese Zurück-Rotation gut beobachtet werden. Für eine Filmdicke von 7 u.c. übertrifft die Intensität der Spots der gedrehten Überstruktur noch die Intensität der schon vorhandenen Spots der

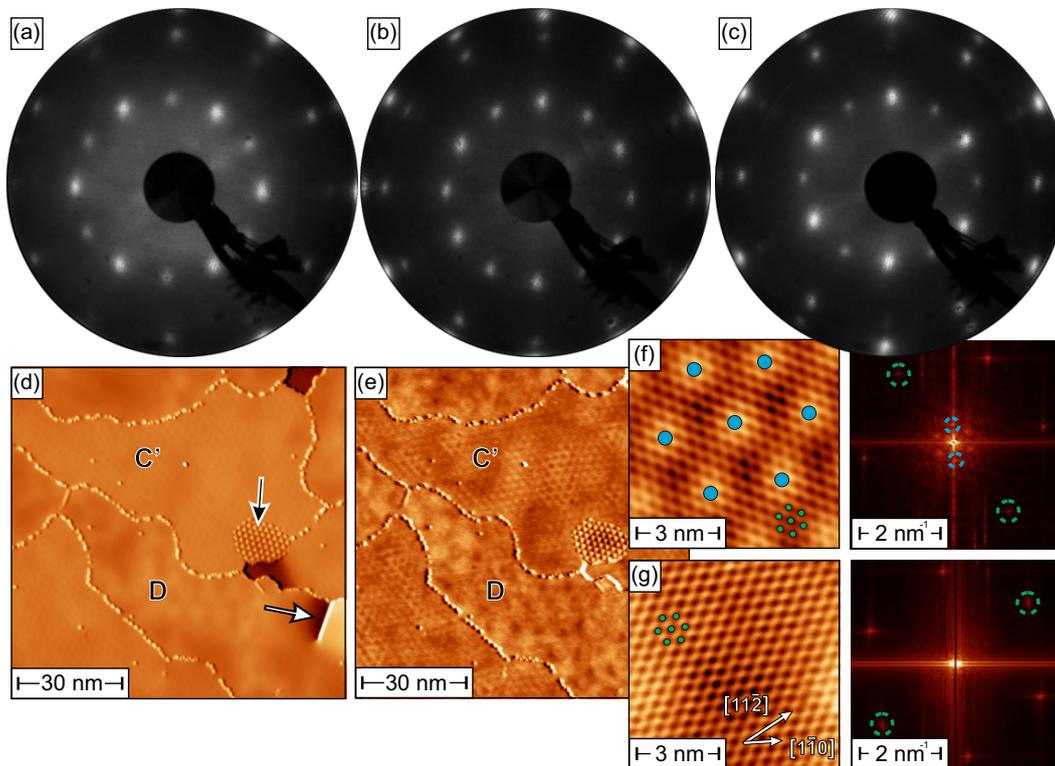


Abbildung 6.11: Die LEED-Bilder repräsentieren den Verlauf der koexistierenden um 30° gedrehten und zurück-gedrehten Überstruktur bei 7 u.c. (a), 8 u.c. (b) und 10 u.c. (c) ($E_p = 50$ eV). (d) Großflächige RTM-Aufnahme bei einer Filmdicke von $t = 10$ u.c., welche die Struktur C' , die zurück-rotierte Struktur D und eine nicht benannte Minoritätsstruktur (schwarzer Pfeil) aufweist. Scanparameter: $U = +1$ V, $I = 300$ pA. Der weiße Pfeil zeigt auf eine Versetzungslinie. Die Strukturen C' und D sind durch Domänenwände getrennt. (e) Gleichzeitig zu (d) wurde die differentielle Leitfähigkeit aufgenommen. Scanparameter: $U = +1$ V, $I = 300$ pA, $U_{\text{mod}} = 10$ mV. Hochaufgelöste RTM-Aufnahme (links) der Strukturen C' (f) und D (g), sowie die dazugehörigen Fouriertransformierten (rechts). In allen vier Bildern markieren die blauen Kreise das Moiré-Gitter (soweit vorhanden) und die grünen Kreise die atomare Struktur des CePt₅.

wieder zurückgedrehten Überstruktur (s. Abb. 6.11 (a)). Bei einer Filmdicke von 8 u.c. sind beide Überstrukturen mit fast gleicher Intensität vorhanden (s. Abb. 6.11 (b)), bis schließlich bei einer Filmdicke von 10 u.c. die Intensität der Spots der zurückgedrehten Überstruktur deutlich überwiegt (s. Abb. 6.11 (c)). Die Gitterkonstante beider Filme ist innerhalb des Fehlers gleich. Erhöht man die Filmdicke weiter zu 11 u.c., so ist die rotierte Struktur im LEED-Bild nicht mehr zu sehen, was in dieser Arbeit aber ebenfalls nicht gezeigt wird, da diese Messungen nicht Gegenstand der vorliegenden Arbeit sind. Die LEED-Bilder werden ausführlich in der Dissertation von C. Praetorius behandelt [102].

Tang *et al.* beobachtete, dass die Koexistenz der gedrehten und nicht-gedrehten Überstruktur von der Anfangsmenge Cer abhängt. Durch meine Versuche konnte ich zeigen, dass die Zurück-Rotation kontinuierlich mit steigender Cermenge voranschreitet, was anhand der RTM-Bilder in Abb. 6.11 zu erkennen ist. Abbildung 6.11 (d) zeigt die Topographie eines 10 u.c. dicken

CePt₅-Filmes und Abb. 6.11 (e) die gleichzeitig aufgenommene differentielle Leitfähigkeit. In der Topographie sind die Strukturen C' und D zu erkennen, wobei letztere schon bei Baddeley *et al.* erwähnt wurde. Neben den eben aufgelisteten Strukturen ist noch eine weitere unbenannte Struktur in dem RTM-Bild zu sehen, die hier aber aufgrund des geringen Oberflächenanteils nicht berücksichtigt wird. Die Strukturen C' und D sind durch Domänenwände separiert, auf welchen Erhebungen erscheinen, die wahrscheinlich überschüssige Atome repräsentieren. Der weiße Pfeil deutet auf eine Versetzungslinie hin, wie sie auch bei dicken Dysprosiumfilmen auf W(110) schon beobachtet wurde [128]. In der Topographie wirkt die Struktur C' relativ flach, allerdings erkennt man das Moiré-Gitter in der differentiellen Leitfähigkeit (s. Abb. 6.11 (e)). Gegen die Struktur C' wirkt Struktur D hügeliger, was man auch in der Korrugation von bis zu 100 pm erkennt.

In der atomaren Auflösung in Abb. 6.11 (f) (links) ist das Moiré-Gitter der Struktur C' mit blauen Punkten und das atomare Gitter des CePt₅-Filmes mit grünen Kreisen versehen. Farblich entsprechende Markierungen finden sich auch in der Fouriertransformierten (rechts in Abb. 6.11 (f)). In der Fouriertransformierten kann man gut erkennen, dass die Struktur immer noch um 30° gegenüber dem atomaren Gitter des CePt₅-Filmes gedreht ist. Für das atomare Gitter ergibt sich ein nächster Nachbar-Abstand von $(0,566 \pm 0,028)$ nm und die Periodizität des Übergitters beträgt $(2,87 \pm 0,14)$ nm, was sehr gut mit Struktur C übereinstimmt.

Die Struktur D ist in dem hochaufgelöstem RTM-Bild in Abb. 6.11 (g) dargestellt, wobei hier zu beachten ist, dass es keine Überstruktur gibt und demnach nur das atomare Gitter des CePt₅-Filmes markiert ist (grüne Kreise). Sowohl in den LEED-Daten als auch in den RTM-Daten erkennt man eine Zurück-Rotation der atomaren Struktur des CePt₅-Filmes. Somit zeigen die atomaren Spots in der Fouriertransformierten (Abb. 6.11 (g)) wieder in die $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ -Richtung des Pt(111)-Substrates. Die Gitterkonstante der Struktur D liegt mit $(0,558 \pm 0,028)$ nm sehr nahe am Wert des CePt₅ Volumenmaterials.

Es gibt zwei unterschiedliche Interpretationsansätze für den Bereich der dicken Filme. Einer ist die Koexistenz der Strukturen C' und D , da sie ähnliche Formierungsenergien besitzen. Eine andere Erklärung ist, dass die beiden Strukturen auf unterschiedliche Filmdicken zurückzuführen sind, wie dies auch schon bei Filmen mittlerer Dicke gefunden wurde. Demnach würde die Oberfläche mit steigender Filmdicke immer mehr von der Struktur D eingenommen werden und es kommt zu einer ähnlichen Entwicklung, wie in Abb. 6.9 schon gezeigt wurde. Allerdings geben sowohl das LEED als auch das RTM keine Informationen über die Tiefe des Filmes und der strukturellen Eigenschaften an der Grenzfläche zwischen Einkristall und Film.

6.4 Spektroskopische Eigenschaften der CePt₅-Oberflächenlegierung

Nachdem im vorherigen Kapitel die strukturellen Eigenschaften der CePt₅-Oberflächenlegierung untersucht wurden, wird in diesem Kapitel auf die spektroskopischen Eigenschaften eingegangen. Hierbei stellen sich die zentralen Fragen, ob das CePt₅ ein schweres Fermionensystem bildet und bei welchen Filmdicken dies geschieht. Zur Klärung der eben genannten Fragen wurde auf jeder großflächig hergestellten Oberfläche, die in Kap.6.3 charakterisiert wurde, RTS durchgeführt und gemäß der oben in Abschnitt 6.1 erläuterten theoretischen Vorhersagen nach einem kleinen Peak bzw. Dip um das Fermineiveau gesucht. Zur besseren Übersicht erfolgt die Einteilung der Spektren in Analogie zu Kap. 6.3.

6.4.1 Dünne Filme

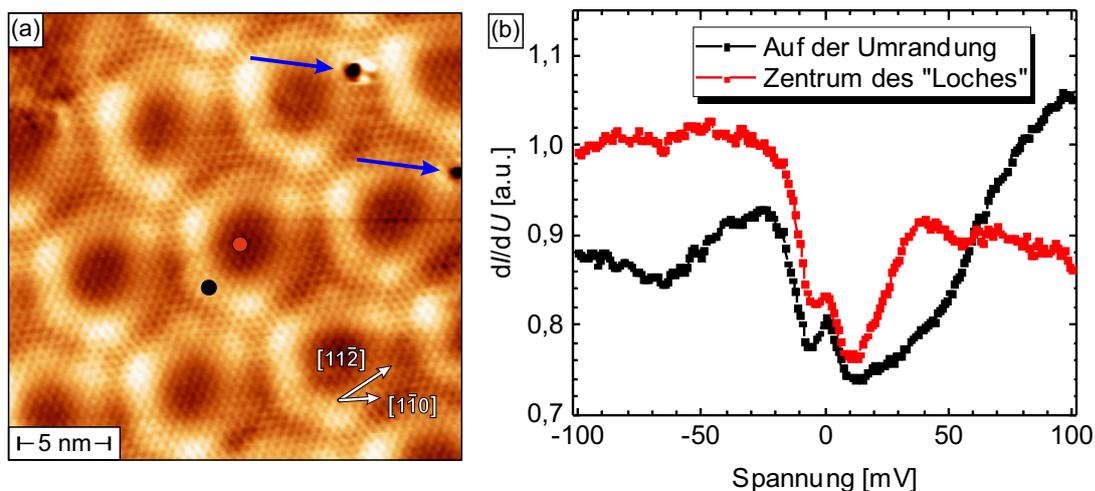


Abbildung 6.12: (a) Das hochauflöste RTM-Bild von Struktur *B*. Der rote (innerhalb eines "Loches") und schwarze (auf der Umrandung eines "Loches") Punkt markieren die ausgewählten Kurven (b), die repräsentativ für die Struktur *B* sind. Defekte sind mit einem blauen Pfeil markiert.

Bei dünnen Filmen bildet sich hauptsächlich die Struktur *B* aus, die in Abb. 6.12 (a) gezeigt ist. Der rote und schwarze Punkt in dem RTM-Bild markieren die Aufnahmeorte der Spektroskopiekurven (s. Abb. 6.12 (b)), die aufgrund der Variation des Moiré-Gitters ausgewählt wurden. Abb. 6.12 (b) zeigt repräsentativ je ein innerhalb eines "Loches" und auf der Umrandung gemessenes Spektrum. Bei beiden Kurven ist ein breiter Dip und ein kleiner Peak um die Fermienergie zu erkennen. Der breite Dip ist zum einen zu breit für ein schweres Fermionensystem, da ich eine Hybridisierungslücke im Bereich von 2 meV erwarte [28] und zum

anderen nicht reproduzierbar. Letzteres gilt auch für den kleinen Peak am Fermineveu. Eine Diskussion der Daten findet am Ende des Kapitels statt.

6.4.2 Filme mittlerer Dicke

Bei Filmen mittlerer Dicke treten größtenteils Struktur C und C' auf, wobei Struktur C' im folgenden Abschnitt behandelt wird, da diese Struktur auch bei etwas dickeren Filmen vorkommt. Abbildung 6.13 (a) zeigt das RTM-Bild mit Struktur C , auf welcher eine GRID-Spektroskopie durchgeführt wurde (vgl. Kap. (2.15)). Die Markierung der Spektren erfolgt analog zu Struktur B , d.h. rote Punkte stehen für Spektren innerhalb eines "Loches" und schwarze Punkte für Spektren auf der Umrandung. Die gemittelten Spektren sind in Abb. 6.13 (b) gezeigt und man erkennt bei der roten Kurve einen kleinen Dip um das Fermineveu. Einen leichten Einbruch um das Fermineveu zeigt die schwarze Kurve. Allerdings lässt sich dieser Dip nicht für alle Messungen reproduzieren und erscheint zudem bei RTS auf anderen metallischen Kristalloberflächen (nicht gezeigt).

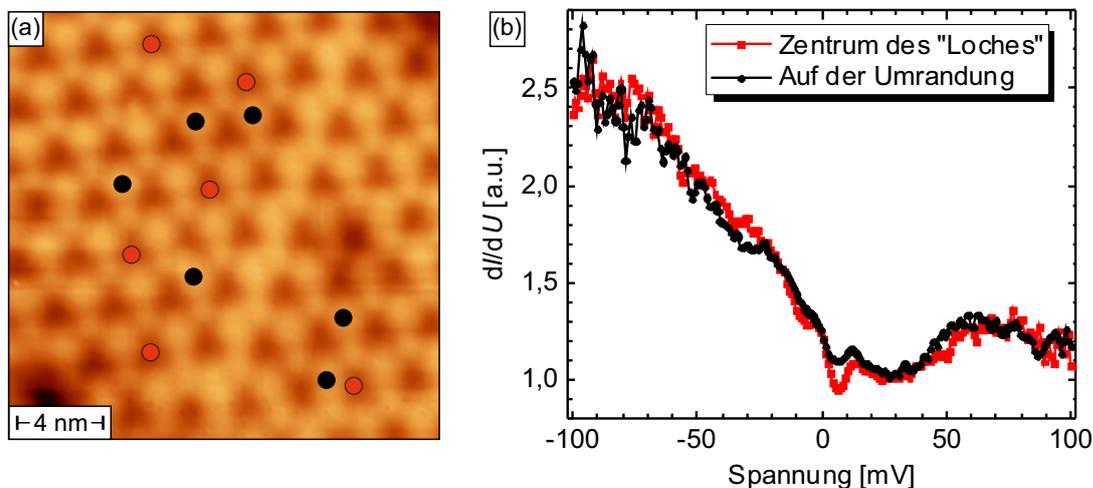


Abbildung 6.13: (a) Das RTM-Bild, welches für die GRID-Spektroskopie ausgewählt wurde, zeigt komplett die Struktur C . Wiederum markieren die roten (innerhalb des "Loches") und schwarzen (auf der Umrandung) Punkte, die Orte der ausgewählten Spektren, über die gemittelt wurde und welche in (b) abgebildet sind.

6.4.3 Dicke Filme

Die Strukturen C' und D treten bei dicken Filmen auf und sind im RTM-Übersichtsbild in Abb. 6.14 (a) zu sehen. Ebenso ist eine Minoritätsstruktur zu erkennen und eine Verset-

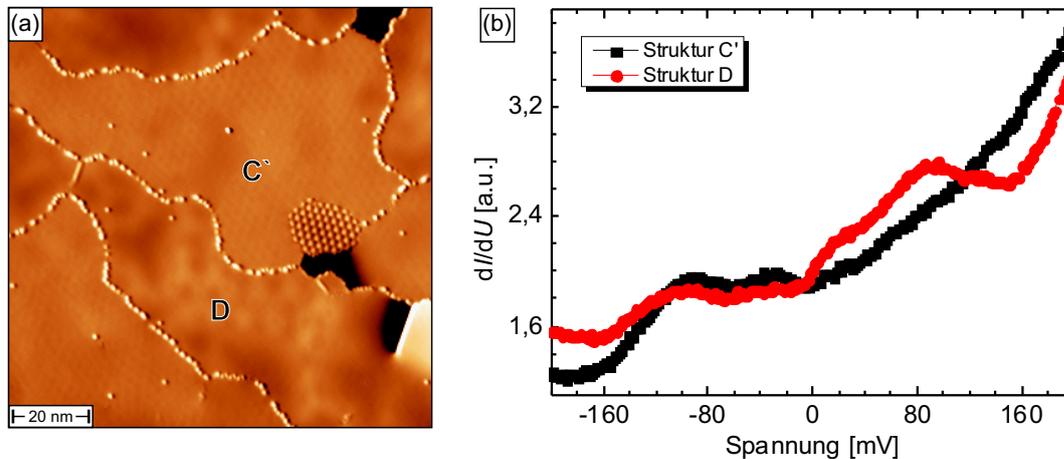


Abbildung 6.14: (a) Die dI/dU -Karte zeigt eine großflächige Aufnahme von Struktur C' und D , sowie einer Minoritätsstruktur. Auf den Strukturen C' und D wurde jeweils eine lokale RTS durchgeführt und über mehrere Spektren gemittelt. Die gemittelten Spektren der Strukturen C' und D sind in (b) dargestellt.

zungslinie, auf welche nicht weiter eingegangen wird. Die, mittels lokaler RTS, detektierten Spektroskopiekurven der Strukturen C' und D sind in Abb. 6.14 (b) dargestellt. Bei beiden Kurven lässt sich kein ausgeprägter Peak oder Dip um das Fermi-niveau erkennen.

6.4.4 Diskussion

Für jede rekonstruierte Oberfläche wurde eine große Anzahl an Spektren erstellt, um ein Übersehen der Senke in der RTS aufgrund der geringen Pixelanzahl oder ähnliche Fehler zu vermeiden. Allerdings gibt es keinen Hinweis in den Spektren der unterschiedlich dicken Filme auf eine Ausbildung eines schweren Fermionensystems. Vergleicht man nun die Filmdicke von M. Klein *et al.* mit den hier untersuchten Filmen, so sollte es bei der Struktur C zu einer Ausbildung eines schweren Fermionensystems kommen, was sich anhand meiner Daten nicht belegen lässt [28, 118]. Dies kann an mehreren Punkten liegen. Zum einen könnte die Energieauflösung des benutzten Systems zu gering sein, da die theoretische Energieauflösung des Systems nach Kap. (2.6) bei 3,3 meV liegt und die Hybridisierungslücke eine energetische Breite von ca. 2 meV bei 13 K besitzen soll [28]. Des Weiteren zeigte eine IV-LEED Studie, dass die Grenzfläche zum Vakuum bei CePt₅-Filmen mit einem hexagonalen Film aus Pt-Atomen terminiert ist und nicht, wie ursprünglich angenommen wurde, aus einem Kagomé-Gitter besteht, wie dies im Volumenmaterial CePt₅ vorkommt. Dadurch kann es bei der RTM und RTS, die aufgrund der Detektion der in das Vakuum exponentiell abfallenden Zustandsdichte extrem oberflächensensitiv sind, dazu kommen, dass die oberste Schicht der Pt-Atome das

geringe Signal des darunter liegenden schweren Fermionensystems abschirmt und letzteres in den Messungen somit nicht detektiert werden kann [29, 129].

Würde man dennoch an diesem System weitere RTM-Messungen vornehmen wollen, könnte man es bei noch tieferen Temperaturen versuchen, um das Signal des schweren Fermionensystems weiter zu erhöhen. Messungen bei tieferen Temperaturen (< 1 K) sind an dem Kammeraufbau, wie es in Kap. 3 vorgestellt wurde, nicht möglich.

7 Zusammenfassung

Zum Abschluss werden die wesentlichen Punkte der experimentellen Ergebnisse zusammengefasst und Ausblicke auf weitere Messungen gegeben. Das erste experimentelle Kapitel beschäftigte sich mit der Ni(111)-Oberfläche. Mit der Methode der Quasiteilcheninterferenz konnten die zur Elektronenstreuung beitragenden Bänder ermittelt werden und deren Ansatzpunkt und effektive Masse abschnittsweise bestimmt werden. Der Ansatzpunkt des Majoritätsoberflächenzustands wurde mit Hilfe eines parabolischen Fits für kleine k -Werte auf $E - E_F = (-160 \pm 8) \text{ meV}$ berechnet und die effektive Masse für diesen Bereich auf $m^* = (+0,14 \pm 0,04) m_e$. In der Dispersionsrelation des Majoritätsbandes ist ein Knick zu erkennen. Die Dispersion des Bandes verändert sich oberhalb des Knicks (höhere Energien), was auf eine Hybridisierung dieses Bandes mit Volumenzuständen des Ni deutet. Der Kurvenverlauf für das Minoritätsband des Oberflächenzustandes entspricht dem des hybridisierten Majoritätsband, weshalb das Minoritätsband ebenfalls mit den Volumenzuständen hybridisiert. Durch die Dispersionsrelation des Majoritäts- und Minoritätsoberflächenzustandes konnte die Austauschspaltung des Oberflächenzustandes zu $\Delta E_{\text{ex}} = (100 \pm 8) \text{ meV}$ ermittelt werden. Für kleine k -Werte wurde der Ansatzpunkt und die effektive Masse der Majoritätsoberflächenresonanz in den besetzten Zuständen des Ni zu $E - E_F = (-235 \pm 5) \text{ meV}$ und $m^* = (+0,36 \pm 0,05) m_e$ berechnet. Die Bänder die zur RTS beitragen, konnten über hexagonal lochartige Inseln ermittelt werden, die in einem eindimensionalen Quantentrogmodell interpretiert wurden. Zusätzlich wurde in der RTS ein Zustand an jeder Stufenkante der hexagonal lochartigen Inseln gefunden, die eine dreiatomige Konfiguration besitzen, dessen Ursache bis zur Abgabe dieser Arbeit noch nicht vollständig geklärt war.

Im darauffolgenden Kapitel wurden dünne Eisenfilme auf einer möglichst defektfreien Rh(001)-Oberfläche mit den Möglichkeiten des RTMs untersucht. Dabei wurde nach der erfolgreichen Präparation einer sauberen Rh(001)-Oberfläche auf der ersten Lage Fe eine antiferromagnetische $c(2 \times 2)$ Ordnung festgestellt, deren Magnetisierung senkrecht zur Oberfläche zeigt. Auf der zweiten Lage bildet sich unterhalb der Curietemperatur von 75 K eine ferromagnetische Ordnung aus, deren leichte Magnetisierungsrichtung senkrecht zur Probenoberfläche gerichtet ist. Die Domänengröße steigt auf der zweiten Lage mit steigender Bedeckung von wenigen zehn Nanometern auf einige hundert Nanometer an, sobald die zweite Lage vollständig geschlossen ist. Bis zu 3,4 AL Fe werden die Domänen aufgrund der Beiträge der Formanisotropie, der dipolaren Energie und der Domänenwandenergie wieder kleiner, bis es bei noch höheren

Bedeckungen vermutlich zu einer Umkehr der leichten Magnetisierungsachse von senkrecht zu waagrecht zur Probenoberfläche kommt. Zusätzlich wurde auf der zweiten Lage Fe eine elektronische Modulation mit einer Periodizität von $(1, 13 \pm 0, 12)$ nm entlang der [010]-Richtung und $(1, 12 \pm 0, 12)$ nm entlang der [100]-Richtung. Auf der dritten und vierten Lage bilden sich ebenfalls Modulation mit größeren Periodizitäten. Die Streifen werden als Ladungsdichtewelle interpretiert, da sie unabhängig vom Magnetismus sind und keine mit dem RTM messbaren atomaren Verschiebungen aufweisen. Hierzu werden noch weitere Messungen mit ARPES folgen. Eine temperaturabhängige Korrelation zwischen magnetischer und elektronischer Ordnung auf der zweiten Lage, wie sie experimentell beobachtet wurde, konnte theoretisch berechnet werden.

Im letzten experimentellen Kapitel wurde die Oberflächenlegierung $\text{CePt}_5/\text{Pt}(111)$ analysiert. Durch die Variation der Menge an aufgedampften Cer auf die saubere $\text{Pt}(111)$ -Oberfläche und anschließendem Heizen konnten unterschiedliche dicke Filme der Oberflächenlegierung strukturell und elektronisch untersucht werden. Dabei konnte für Bedeckungen mit weniger als einer atomaren Lage Cer keine geordnete Struktur (*np* Struktur) beobachtet werden. Für Filmdicken von 2 u.c. konnte ich eine (2×2) Struktur auf der Oberfläche beobachten und für 3 u.c. eine $(3\sqrt{3} \times 3\sqrt{3})R30^\circ$ Struktur, die bis zu einer Filmdicke von 8 u.c. mit kleinen Variationen beobachtbar ist. Der Übergang von 3 u.c. zu 4,5 u.c. konnte anhand eines Kugelmodells erklärt werden, da sich die unterschiedlichen Filmdicken (3 u.c. und 4 u.c.) um zwei atomare Lagen Pt unterscheiden und sich dadurch eine Phasenverschiebung an der Struktur der Oberfläche bildet. Ab einer Bedeckung von 6 u.c. erscheint eine weitere Struktur, die keine Moiré-Struktur mehr besitzt. Die atomare Struktur folgt wieder den Richtungen des $\text{Pt}(111)$ -Kristalls und die Gitterkonstante nähert sich der Gitterkonstanten des Volumenmaterials CePt_5 weiter an. Alle großflächig herstellbaren Strukturen wurden mit LEED-Bildern von C. Praetorius verglichen und die Strukturen stimmten mit den von mir gemessenen Strukturen überein. Ebenso wurde an allen großflächig auftretenden Strukturen RTS durchgeführt, die allerdings bei keiner Struktur einen reproduzierbaren Hinweis auf ein schweres Fermionensystem zeigt. Dies kann an der terminierenden $\text{Pt}(111)$ -Oberfläche liegen, die das Signal des schweren Fermionensystems abschirmt, oder an der Energieauflösung des Systems. Bei dem System $\text{CePt}_5/\text{Pt}(111)$ könnte man noch versuchen zu niedrigeren Temperaturen zu gehen, was allerdings mit der im Rahmen dieser Arbeit verwendeten Messapparatur nicht möglich ist.

Literaturverzeichnis

- [1] A. Kubetzka, P. Ferriani, M. Bode, S. Heinze, G. Bihlmayer, K. von Bergmann, O. Pietzsch, S. Blügel, und R. Wiesendanger. Revealing antiferromagnetic order of the Fe monolayer on W(001): Spin-polarized scanning tunneling microscopy and first-principles calculations. *Phys. Rev. Lett.*, 94:087204, Mar 2005. (zitiert auf S. 1)
- [2] M. Bode, R. Pascal, M. Dreyer, und R. Wiesendanger. Nanostructural and local electronic properties of Fe/W(110) correlated by scanning tunneling spectroscopy. *Phys. Rev. B*, 54:R8385–R8388, Sep 1996. (zitiert auf S. 1 und 79)
- [3] S. Heinze, K. von Bergmann, M. Menzel, J. Brede, A. Kubetzka, R. Wiesendanger, G. Bihlmayer, und S. Blügel. Spontaneous atomic-scale magnetic skyrmion lattice in two dimensions. *Nat. Phys.*, 7(9):713–718, 09 2011. (zitiert auf S. 1 und 41)
- [4] S. Krause, L. Berbil-Bautista, G. Herzog, M. Bode, und R. Wiesendanger. Current-induced magnetization switching with a spin-polarized scanning tunneling microscope. *Science*, 317(5844):1537–1540, 2007. (zitiert auf S. 1)
- [5] M. Bode, A. Kubetzka, K. von Bergmann, O. Pietzsch, und R. Wiesendanger. Imaging the switching behavior of superparamagnetic nanoislands by spin-polarized scanning tunneling microscopy. *Microscopy Research and Technique*, 66(2-3):117–125, 2005. (zitiert auf S. 1 und 41)
- [6] S. Krause, A. Sonntag, J. Hermenau, J. Friedlein, und R. Wiesendanger. High-frequency magnetization dynamics of individual atomic-scale magnets. *Phys. Rev. B*, 93:064407, Feb 2016. (zitiert auf S. 1)
- [7] N. Romming, C. Hanneken, M. Menzel, J. E. Bickel, B. Wolter, K. von Bergmann, A. Kubetzka, und R. Wiesendanger. Writing and deleting single magnetic skyrmions. *Science*, 341(6146):636–639, 2013. (zitiert auf S. 1)
- [8] P. Aynajian, E. H. da Silva Neto, A. Gyenis, R. E. Baumbach, J. D. Thompson, Z. Fisk, E. D. Bauer, und A. Yazdani. Visualizing heavy fermions emerging in a quantum critical Kondo lattice. *Nature*, 486(7402):201–206, June 2012. (zitiert auf S. 1, 66 und 67)
- [9] J. Braun und M. Donath. Contest between surface resonances and surface states at $3d$

- ferromagnets. *EPL (Europhysics Letters)*, 59(4):592, 2002. (zitiert auf S. 1)
- [10] T. Ohwaki, D. Wortmann, H. Ishida, S. Blügel, und K. Terakura. Spin-polarized field emission from Ni(001) and Ni(111) surfaces. *Phys. Rev. B*, 73:235424, Jun 2006. (zitiert auf S. 1, 24, 26 und 28)
- [11] Y. Nishimura, M. Takeya, M. Higashiguchi, A. Kimura, M. Taniguchi, H. Narita, Y. Cui, M. Nakatake, K. Shimada, und H. Namatame. Surface electronic structures of ferromagnetic Ni(111) studied by STM and angle-resolved photoemission. *Phys. Rev. B*, 79:245402, Jun 2009. (zitiert auf S. 1, 23, 24 und 28)
- [12] T. Okuda, J. Lobo-Checa, W. Auwärter, M. Morscher, M. Hoesch, V. N. Petrov, M. Hengsberger, A. Tamai, A. Dolocan, C. Cirelli, M. Corso, M. Muntwiler, M. Klöckner, M. Roos, J. Osterwalder, und T. Greber. Exchange splitting of the three $\bar{\Gamma}$ surface states of Ni(111) from three-dimensional spin- and angle-resolved photoemission spectroscopy. *Phys. Rev. B*, 80:180404, Nov 2009. (zitiert auf S. 1)
- [13] S. Pons, P. Mallet, L. Magaud, und J. Y. Veullen. Investigation of the Ni(111) Shockley-like surface state using confinement to artificial nanostructures. *EPL (Europhysics Letters)*, 61(3):375, 2003. (zitiert auf S. 1)
- [14] J. Lobo-Checa, T. Okuda, M. Hengsberger, L. Patthey, T. Greber, P. Blaha, und J. Osterwalder. Hidden surface states on pristine and H-passivated Ni(111): Angle-resolved photoemission and density-functional calculations. *Phys. Rev. B*, 77:075415, Feb 2008. (zitiert auf S. 1, 24 und 26)
- [15] J. Kutzner, R. Paucksch, C. Jabs, H. Zacharias, und J. Braun. High-resolution photoelectron emission spectroscopy of surface states on Ni(111). *Phys. Rev. B*, 56:16003–16009, Dec 1997. (zitiert auf S. 1, 24, 25, 28, 29 und 30)
- [16] L. V. Dzemyantsova, M. Karolak, F. Lofink, A. Kubetzka, B. Sachs, K. von Bergmann, S. Hankemeier, T. O. Wehling, R. Frömter, H. P. Oepen, A. I. Lichtenstein, und R. Wiesendanger. Multiscale magnetic study of Ni(111) and graphene on Ni(111). *Phys. Rev. B*, 84:205431, Nov 2011. (zitiert auf S. 1, 23, 24, 26 und 36)
- [17] M. Donath, F. Passek, und V. Dose. Surface state contribution to the magnetic moment of Ni(111). *Phys. Rev. Lett.*, 70:2802–2805, May 1993. (zitiert auf S. 1, 24, 25, 28 und 29)
- [18] M. Donath. Spin-dependent electronic structure at magnetic surfaces: The low-Miller-index surfaces of nickel. *Surface Science Reports*, 20(5–6):251 – 316, 1994. (zitiert auf S. 1)
- [19] K.-F. Braun und K.-H. Rieder. Ni(111) surface state observed with scanning tunneling microscopy. *Phys. Rev. B*, 77:245429, Jun 2008. (zitiert auf S. 1 und 24)

-
- [20] L. Niebergall, G. Rodary, H. F. Ding, D. Sander, V. S. Stepanyuk, P. Bruno, und J. Kirschner. Electron confinement in hexagonal vacancy islands: Theory and experiment. *Phys. Rev. B*, 74:195436, Nov 2006. (zitiert auf S. 1 und 30)
- [21] J. Li, W.-D. Schneider, R. Berndt, und S. Crampin. Electron confinement to nanoscale Ag islands on Ag(111): A quantitative study. *Phys. Rev. Lett.*, 80:3332–3335, Apr 1998. (zitiert auf S. 1 und 30)
- [22] M. Takada, P. L. Gastelois, M. Przybylski, und J. Kirschner. A complex magnetic structure of ultrathin Fe films on Rh(001) surfaces. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 329:95 – 100, 2013. (zitiert auf S. 1, 42, 44 und 52)
- [23] D. Spišák und J. Hafner. Structural, magnetic, and chemical properties of thin Fe films grown on Rh(100) surfaces investigated with density functional theory. *Phys. Rev. B*, 73:155428, Apr 2006. (zitiert auf S. 1, 41, 48 und 52)
- [24] A. Al-Zubi, G. Bihlmayer, und S. Blügel. Magnetism of 3d transition-metal monolayers on Rh(100). *Phys. Rev. B*, 83:024407, Jan 2011. (zitiert auf S. 1, 41 und 48)
- [25] K. Hayashi, M. Sawada, H. Yamagami, A. Kimura, und A. Kakizaki. Magnetic dead layers in Fe films induced by a lattice mismatch at an interface. *Physica B: Condensed Matter*, 351(3–4):324 – 327, 2004. Proceedings of The International Symposium on Synchrotron Radiation Research for Spin and Electronic States in *d* and *f* Electron Systems. (zitiert auf S. 2, 42, 46 und 53)
- [26] K. Hayashi, M. Sawada, A. Harasawa, A. Kimura, und A. Kakizaki. Structure and magnetism of Fe thin films grown on Rh(001) studied by photoelectron spectroscopy. *Phys. Rev. B*, 64:054417, Jul 2001. (zitiert auf S. 2, 42 und 44)
- [27] K. Hayashi, M. Sawada, H. Yamagami, A. Kimura, und A. Kakizaki. Magnetic dead layers induced by strain at fct Fe/Rh(001) interface. *Journal of the Physical Society of Japan*, 73(9):2550–2553, 2004. (zitiert auf S. 2 und 42)
- [28] M. Klein, A. Nuber, H. Schwab, C. Albers, N. Tobita, M. Higashiguchi, J. Jiang, S. Fukuda, K. Tanaka, K. Shimada, M. Mulazzi, F. F. Assaad, und F. Reinert. Coherent heavy quasiparticles in a CePt₅ surface alloy. *Phys. Rev. Lett.*, 106:186407, May 2011. (zitiert auf S. 2, 66, 68, 82 und 84)
- [29] C. Praetorius, M. Zinner, G. Held, und K. Fauth. Surface termination of CePt₅/Pt(111): The key to chemical inertness. *Phys. Rev. B*, 92:195427, Nov 2015. (zitiert auf S. 2, 73 und 85)
- [30] R. Wiesendanger. *Scanning Probe Microscopy and Spectroscopy: methods and application*. Cambridge University Press, 1994. (zitiert auf S. 3, 4, 6, 7, 8, 9 und 10)
-

- [31] C. J. Chen. *Introduction to Scanning Tunneling Microscopy*. Oxford University Press, 2008. (zitiert auf S. 3 und 6)
- [32] M Bode. Spin-polarized scanning tunnelling microscopy. *Reports on Progress in Physics*, 66(4):523, 2003. (zitiert auf S. 3, 11, 12 und 14)
- [33] J. Bardeen. Tunnelling from a many-particle point of view. *Phys. Rev. Lett.*, 6:57–59, Jan 1961. (zitiert auf S. 5)
- [34] J. Tersoff und D. R. Hamann. Theory of the scanning tunneling microscope. *Phys. Rev. B*, 31:805–813, Jan 1985. (zitiert auf S. 5, 6 und 7)
- [35] J. Tersoff und D. R. Hamann. Theory and application for the scanning tunneling microscope. *Phys. Rev. Lett.*, 50:1998–2001, Jun 1983. (zitiert auf S. 5, 6 und 7)
- [36] C. J. Chen. Tunneling matrix elements in three-dimensional space: The derivative rule and the sum rule. *Phys. Rev. B*, 42:8841–8857, Nov 1990. (zitiert auf S. 6 und 7)
- [37] J. Wintterlin, J. Wiechers, H. Brune, T. Gritsch, H. Höfer, und R. J. Behm. Atomic-resolution imaging of close-packed metal surfaces by scanning tunneling microscopy. *Phys. Rev. Lett.*, 62:59–62, Jan 1989. (zitiert auf S. 7)
- [38] C. Wittneven, R. Dombrowski, S. H. Pan, und R. Wiesendanger. A low-temperature ultrahigh-vacuum scanning tunneling microscope with rotatable magnetic field. *Review of Scientific Instruments*, 68(10):3806–3810, 1997. (zitiert auf S. 7)
- [39] SPECS Zurich GmbH, Technoparkstr. 1, 8005 Zurich (Switzerland). (zitiert auf S. 9)
- [40] R. J. Hamers. Atomic-resolution surface spectroscopy with the scanning tunneling microscope. *Annual Review of Physical Chemistry*, 40(1):531–559, 1989. (zitiert auf S. 10)
- [41] J. C. Slonczewski. Conductance and exchange coupling of two ferromagnets separated by a tunneling barrier. *Phys. Rev. B*, 39:6995–7002, Apr 1989. (zitiert auf S. 11)
- [42] O. Pietzsch. *Magnetic Imaging by Spin Polarized Scanning Tunneling Spectroscopy Applied to Ultrathin Fe/W(110) Films*. PhD thesis, University of Hamburg, 1998. (zitiert auf S. 12)
- [43] S. Heinze. *First-Principles Theory of Scanning Tunneling Microscopy Applied to Transition-Metal Surfaces*. PhD thesis, Hamburg, 2003. (zitiert auf S. 12 und 13)
- [44] S. Heinze, P. Kurz, D. Wortmann, G. Bihlmayer, und S. Blügel. Complex magnetism in ultra-thin films: atomic-scale spin structures and resolution by the spin-polarized scanning tunneling microscope. *Applied Physics A*, 75(1):25–36, 2002. (zitiert auf S. 12 und 13)
- [45] S. Heinze. Simulation of spin-polarized scanning tunneling microscopy images of na-

- noscale non-collinear magnetic structures. *Applied Physics A*, 85(4):407–414, 2006. (zitiert auf S. 12 und 13)
- [46] D. Wortmann, S. Heinze, Ph. Kurz, G. Bihlmayer, und S. Blügel. Resolving complex atomic-scale spin structures by spin-polarized scanning tunneling microscopy. *Phys. Rev. Lett.*, 86:4132–4135, Apr 2001. (zitiert auf S. 12 und 13)
- [47] F. Reinert, G. Nicolay, S. Schmidt, D. Ehm, und S. Hüfner. Direct measurements of the L -gap surface states on the (111) face of noble metals by photoelectron spectroscopy. *Phys. Rev. B*, 63:115415, Mar 2001. (zitiert auf S. 14, 15 und 16)
- [48] P.M. Echenique, R. Berndt, E.V. Chulkov, Th. Fauster, A. Goldmann, und U. Höfer. Decay of electronic excitations at metal surfaces. *Surface Science Reports*, 52(7–8):219 – 317, 2004. (zitiert auf S. 14, 15, 16, 18 und 24)
- [49] A. Goldmann, V. Dose, und G. Borstel. Empty electronic states at the (100), (110), and (111) surfaces of nickel, copper, and silver. *Phys. Rev. B*, 32:1971–1980, Aug 1985. (zitiert auf S. 14 und 16)
- [50] M. F. Crommie, C. P. Lutz, und D. M. Eigler. Imaging standing waves in a two-dimensional electron gas. *Nature*, 363(6429):524–527, June 1993. (zitiert auf S. 15)
- [51] P. Sessi, V. M. Silkin, I. A. Nechaev, T. Bathon, L. El-Kareh, E. V. Chulkov, P. M. Echenique, und M. Bode. Direct observation of many-body charge density oscillations in a two-dimensional electron gas. *Nat. Commun.*, 6:–, October 2015. (zitiert auf S. 16)
- [52] J. Kliewer, R. Berndt, E. V. Chulkov, V. M. Silkin, P. M. Echenique, und S. Crampin. Dimensionality effects in the lifetime of surface states. *Science*, 288(5470):1399–1402, 2000. (zitiert auf S. 16 und 18)
- [53] S. Crampin, H. Jensen, J. Kröger, L. Limot, und R. Berndt. Resonator design for use in scanning tunneling spectroscopy studies of surface electron lifetimes. *Phys. Rev. B*, 72:035443, Jul 2005. (zitiert auf S. 16)
- [54] E. B. Foxman, P. L. McEuen, U. Meirav, Ned S. Wingreen, Yigal Meir, Paul A. Belk, N. R. Belk, M. A. Kastner, und S. J. Wind. Effects of quantum levels on transport through a Coulomb island. *Phys. Rev. B*, 47:10020–10023, Apr 1993. (zitiert auf S. 17)
- [55] A. Krönlein, J. Kemmer, P.-J. Hsu, und M. Bode. Quasiparticle interference scattering of spin-polarized Shockley-like surface state electrons: Ni(111). *Physical Review B*, 89(15), Apr 2014. (zitiert auf S. 23)
- [56] J. Braun und M. Donath. Theory of photoemission from surfaces. *Journal of Physics: Condensed Matter*, 16(26):S2539, 2004. (zitiert auf S. 24, 25, 27, 28 und 29)

- [57] J. Wiebe, F. Meier, K. Hashimoto, G. Bihlmayer, S. Blügel, P. Ferriani, S. Heinze, und R. Wiesendanger. Unoccupied surface state on Pt(111) revealed by scanning tunneling spectroscopy. *Phys. Rev. B*, 72:193406, Nov 2005. (zitiert auf S. 29)
- [58] A. A. Ünal, C. Tusche, S. Ouazi, S. Wedekind, C.-T. Chiang, A. Winkelmann, D. Sander, J. Henk, und J. Kirschner. Hybridization between the unoccupied Shockley surface state and bulk electronic states on Cu(111). *Phys. Rev. B*, 84:073107, Aug 2011. (zitiert auf S. 29)
- [59] M. F. Crommie, C. P. Lutz, und D. M. Eigler. Confinement of electrons to quantum corrals on a metal surface. *Science*, 262(5131):218–220, 1993. (zitiert auf S. 30)
- [60] A. Krönlein. Quasi-Teilchen Interferenz an Ni(111). *Masterarbeit*, 2014. (zitiert auf S. 30 und 32)
- [61] J. Li, W.-D. Schneider, S. Crampin, und R. Berndt. Tunnelling spectroscopy of surface state scattering and confinement. *Surface Science*, 422(1–3):95 – 106, 1999. (zitiert auf S. 32)
- [62] F. Liu, Y. Chen, Y. Wang, Z. Liu, Z. Hu, X. Yang, und W. Luo. Self-diffusion dynamics processes relevant to 2D homoepitaxy growth of Ni adatom on Ni(111) surface. *Physica B: Condensed Matter*, 444:1 – 5, 2014. (zitiert auf S. 32 und 33)
- [63] J. Kemmer, S. Wilfert, J. Kügel, T. Mauerer, P.-J. Hsu, und M. Bode. Growth and magnetic domain structure of ultrathin Fe films on Rh(001). *Physical Review B*, 91(18), May 2015. (zitiert auf S. 42)
- [64] P.-J. Hsu, J. Kügel, J. Kemmer, F. P. Toldin, T. Mauerer, M. Vogt, F. F. Assaad, und M. Bode. Coexistence of charge and ferromagnetic order in fcc Fe. *Nat. Commun.*, 7:–, March 2016. (zitiert auf S. 42 und 55)
- [65] R. E. Peierls. *Quantum theory of solids*. Number 23. Oxford University Press, 1955. (zitiert auf S. 42)
- [66] G. Grüner. The dynamics of charge-density waves. *Reviews of modern physics*, 60(4):1129, Oct 1988. (zitiert auf S. 42)
- [67] W. Tremel und E. W. Finckh. Ladungsdichtewellen: Elektrische Leitfähigkeit. *Chemie in unserer Zeit*, 38(5):326–339, 2004. (zitiert auf S. 42 und 43)
- [68] P. Monceau, N.P. Ong, A. Meerschaut Portis, A. Meerschaut, und J. Rouxel. Electric field breakdown of charge-density-wave-induced anomalies in NbSe₃. *Physical Review Letters*, 37(10):602, Sep 1976. (zitiert auf S. 43)
- [69] R.M. Fleming, D.E. Moncton, und D.B. McWhan. X-ray scattering and electric field

- studies of the sliding mode conductor NbSe₃. *Physical Review B*, 18(10):5560, Nov 1978. (zitiert auf S. 43)
- [70] H. Haifeng und Z. Dianlin. Charge density wave gap formation of NbSe₃ detected by electron tunneling. *Physical review letters*, 82(4):811, Jan 1999. (zitiert auf S. 43)
- [71] H. W. Yeom, S. Takeda, E. Rotenberg, I. Matsuda, K. Horikoshi, J. Schaefer, C. M. Lee, S. D. Kevan, T. Ohta, T. Nagao, und S. Hasegawa. Instability and charge density wave of metallic quantum chains on a silicon surface. *Phys. Rev. Lett.*, 82:4898–4901, Jun 1999. (zitiert auf S. 43)
- [72] S. S. Lee, J. R. Ahn, N. D. Kim, J. H. Min, C. G. Hwang, J. W. Chung, H. W. Yeom, S. V. Ryjkov, und S. Hasegawa. Adsorbate-induced pinning of a charge-density wave in a quasi-1D metallic chains: Na on the In/Si(111)-(4 × 1) surface. *Physical Review Letters*, 88(19):196401, Apr 2002. (zitiert auf S. 43)
- [73] K. Rossnagel, L. Kipp, und M. Skibowski. Charge-density-wave phase transition in 1T-TaSe₂: Excitonic insulator versus band-type Jahn-Teller mechanism. *Physical Review B*, 65(23):235101, May 2002. (zitiert auf S. 43)
- [74] R. Claessen, B. Burandt, H. Carstensen, und M. Skibowski. Conduction-band structure and charge-density waves in 1T-TaS₂. *Physical Review B*, 41(12):8270, Apr 1990. (zitiert auf S. 43)
- [75] T. Valla, A. V. Fedorov, P. D. Johnson, J. Xue, K. E. Smith, und F.J. DiSalvo. Charge-density-wave-induced modifications to the quasiparticle self-energy in 2H-TaSe₂. *Physical review letters*, 85(22):4759, Nov 2000. (zitiert auf S. 43)
- [76] H.-J. Ernst, E. Hulpke, und J. P. Toennies. Evidence for a charge density wave driven reconstruction in W(001). *EPL (Europhysics Letters)*, 10(8):747, 1989. (zitiert auf S. 43)
- [77] K. Terakura, I. Terakura, und Y. Teraoka. Theory of the electronic origin of the surface reconstruction of the (001) surface of Mo and W. *Surface Science*, 86:535–541, 1979. (zitiert auf S. 43)
- [78] K.-F. Braun, S. Fölsch, G. Meyer, und K.-H. Rieder. Observation of charge-density wave domains on the Cr (110) surface by low-temperature scanning tunneling microscopy. *Physical Review Letters*, 85(16):3500, Oct 2000. (zitiert auf S. 43)
- [79] G. Gruner. *Density waves in solids*, volume 89. Westview Press, 2000. (zitiert auf S. 44)
- [80] C. Hwang, A. K. Swan, und S. C. Hong. Suppression of ferromagnetic order of Fe overlayers on the Rh(001) surface. *Phys. Rev. B*, 60:14429–14433, Nov 1999. (zitiert auf S. 44)
- [81] A. M. Begley, S. K. Kim, F. Jona, und P. M. Marcus. Growth mode and atomic

- structure of ultrathin Fe films on Rh(001) determined by quantitative low-energy electron diffraction. *Phys. Rev. B*, 48:1786–1793, Jul 1993. (zitiert auf S. 44)
- [82] M. Bode, S. Krause, L. Berbil-Bautista, S. Heinze, und R. Wiesendanger. On the preparation and electronic properties of clean W(110) surfaces. *Surface Science*, 601(16):3308 – 3314, 2007. (zitiert auf S. 44 und 45)
- [83] Kh. Zakeri, T.R.F. Peixoto, Y. Zhang, J. Prokop, und J. Kirschner. On the preparation of clean tungsten single crystals. *Surface Science*, 604(2):L1 – L3, 2010. (zitiert auf S. 44 und 45)
- [84] Materials Technology & Crystals for Research, Development and Production, Im Langenbroich 20, 52428 Juelich, Germany. (zitiert auf S. 44)
- [85] T. Mauerer. *Ladungsdichtemodulationen an unterschiedlichen Probensystemen: Chrom auf Wolfram(110), Iridiumditellurid und Eisen auf Rhodium(001)*. PhD thesis, University of Würzburg, 2015. (zitiert auf S. 46, 47, 55 und 56)
- [86] M. Heide, G. Bihlmayer, und S. Blügel. Dzyaloshinskii-Moriya interaction accounting for the orientation of magnetic domains in ultrathin films: Fe/W(110). *Phys. Rev. B*, 78:140403, Oct 2008. (zitiert auf S. 49)
- [87] S. Meckler, N. Mikuszeit, A. Preßler, E. Y. Vedmedenko, O. Pietzsch, und R. Wiesendanger. Real-space observation of a right-rotating inhomogeneous cycloidal spin spiral by spin-polarized scanning tunneling microscopy in a triple axes vector magnet. *Phys. Rev. Lett.*, 103:157201, Oct 2009. (zitiert auf S. 49)
- [88] M. Bode, M. Heide, K. von Bergmann, P. Ferriani, S. Heinze, G. Bihlmayer, A. Kubetzka, O. Pietzsch, S. Blugel, und R. Wiesendanger. Chiral magnetic order at surfaces driven by inversion asymmetry. *Nature*, 447(7141):190–193, May 2007. (zitiert auf S. 49)
- [89] U. K. Roszler, A. N. Bogdanov, und C. Pfleiderer. Spontaneous skyrmion ground states in magnetic metals. *Nature*, 442(7104):797–801, August 2006. (zitiert auf S. 49)
- [90] S. Mühlbauer, B. Binz, F. Jonietz, C. Pfleiderer, A. Rosch, A. Neubauer, R. Georgii, und P. Böni. Skyrmion lattice in a chiral magnet. *Science*, 323(5916):915–919, February 2009. (zitiert auf S. 49)
- [91] A. Fert, V. Cros, und J. Sampaio. Skyrmions on the track. *Nat. Nano*, 8(3):152–156, March 2013. (zitiert auf S. 49)
- [92] P. Bruno. Geometrically constrained magnetic wall. *Phys. Rev. Lett.*, 83:2425–2428, Sep 1999. (zitiert auf S. 50)
- [93] O. Pietzsch, A. Kubetzka, M. Bode, und R. Wiesendanger. Real-space observation of

- dipolar antiferromagnetism in magnetic nanowires by spin-polarized scanning tunneling spectroscopy. *Phys. Rev. Lett.*, 84:5212–5215, May 2000. (zitiert auf S. 50)
- [94] N. Kazantseva, R. Wieser, und U. Nowak. Transition to linear domain walls in nanoconstrictions. *Phys. Rev. Lett.*, 94:037206, Jan 2005. (zitiert auf S. 50)
- [95] A. Hubert und R. Schäfer. *Magnetic Domains*. Springer Berlin Heidelberg, 2000. (zitiert auf S. 50)
- [96] J. Choi, J. Wu, C. Won, Y. Z. Wu, A. Scholl, A. Doran, T. Owens, und Z. Q. Qiu. Magnetic bubble domain phase at the spin reorientation transition of ultrathin Fe/Ni/Cu(001) film. *Phys. Rev. Lett.*, 98:207205, May 2007. (zitiert auf S. 50)
- [97] C. Won, Y. Z. Wu, J. Choi, W. Kim, A. Scholl, A. Doran, T. Owens, J. Wu, X. F. Jin, H. W. Zhao, und Z. Q. Qiu. Magnetic stripe melting at the spin reorientation transition in Fe/Ni/Cu(001). *Phys. Rev. B*, 71:224429, Jun 2005. (zitiert auf S. 52)
- [98] Y. Z. Wu, C. Won, A. Scholl, A. Doran, H. W. Zhao, X. F. Jin, und Z. Q. Qiu. Magnetic stripe domains in coupled magnetic sandwiches. *Phys. Rev. Lett.*, 93:117205, Sep 2004. (zitiert auf S. 52)
- [99] Y. Yafet und E. M. Gyorgy. Ferromagnetic strip domains in an atomic monolayer. *Phys. Rev. B*, 38:9145–9151, Nov 1988. (zitiert auf S. 52)
- [100] J. V. Barth, H. Brune, G. Ertl, und R. J. Behm. Scanning tunneling microscopy observations on the reconstructed Au(111) surface: Atomic structure, long-range superstructure, rotational domains, and surface defects. *Phys. Rev. B*, 42:9307–9318, Nov 1990. (zitiert auf S. 56)
- [101] H. Nishimori und G. Ortiz. *Elements of phase transitions and critical phenomena*. OUP Oxford, 2010. (zitiert auf S. 60)
- [102] C. Praetorius. *Ce M_{4,5} XAS and XMCD as Local Probes for Kondo and Heavy Fermion Materials - A study of CePt₅/Pt(111) Surface Intermetallics*. PhD thesis, University of Würzburg, 2016. (zitiert auf S. 63, 68, 71 und 80)
- [103] J. Kemmer, C. Praetorius, A. Krönlein, P.-J. Hsu, K. Fauth, und M. Bode. Structural analysis of the intermetallic surface compound CePt₅/Pt(111). *Phys. Rev. B*, 90(195401), 2014. (zitiert auf S. 63)
- [104] W. J. de Haas, J. de Boer, und G. J. van dän Berg. The electrical resistance of gold, copper and lead at low temperatures. *Physica*, 1(7):1115 – 1124, 1934. (zitiert auf S. 63)
- [105] J. Kondo. Resistance minimum in dilute magnetic alloys. *Progress of Theoretical Physics*, 32(1):37–49, 1964. (zitiert auf S. 63)

- [106] J. Kondo. Effect of ordinary scattering on exchange scattering from magnetic impurity in metals. *Phys. Rev.*, 169:437–440, May 1968. (zitiert auf S. 63)
- [107] P. W. Anderson. Localized magnetic states in metals. *Phys. Rev.*, 124:41–53, Oct 1961. (zitiert auf S. 63)
- [108] J. Li, W.-D. Schneider, R. Berndt, und B. Delley. Kondo scattering observed at a single magnetic impurity. *Phys. Rev. Lett.*, 80:2893–2896, Mar 1998. (zitiert auf S. 63 und 65)
- [109] N. Quaas, M. Wenderoth, A. Weismann, R. G. Ulbrich, und K. Schönhammer. Kondo resonance of single Co atoms embedded in Cu(111). *Phys. Rev. B*, 69:201103, May 2004. (zitiert auf S. 63)
- [110] J. Kügel, M. Karolak, Jacob Senkpiel, P.-J. Hsu, G. Sangiovanni, und M. Bode. Relevance of hybridization and filling of $3d$ orbitals for the Kondo effect in transition metal phthalocyanines. *Nano Letters*, 14(7):3895–3902, 2014. PMID: 24871813. (zitiert auf S. 63)
- [111] M. Ternes, A. J. Heinrich, und W.-D. Schneider. Spectroscopic manifestations of the Kondo effect on single adatoms. *Journal of Physics: Condensed Matter*, 21(5):053001, 2009. (zitiert auf S. 64, 65 und 66)
- [112] K. Nagaoka, T. Jamneala, M. Grobis, und M. F. Crommie. Temperature dependence of a single kondo impurity. *Phys. Rev. Lett.*, 88:077205, Feb 2002. (zitiert auf S. 65)
- [113] M. Ternes. *Scanning tunneling spectroscopy at the single atomic scale*. PhD thesis, Lausanne, 2006. (zitiert auf S. 66)
- [114] K. S. D. Beach und F. F. Assaad. Coherence and metamagnetism in the two-dimensional Kondo lattice model. *Phys. Rev. B*, 77:205123, May 2008. (zitiert auf S. 66)
- [115] M. Vojta. Orbital-selective mott transitions: Heavy fermions and beyond. *Journal of Low Temperature Physics*, 161(1):203–232, 2010. (zitiert auf S. 66)
- [116] L. C. Martin, M. Bercx, und F. F. Assaad. Fermi surface topology of the two-dimensional Kondo lattice model: Dynamical cluster approximation approach. *Phys. Rev. B*, 82:245105, Dec 2010. (zitiert auf S. 66)
- [117] S. Nakatsuji, D. Pines, und Z. Fisk. Two fluid description of the Kondo lattice. *Phys. Rev. Lett.*, 92:016401, Jan 2004. (zitiert auf S. 66)
- [118] H. Schwab, M. Mulazzi, J. Jiang, H. Hayashi, T. Habuchi, D. Hirayama, H. Iwasawa, K. Shimada, und F. Reinert. Character of valence-band states in the Kondo surface alloys $\text{CeAg}_x/\text{Ag}(111)$ and $\text{CePt}_5/\text{Pt}(111)$. *Phys. Rev. B*, 85:125130, Mar 2012. (zitiert auf S. 66, 68 und 84)
- [119] A. R. Schmidt, M. H. Hamidian, P. Wahl, F. Meier, A. V. Balatsky, J. D. Garrett, T. J.

- Williams, G. M. Luke, und J. C. Davis. Imaging the Fano lattice to a ‘hidden order’ transition in URu₂Si₂. *Nature*, 465(7298):570–576, June 2010. (zitiert auf S. 66)
- [120] P. Aynajian, E. H. da Silva Neto, C. V. Parker, Y. Huang, A. Pasupathy, J. Mydosh, und A. Yazdani. Visualizing the formation of the Kondo lattice and the hidden order in URu₂Si₂. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 107(23):10383–10388, 2010. (zitiert auf S. 66)
- [121] H. C. Choi, K. Haule, G. Kotliar, B. I. Min, und J. H. Shim. Observation of a kink during the formation of the Kondo resonance band in a heavy-fermion system. *Phys. Rev. B*, 88:125111, Sep 2013. (zitiert auf S. 66)
- [122] J. Tang, J. M. Lawrence, und J. C. Hemminger. Structure and valence of the Ce/Pt(111) system. *Phys. Rev. B*, 48:15342–15352, Nov 1993. (zitiert auf S. 68, 69, 72 und 73)
- [123] J. M. Essen, C. Becker, und K. Wandelt. Pt_xCe_{1-x} surface alloys on Pt(111): Structure and adsorption. *e-Journal of Surface Science and Nanotechnology*, 7:421–428, 2009. (zitiert auf S. 68, 69, 72, 73, 76 und 77)
- [124] C. J. Baddeley, A. W. Stephenson, C. Hardacre, M. Tikhov, und R. M. Lambert. Structural and electronic properties of Ce overlayers and low-dimensional Pt-Ce alloys on Pt(111). *Phys. Rev. B*, 56:12589–12598, Nov 1997. (zitiert auf S. 68, 69, 72, 73, 74 und 76)
- [125] M. Ormaza, L. Fernández, S. Lafuente, M. Corso, F. Schiller, B. Xu, M. Diakhate, M. J. Verstraete, und J. E. Ortega. LaAu₂ and CeAu₂ surface intermetallic compounds grown by high-temperature deposition on Au(111). *Phys. Rev. B*, 88:125405, Sep 2013. (zitiert auf S. 76)
- [126] M. Garnier, D. Purdie, K. Breuer, M. Hengsberger, und Y. Baer. Comparative photoemission study of Pt(111)($\sqrt{3} \times \sqrt{3}$)R30° Ce and Pt(111)(2 × 2)La. *Phys. Rev. B*, 58:9697–9699, Oct 1998. (zitiert auf S. 77)
- [127] H. Bethge, D. Heuer, Ch. Jensen, K. Reshöft, und U. Köhler. Misfit-related effects in the epitaxial growth of iron on W(110). *Surface Science*, 331–333, Part B:878 – 884, 1995. Proceedings of the 14th European Conference on Surface Science. (zitiert auf S. 79)
- [128] S. Krause, L. Berbil-Bautista, T. Hänke, F. Vonau, M. Bode, und R. Wiesendanger. Consequences of line defects on the magnetic structure of high anisotropy films: Pinning centers on Dy/W(110). *EPL (Europhysics Letters)*, 76(4):637, 2006. (zitiert auf S. 81)
- [129] C. Praetorius, M. Zinner, A. Köhl, H. Kießling, S. Brück, B. Muenzing, M. Kamp, T. Kachel, F. Choueikani, P. Ohresser, F. Wilhelm, A. Rogalev, und K. Fauth. Electronic tuneability of a structurally rigid surface intermetallic and Kondo lattice: CePt₅/Pt(111). *Phys. Rev. B*, 92:045116, Jul 2015. (zitiert auf S. 85)

Liste eigener Publikationen

- ▶ A. Krönlein, J. Kemmer, P.-J. Hsu, and M. Bode. Quasi-Particle Interference Scattering of Spin-Polarized Shockley-Like Surface State Electrons: Ni(111). *Phys. Rev. B.* **89**: 155413 (2014). (zitiert auf S. 23)
- ▶ J. Kemmer, C. Praetorius, A. Krönlein, P.-J. Hsu, K. Fauth, and M. Bode. Structural Analysis of the Intermetallic Surface Compound CePt₅/Pt(111). *Phys. Rev. B.* **90**: 195401 (2014). (zitiert auf S. 63)
- ▶ J. Kemmer, S. Wilfert, J. Kügel, T. Mauerer, P.-J. Hsu, and M. Bode. Growth and magnetic domain structure of ultra-thin Fe-films on Rh(001). *Phys. Rev. B.* **91**: 184412 (2015). (zitiert auf S. 42)
- ▶ P.-J. Hsu, J. Kügel, J. Kemmer, F. Parisen Toldin, T. Mauerer, M. Vogt, F. Assaad, and M. Bode. Coexistence of charge and ferromagnetic order in fcc Fe. *Nature Comm.* **7**: 10949 (2016). (zitiert auf S. 42 und 55)
- ▶ J. Kemmer, and M. Bode. Structural analysis of Pd on W(110). in preparation.

Verzeichnisse

Abbildungsverzeichnis

2.1	Tunneleffekt	4
2.2	Modell von Tersoff und Hamann und Spitzenorbitale	6
2.3	Modell zur Veranschaulichung des Tunnelns beim RTM	8
2.4	Topographiemessungen	9
2.5	Stoner-Modell zum spin-polarisiertem RTM	13
2.6	QPI am Beispiel von Ag(111)	17
2.7	Abschätzung der Energieauflösung	18
3.1	Fotografische Aufnahme der Messapparatur	20
4.1	DFT-Rechnungen von Braun et al. der Ni(111)-Oberfläche	25
4.2	RTM- und RTS-Aufnahmen der Ni(111)-Oberfläche	27
4.3	dI/dU -Karten für verschiedene Spannungen und die dazugehörigen FFTs	28
4.4	Dipersionsrelation für die Ni(111)-Oberfläche und Bändermodelle	29
4.5	RTM- und RTS-Aufnahmen von hexagonal lochartigen Inseln auf Ni(111) und Modell der Interpretation der Daten	31
4.6	Modell der atomaren Konfiguration von fcc-Stufenkanten	33
4.7	dI/dU -Karten von hexagonal lochartigen Inseln	34
4.8	RTS an Stufenkanten einer hexagonal lochartigen Insel	35
4.9	Identifizierung der atomaren Konfiguration an den Stufenkanten und Zuordnung der Stufenkantenzustands	36
4.10	Domänenstruktur von Ni(111)	37
4.11	RTS an hexagonal lochartigen Inseln der unterschiedlichen Domänen	38
5.1	RTM-Aufnahmen der unterschiedlich präparierten Rh(001)-Oberfläche	45

5.2	Das Wachstum von Fe auf Rh(001)	47
5.3	Magnetismus der ersten atomaren Lage Fe auf Rh(001)	48
5.4	Magnetismus der zweiten atomaren Lage Fe/Rh(001), Spitze ist mit Fe beschichtet	49
5.5	Magnetismus der unterschiedlichen Bedeckungen Fe auf Rh(001), Spitze mit Chrom beschichtet	51
5.6	Temperaturabhängigkeit des Magnetismus der zweiten atomaren Lage Fe auf Rh(001), Spitze mit Fe beschichtet	54
5.7	Periodizität der elektronischen Modulation	55
5.8	Spannungsabhängigkeit der elektronischen Modulation und atomare Auflösung	56
5.9	RTS positionsabhängig	57
5.10	Temperaturabhängigkeit der Streifen	58
5.11	Unabhängigkeit der Streifen vom Magnetismus	60
5.12	Theoretische Rechnungen zur Ladungsordnung und magnetischen Ordnung . . .	61
6.1	Veranschaulichung des Kondoeffekts	64
6.2	Bedeutung des q -Wertes	65
6.3	CeCoIn ₅ als Beispiel für ein Kondosystem	67
6.4	Die saubere Pt(111)-Oberfläche	71
6.5	RTM- und LEED-Bilder von 1 u.c. CePt ₅ /Pt(111)	72
6.6	Schematische Zeichnung der Einheitszelle von CePt ₅	73
6.7	RTM- und LEED-Bilder von Struktur B	74
6.8	RTM- und LEED-Bilder von Struktur C	75
6.9	RTM- und LEED-Bilder des Übergangs von 3 u.c. auf 4,5 u.c. CePt ₅ /Pt(111) .	78
6.10	Kugelmodell zur Erklärung des Übergangs von 3 u.c. auf 4,5 u.c. CePt ₅ /Pt(111)	79
6.11	RTM- und LEED-Bilder von 7 u.c. bis 10 u.c. CePt ₅ /Pt(111)	80
6.12	RTS von Struktur B	82
6.13	RTS von Struktur C	83
6.14	RTS von Struktur C' und D	84

Abkürzungsverzeichnis

ARPES	Angle-Resolved Photoemission Spectroscopy	Winkelaufgelöste Photoelektronenspektroskopie
BZ	Brilloiun Zone	Brillouin-Zone
CCM	Constant Current Mode	Modus konstanten Scanstroms
CEC	Constant-Energy Contour	Umriss der Fermi-Energie bei konstanter Energie
DFT	Density Functional Theory	Dichtefunktionaltheorie
FWHM	Full Width At Half Maxium	Halbwertsbreite
LDOS	Local Density Of States	Lokale Zustandsdichte
LT	Low Temperature	Tieftemperatur
MBE	Molecular Beam Epitaxy	Molekularstrahlepitaxie
PES	Photoemission Spectroscopy	Photoelektronenspektroskopie
QPI	Quasi-Particle Interference	Quasiteilchen Interferenz
STM, RTM	Scanning Tunneling Microscope/Microscopy	Rastertunnelmikroskop(ie)
STS, RTS	Scanning Tunneling Spectroscopy	Rastertunnelspektroskopie
SP-STM, SP-RTM	Spin polarized Scanning Tunneling Microscope/Microscopy	spin-polarisierte Rastertunnelmikroskop(ie)
UHV	Ultra High Vacuum	Ultrahochvakuum

Danksagung

Zu guter letzt möchte ich mich bei allen bedanken, die zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben und mich in den letzten Jahren tatkräftig unterstützt haben.

Prof. Dr. Matthias Bode danke ich für die Möglichkeit an seinem Lehrstuhl zu arbeiten und zu promovieren. Er hat mir sehr viele Möglichkeiten zur Weiterbildung angeboten und stand mir immer mit Rat und Tat zur Seite. Viele hilfreiche Diskussionen lenkten die Ergebnisse in eine sinnvolle Richtung.

Dr. Pin-Jui Hsu möchte ich für seine gute Betreuung und produktive Zusammenarbeit danken.

Andreas Krönlein, Stefan Wilfert, Matthias Vogt und Martin Schmitt danke ich für die angenehme Zusammenarbeit im Labor, hilfreichen Diskussionen und weiterführenden Fragestellungen.

Ebenso möchte ich mich bei *Jens Kügel* und *Thomas Bathon* für das Korrekturlesen dieser Arbeit bedanken und für das stets gute Arbeitsklima in den Laboren und Büros.

Herzlich bedanke ich mich auch bei *Anita Gebhardt* für die schnelle Hilfe bei Reparaturen und allen möglichen technischen und nicht-technischen Belangen.

Allen weiteren ehemaligen und aktuellen Mitarbeitern, besonders meinen Bürokollegen, danke ich für die kleine Abwechslung zwischendurch und den dennoch produktiven Diskussionen. Man konnte sich jederzeit auf gegenseitige Hilfe verlassen und es herrschte eine sehr angenehme Atmosphäre auch außerhalb der Arbeitszeiten.

Jochen möchte ich dafür danken, dass er immer für mich da ist und nicht müde wird, mich immer wieder auf den Boden der Tatsachen zurückzuholen.

Meiner Familie danke ich für die Unterstützung während meines Studiums, welches mir die Promotion erst ermöglichte.

Affidavit

I hereby confirm that my thesis entitled is the result of my own work. I did not receive any help or support from commercial consultants. All sources and / or materials applied are listed and specified in this thesis.

Furthermore, I confirm that this thesis has not yet been submitted as part of another examination process neither in identical nor in similar form.

Würzburg, den 24.08.2016

Jeannette Kemmer

Eidesstattliche Erklärung

Hiermit erkläre ich an Eides statt, dass ich die Dissertation eigenständig, d.h. insbesondere selbstständig und ohne Hilfe einer kommerziellen Promotionsberatung angefertigt und keine anderen als die von mir angegebenen Quellen und Hilfsmittel verwendet zu haben.

Ich erkläre außerdem, dass ich die Dissertation weder in gleicher noch in ähnlicher Form bereits in einem anderen Prüfungsvorhaben vorgelegen hat.

Würzburg, den 24.08.2016

Jeannette Kemmer