

Experimentelle Physik

---

SPVLEED  
Spinpolarisierte Beugung sehr  
niederenergetischer Elektronen an  
metallischen Oberflächen

---

Inaugural-Dissertation  
zur Erlangung des Doktorgrades  
der Naturwissenschaften im Fachbereich Physik  
der mathematisch-naturwissenschaftlichen Fakultät  
der Westfälischen Wilhelms-Universität Münster

vorgelegt von

Anne Kathrin Brüning geb. Wulff  
aus Münster

2011



Dekan: Prof. Dr. T. Kuhn  
Erster Gutachter: Prof. Dr. M. Donath  
Zweiter Gutachter: Prof. Dr. G. F. Hanne  
Tag der mündlichen Prüfung: 21.10.2011  
Tag der Promotion: 21.10.2011



# Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Einleitung</b>	<b>1</b>
1.1	Motivation . . . . .	1
1.2	Stand der Literatur . . . . .	2
<b>2</b>	<b>Streuprozesse bei VLEED</b>	<b>9</b>
2.1	Die Oberflächenbarriere . . . . .	10
2.1.1	Barrierenmodelle . . . . .	11
2.1.2	Spinabhängigkeit der Barriere . . . . .	13
2.2	Streuung am Kristall . . . . .	14
2.2.1	Geometrische Beugungstheorie . . . . .	15
2.2.2	Kinematische Theorie . . . . .	18
2.2.3	Dynamische Theorie . . . . .	19
2.2.4	Spinabhängigkeit der Streuung am Kristall . . . . .	22
2.3	Streuung an der Barriere . . . . .	22
2.4	Der gesamte VLEED-Streuprozess . . . . .	23
2.5	Berechnung von VLEED-Spektren mit einem „LEED Computer Program“ . . . . .	29
<b>3</b>	<b>Aufbau und Charakterisierung der VLEED-Apparatur</b>	<b>31</b>
3.1	Apparativer Aufbau . . . . .	31
3.1.1	Gegenfeldanalysator . . . . .	33
3.1.2	Spinpolarisierte Elektronenquelle . . . . .	35
3.2	Messprozess . . . . .	36
3.2.1	Spinabhängige Beugung sehr niederenergetischer Elektronen . . . . .	36
3.2.2	Inverse Photoemission zur Charakterisierung der Probe . . . . .	39
3.3	Präparation und Charakterisierung der Probenoberfläche . . . . .	40
3.4	Charakterisierung des VLEED-Experiments . . . . .	42
3.4.1	Kinetische Energie der Elektronen und Energieauflösung des Experiments . . . . .	43
3.4.2	Bestimmung des Elektroneneinfallswinkels und der Winkelauflösung . . . . .	49
3.4.3	Bestimmung der Transmission . . . . .	51
3.4.4	Äquivalente Auflösung . . . . .	52
<b>4</b>	<b>Ergebnisse</b>	<b>55</b>
4.1	VLEED-Feinstruktur von Cu(001) . . . . .	55
4.1.1	Einzelspektren unter $\Theta = 70^\circ$ und $\Phi = 45^\circ$ bzw. $\Phi = 12,5^\circ$ . . . . .	55
4.1.2	Winkelserie in $\Phi$ für $\Theta = 70^\circ$ . . . . .	59

4.1.3	Winkelserie in $\Theta$ für $\Phi = 40^\circ$ . . . . .	64
4.1.4	Bestimmung der Oberflächenbarriere für Cu(001) . . . . .	67
4.1.5	Spin aufgelöste VLEED-Messungen an Cu(001) . . . . .	73
4.2	VLEED-Feinstruktur von Co/Cu(001) . . . . .	79
4.2.1	Einzelpektren unter $\Theta = 70^\circ$ , $\Theta = 60^\circ$ und $\Theta = 45^\circ$ . . . . .	79
4.2.2	Winkelserien in $\Phi$ für $\Theta = 70^\circ$ , $60^\circ$ , $45^\circ$ . . . . .	83
4.2.3	Bestimmung der Oberflächenbarriere für Co/Cu(001) . . . . .	94
4.2.4	Spinasymmetrie und Effizienz des VLEED-Experiments an Co/Cu(001) . . . . .	99
<b>5</b>	<b>Zusammenfassung und Ausblick</b>	<b>103</b>
<b>6</b>	<b>Summary and outlook</b>	<b>107</b>
	<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>111</b>
	<b>Lebenslauf</b>	<b>119</b>
	<b>Danksagung</b>	<b>121</b>



# 1 Einleitung

## 1.1 Motivation

Das Potential, das ein Elektron erfährt, wenn es unmittelbar vor der kristallographisch geordneten Oberfläche eines metallischen Festkörpers lokalisiert ist, wird als Oberflächen(potential)barriere des Festkörpers bezeichnet. Diese Oberflächenbarriere bestimmt aufgrund ihrer Lage unmittelbar an der Oberfläche den Ladungstransport von sehr niederenergetischen Elektronen mit kinetischen Energien  $< 50 \text{ eV}$  an der Metall–Vakuum-Grenzfläche.

Die Ausdehnung dieser Potentialbarriere vor der Oberfläche liegt in der Größenordnung einer einzelnen Monolage des Kristalls. Auf der Vakuumseite schließt sich daran das Bildpotential an, das in unendlicher Entfernung von der Festkörperoberfläche gegen die Vakuumenergie konvergiert. Auf der Kristallseite geht die Oberflächenbarriere ins innere Potential des Festkörpers über. Ihre Form ist abhängig vom Material und von der Orientierung der betrachteten Oberfläche.

Die Oberflächenbarriere spielt aufgrund ihrer Lage eine grundlegende Rolle bei der Interpretation der experimentellen Ergebnisse oberflächenspektroskopischer Messmethoden wie z. B. der (Inversen) Photoemission, der Tunnelspektroskopie und der Beugung langsamer Elektronen. Im Allgemeinen werden die Ergebnisse dieser Messverfahren auf der Grundlage von theoretischen Modellen durch Rechnungen simuliert. So wird zum einen die Gültigkeit dieser Modelle überprüft, zum anderen werden die Messergebnisse physikalisch interpretiert.

Ein wesentlicher Bestandteil der theoretischen Modelle zur Berechnung physikalischer Prozesse, die unter Beteiligung sehr niederenergetischer Elektronen stattfinden, ist die Oberflächenbarriere. Daneben ist das Wechselwirkungspotential für Elektronen innerhalb des Festkörpers der zweite zu berücksichtigende Bestandteil.

Eine universelle Methode, die Oberflächenbarriere an beliebigen metallischen Oberflächen experimentell zu bestimmen, ist, ihre Streueigenschaften zu untersuchen. Bei Streuexperimenten von Elektronen an einkristallinen Oberflächen besteht die zurückgestreute Intensität hauptsächlich aus inelastisch gestreuten Elektronen und zu einem wesentlich kleineren Teil aus elastisch gestreuten Elektronen. Im Niederenergiebereich  $< 50 \text{ eV}$  werden u. a. als Funktion der Energie Modulationen in der elastisch reflektierten Elektronenintensität, sogenannte Feinstrukturen, beobachtet, deren Auftreten sensitiv auf die Eigenschaften der Oberflächenbarriere ist. Im Beugungsexperiment mit sehr niederenergetischen Elektronen (VLEED: Very-Low-Energy Electron Diffraction) wird daher das Verhalten der Feinstrukturen u. a.

als Funktion der Energie in sogenannten VLEED- $I(V)$ -Kurven, das ist die elastisch reflektierte Intensität als Funktion der Energie, untersucht.

Die Bestimmung der Oberflächenbarriere erfolgt schließlich mit Hilfe von theoretischen Berechnungen der VLEED- $I(V)$ -Kurven und der darin enthaltenen barriereinduzierten Feinstrukturen. Für diese Rechnungen wird im VLEED-Formalismus ein theoretisches Modellsystem bestehend aus einem realistischen Barrierenbeitrag und einem Kristallbeitrag zur Elektronenstreuung verwendet. Der Unterschied zum „normalen“ LEED-Formalismus besteht in der Notwendigkeit, im Niederenergiebereich ein realistisches Barrierenmodell anzunehmen. Rechnungen von LEED- $I(V)$ -Kurven im Energiebereich  $E = 50 - 300$  eV führen ohne Abhängigkeit von der Wahl der Modellbarriere zu guten Übereinstimmungen mit experimentellen Daten. Die in den VLEED-Messungen auftretenden Feinstrukturen können dagegen nur dann berechnet werden, wenn der LEED-Formalismus um ein realistisches Barrierenmodell erweitert wird. In diesem VLEED-Formalismus hängt dann die Form und energetische Position der berechneten Feinstruktur vom gewählten Barrierenmodell und von dessen Form, vorgegeben durch die Barrierenparameter des jeweiligen Modells, ab. Anhand von iterativen Vergleichen der berechneten VLEED- $I(V)$ -Kurven mit den experimentellen VLEED-Daten erfolgt schließlich eine Bestimmung der Oberflächenbarriere.

Für Oberflächen von ferromagnetischen Materialien oder nicht-magnetischen Materialien z. B. mit hoher Ordnungszahl  $Z$  ist die Oberflächenbarriere außerdem aufgrund von Austausch- oder Spin-Bahn-Wechselwirkung spinabhängig. Zur Darstellung dieser Spinabhängigkeit werden für die Berechnung von spinpolarisierten VLEED-(SPVLEED-) $I(V)$ -Kurven zwei gegeneinander verschobene Oberflächenbarrieren, entsprechend zwei Spinorientierungen, verwendet. Dann ergibt sich auch für die barriereninduzierte Feinstruktur eine Spinabhängigkeit.

Für ferromagnetische Oberflächen oder für Oberflächen von Materialien mit hohen Ordnungszahlen bietet sich daher ein spinpolarisiertes VLEED-Experiment an, um die Spinabhängigkeit der Feinstruktur zu bestimmen. Die Bestimmung der Oberflächenbarriere erfolgt dann im auf eine spinabhängige Barriere erweiterten SPVLEED-Formalismus.

Es ist zu erwähnen, dass das Prinzip der spinpolarisierten Beugung sehr niederenergetischer Elektronen aktuell bereits Anwendung als sogenannter VLEED-Spindetektor findet. Dabei wird die Spinabhängigkeit der reflektierten Intensität an Fe/W(001)- und Fe(001)<sub>p</sub>(1x1)-O auf MgO(001)-Oberflächen unter ausgewählten experimentellen Bedingungen ausgenutzt [Winkelmann et al. 2008, Okuda et al. 2008].

## 1.2 Stand der Literatur

Schon 1927 erkennen Davisson und Germer, dass es sich bei der Beugung langsamer Elektronen (LEED) um eine vielversprechende Methode zur Strukturbestimmung

von Kristalloberflächen handelt. Erst Ende der 1950er Jahre wird diese Idee durch die Entwicklung einer niederenergetischen Beugungsröhre verbreitet praktikabel [MacRae 1963]. Neben Fortschritten in der experimentellen Technik führt dies zur Entwicklung einer kinematischen und letztendlich einer dynamischen Theorie der Beugung niederenergetischer Elektronen in einem Energiebereich  $E = 50 - 500 \text{ eV}$  [Heinz 1988].

1964 berichten McRae und Caldwell Jr. in einem Beugungsexperiment mit sehr niederenergetischen Elektronen (VLEED mit  $E < 50 \text{ eV}$ ) als erste von Fluktuationen in der elastischen Streuamplitude an LiF(001), die sie als Feinstruktur bezeichnen [McRae und Caldwell Jr. 1964]. Die Messungen werden mit einer konventionellen LEED-Apparatur gemacht. Die elastisch reflektierten Elektronenstrahlintensitäten werden mit einem Spotfotometer auf dem Fluoreszenzschirm als Funktion der kinetischen Energie der Elektronen und des Elektroneneinfallswinkels gemessen und als  $I(V)$ -Kurven bezeichnet. Diese und weitere Messungen an LiF, NaF und Graphit stellen einen Zusammenhang zwischen den Feinstrukturen in VLEED- $I(V)$ -Kurven und dem streifenden Austritt von Beugungsstrahlen her [McRae und Caldwell Jr. 1967]. Der zugehörige physikalische Prozess wird durch einen Mechanismus der elastischen resonanten Vielfachstreuung an Kristalloberflächen unter Beteiligung eines quasistationären Oberflächenzustandes als Streukanal beschrieben ([McRae 1971] und Referenzen darin). Dieser Mechanismus bleibt mehr als ein Jahrzehnt kontrovers [Bosse et al. 1982]. Das Auftreten der Feinstruktur wird früh in theoretischen Modellrechnungen mit der Oberflächenbarriere in Verbindung gebracht [McRae und Jennings 1969]. Als Oberflächenbarriere bezeichnet wird der Übergangsbereich des Potentials an einer metallischen Oberfläche, in dem das Bildpotential, das für  $z \rightarrow -\infty$  vor der Oberfläche eines metallischen Festkörpers angenommen wird (z. B. [Nolting 1990]), in das innere Potential des Festkörpers übergeht. Die Einführung dieses Übergangsbereichs ist notwendig, da beim Bildpotential an der Oberfläche ( $z = 0$ ) bedingt durch seinen  $\frac{1}{z}$ -artigen Verlauf eine Polstelle auftritt, während das innere Potential i. A. für  $z \geq 0$  als konstant angenommen wird [Jennings und Thurgate 1981]. Aufgrund des Zusammenhangs zwischen Feinstruktur und Oberflächenbarriere wird ein Ziel des VLEED-Experiments die Bestimmung der Oberflächenbarriere metallischer Festkörper. Unter Berücksichtigung der Streuung am Kristall sowie an der Oberflächenbarriere werden dazu  $I(V)$ -Kurven berechnet. Dann können in iterativen Vergleichen mit gemessenen  $I(V)$ -Kurven gewählte Barrierenmodelle getestet und deren Parameter angepasst werden.

Erste VLEED-Messungen an Cu(001) führt Andersson mit einer konventionellen LEED-Optik durch [Andersson 1970]. Der Elektroneneinfallswinkel wird von  $3^\circ - 53^\circ$  variiert, der Azimutwinkel ist fest entlang der  $\langle 100 \rangle$ -Richtung. In den  $I(V)$ -Kurven wird eine Feinstruktur beobachtet, die als Funktion des Einfallswinkels auf einem konstanten Untergrund zu kleineren Energien dispergiert. Price *et al.* benutzen für Messungen an Cu(001) ebenfalls eine modifizierte LEED-Optik mit einer Elektronenkanone von  $\Delta E = 0,4 \text{ eV}$  Energieauflösung und einem Spotfotometer [Price et al. 1979]. Der Elektroneneinfallswinkel wird zwischen  $45^\circ$  und  $68^\circ$  variiert und der Azimutwinkel liegt entweder „ungefähr“ in der  $\langle 10 \rangle$ - oder der

$\langle 11 \rangle$ -Richtung. Dementsprechend werden hier zwei verschiedene Feinstrukturen bei verschiedenen Energien beobachtet. In diesem Fall sitzt die Feinstruktur auf einem ansteigenden Untergrund. Zu beiden Experimenten zeigen Rechnungen [Read und Jennings 1978, Price et al. 1979], dass sowohl eine Stufenbarriere und erst Recht eine transparente Barriere völlig unzureichende Barrierenmodelle darstellen. Die Autoren führen daher ein „modifiziertes Bildpotential“ ein, das aus einem Polynom zweiter Ordnung [Sachs und Dexter 1950, Cutler und Davis 1964] besteht und einen stetigen Übergang in das innere Potential gewährleistet.

Weitere VLEED- $I(V)$ -Messungen sowie Intensitätsmessungen als Funktion des Azimutwinkels z. B. an Ni(001), Al(001) [McRae et al. 1978, Lauzier et al. 1971] oder hochauflösende Messungen an W(001) ohne Variationsmöglichkeit des Einfallswinkels und Azimutwinkels [Adnot und Carette 1977] zusammen mit theoretischen Analysen werden von [McRae 1979] zusammengefasst.

Zur Berechnung von VLEED- $I(V)$ -Kurven verwenden Rundgren und Malmström nach Cutler und Davis ein Polynom dritter Ordnung als Oberflächenbarriere (RM-Modell). Ergebnis ihrer theoretischen Analyse ist u. a., dass die Feinstruktur in VLEED- $I(V)$ -Kurven eine Rydberg-ähnliche Serie aufeinanderfolgender Intensitätsmaxima darstellt [Rundgren und Malmström 1977a, Rundgren und Malmström 1977b]. Deshalb wird die Feinstruktur auch als Rydberg-Serie bezeichnet. Ausgehend von diesem Modell der Rydberg-Serie entwickeln Jennings und Price eine Methode zur Barrierenbestimmung, in der die gemessene energetische Differenz der Feinstrukturmaxima mit der berechneten verglichen wird [Jennings und Price 1980].

Ein weiteres Modell für die Oberflächenbarriere ist die „gesättigte Bildpotentialbarriere“ [Dietz et al. 1980]. Obwohl diese eine Diskontinuität in der ersten Atomlage aufweist, reproduzieren Dietz *et al.* ihre hochaufgelösten VLEED-Messungen an Cu(001). Das Experiment wird mit einem Spektrometer für Streuexperimente im Niederenergiebereich, ausgestattet mit einem  $127^\circ$ -Zylindersektoranalysator, bei einer Winkel- bzw. Energieauflösung von  $0,5^\circ$  bzw. 20 meV durchgeführt. Dabei wird der Einfallswinkel zwischen  $25^\circ$  und  $85^\circ$  entlang des  $\langle 10 \rangle$ - oder des  $\langle 11 \rangle$ -Azimuts variiert. Elektrische und magnetische Streufelder führen laut der Autoren zu einer Energieabhängigkeit der Empfindlichkeit während der Messung. Um die daraus „resultierende Störung der Linienform zu kompensieren“ werden die einzelnen  $I(V)$ -Kurven für verschiedene Energiebereiche unterschiedlich normiert. Jones und Jennings halten das Modell der „gesättigten Bildpotentialbarriere“ nur für ausgewählte Systeme wie z. B. auch W(001) für passend [Jones und Jennings 1983] und das modifizierte Bildpotential für unzureichend. Jones, Jennings und Jesper führen daher ein universelleres Barrierenmodell (JJJ-Modell) ein [Jones et al. 1984]. Nach Gaubert *et al.* ist die Einführung der unphysikalischen gesättigten Bildpotentialbarriere nach Dietz *et al.* auf fehlerhafte Annahmen der Streueigenschaften sowohl der Barriere als auch des Kristalls zurückzuführen. Sie schlussfolgern, dass für eine exakte Analyse nicht notwendigerweise energetisch hochaufgelöste Daten zur Verfügung stehen müssen. Vielmehr werden dafür Messungen verschiedener Feinstrukturen unter Variation der experimentellen Parameter in einem ausreichend großen Bereich an einer einzelnen Oberfläche benötigt [Gaubert et al. 1983].

Thurgate und Hitchen liefern schließlich mit einem speziell entwickelten Spektrometerdesign [Thurgate und Hitchen 1985] den bis heute vollständigsten Satz an VLEED-Messungen an einem Probensystem. Die Elektronenquelle, bestehend aus einer Wolframkathode und einem  $127^\circ$ -Ablenker, sowie der Detektor sind an einem drehbaren Arm befestigt, was eine kontinuierliche Variation des Azimutwinkels zwischen  $0^\circ$  und  $90^\circ$  ermöglicht. Beim Detektor handelt es sich um einen Gegenfeldanalysator, dessen sensitive Fläche Messungen unter verschiedenen Elektroneneinfallswinkeln durch Rotation der Probe um eine polare Achse erlaubt, ohne den Detektor oder die Quelle bewegen zu müssen. Bei einer Energieauflösung von 140 meV und einer Winkelauflösung von  $0,5^\circ$  werden Messungen an Cu(001) und Cu(111) durchgeführt. In  $I(V)$ -Kurven über einen entsprechend großen Energiebereich werden zum ersten Mal zwei verschiedene Feinstrukturen nebeneinander gemessen [Hitchen und Thurgate 1988a]. Dies und die Möglichkeit, den Azimutwinkel kontinuierlich einzustellen, sind die Grundlage einer von Hitchen und Thurgate vorgestellten Methode, anhand von VLEED-Messungen experimentelle Parameter wie z. B. den Azimutwinkel der einfallenden Elektronen relativ zu Hochsymmetrierichtungen der Probe zu bestimmen [Hitchen und Thurgate 1988b]. Diese VLEED-Messungen, bei denen die experimentellen Parameter in einem vergleichsweise großen Parameterraum variiert werden und exakt bestimmbar sind, erscheinen am vielversprechendsten, die Oberflächenbarriere exakt zu bestimmen [Hitchen und Thurgate 1988b, Gaubert et al. 1983]. Durch Thurgate und Sun erfolgt eine sehr detaillierte theoretische Analyse der VLEED-Daten an Cu(001) [Thurgate und Sun 1995]. Gezeigt werden direkte Vergleiche zwischen gemessenen und ausgehend vom JJJ-Modell der Oberflächenbarriere berechneten Feinstrukturen für verschiedene Einfallswinkel sowie die damit bestimmte Barriere. Absorptionsstudien mit Sauerstoff an Cu(001) und Cu(111) zeigen eine starke Abhängigkeit der Intensität und der energetischen Position der Feinstruktur von der Bedeckung mit Sauerstoff [Hitchen et al. 1990]. Infolgedessen ergibt sich eine Verschiebung der Oberflächenbarriere weg von der Kristalloberfläche [Thurgate und Sun 1995].

Eine vollständigere Zusammenfassung von VLEED-Messungen und Barrierenmodellen sowie theoretische Hintergründe liefern [Jones und Jennings 1988].

Für schwere Metalle wird in den 1970er Jahren der Spin eines Elektrons als zusätzliche Messgröße für VLEED interessant (SPLEED: Spinpolarisierte Beugung niederenergetischer Elektronen), da eine Spinabhängigkeit der elastischen Elektronenstreuung aufgrund relativistischer Effekte wie Spin-Bahn-Kopplung vorhergesagt wird. Einbeziehung der Spinpolarisation in theoretische Modellrechnungen soll die Sensitivität auf die Barrierenstruktur und die Übereinstimmung mit Experimenten erhöhen. So zeigen z. B. Rechnungen von [Jennings und Jones 1978] bewusst durchgeführt unter Annahme eines simplen Barrierenmodells den Einfluss eines spinabhängigen Streuprozesses auf die Form einer bei W(001) auftretenden Feinstruktur. Bei einem Vergleich mit nicht spinaufgelösten LEED- $I(V)$ -Kurven gemessen an W(001) [Edwards Jr und Propst 1972] schlussfolgern sie, dass das spinabhängige Modell zufriedenstellendere Ergebnisse liefert als das spinunabhängige.

In Bezug auf die praktische Bedeutung des spinpolarisierten LEED ist ein doppeltes Beugungsexperiment an W(001) zu nennen [Kirschner und Feder 1979]. Gemessen

wird dabei die Intensität eines an einem ersten Kristall (Polarisator) elastisch reflektierten Primärelektronenstrahls als Funktion des Azimutwinkels  $\Phi$ . Außerdem wird die Polarisation dieses reflektierten Strahls wieder als Funktion von  $\Phi$  mittels Beugung an einem zweiten Kristall gemessen. Dieses Experiment ist die Grundlage einer neuen Art von Spindetektor basierend auf dem SPLEED-Formalismus.

Eine Übersicht über das Gebiet des spinpolarisierten LEED sowohl aus theoretischer als auch aus experimenteller Sicht gibt [Feder 1981].

Die Spinabhängigkeit der Feinstruktur in spinpolarisiertem VLEED (SPVLEED) wird schließlich an W(001) mit einem senkrecht zur Streuebene polarisierten Primärelektronenstrahl gemessen [McRae et al. 1981, Pierce et al. 1981]. Dabei wird der Einfallswinkel zwischen  $15^\circ$  und  $37,5^\circ$  entlang des  $\langle 01 \rangle$ -Azimut variiert. Die Energieauflösung beträgt 300 meV. Große Unterschiede zeigen sich für Winkel größer als  $25^\circ$ , unter denen eine vergleichsweise kleine Spinabhängigkeit der Feinstruktur beobachtet wird, und Winkel kleiner als  $25^\circ$ , die eine große Spinabhängigkeit der Feinstruktur aufweisen. Anhand der spinaufgelösten Messungen ziehen die Autoren Rückschlüsse bezüglich des Mechanismus zur Entstehung der Feinstruktur. Allerdings existieren wiederum weitere gegensätzliche Interpretationen zu W(001) [Willis 1978, Malmström und Rundgren 1981, Jones und Jennings 1983].

In SPLEED- $I(V)$ -Kurven an Pb(110) wird bei einer angegebenen Energieauflösung von 500 meV keine Feinstruktur beobachtet [Krewer et al. 1990]. In Asymmetriemessungen mit einem Mott-Detektor im gleichen Experiment dagegen wird die Feinstruktur in der Polarisation der reflektierten Intensität als Funktion der Energie beobachtet. Unter Verwendung des JJJ-Barrierenmodells kann auch diese Messung reproduziert und eine Oberflächenbarriere bestimmt werden.

SPVLEED-Messungen an ferromagnetischen Proben können zeigen, ob eine Spinabhängigkeit der Feinstruktur aufgrund der Austauschwechselwirkung auftritt. Bei entsprechender Wahl der experimentellen Geometrie ist es möglich, diese ohne einen durch die Spin-Bahn-Kopplung induzierten Beitrag zu bestimmen [Feder und Kirschner 1981].

In einem ersten SPLEED-Experiment an ferromagnetischen Fe(110) werden mit einer spinpolarisierten GaAsP-Quelle und einem Faradaybecher als Detektor  $I(V)$ -Kurven, allerdings in einem Energiebereich von 30 – 130 eV aufgenommen [Waller und Gradmann 1982]. Daraus werden der Austauschwechselwirkungs- und der Spin-Bahn-Kopplungsbeitrag zur Asymmetrie des gestreuten Elektronenstrahls bestimmt. Die energetische Breite der auftretenden Strukturen schließt aus, dass es sich um Feinstrukturen handelt. So ergibt sich auch in einer theoretischen Analyse kein Hinweis auf eine durch die Oberflächenbarriere induzierte Struktur [Tamura und Feder 1982]. Vielmehr liefern SPLEED-Experimente in diesem Energiebereich Daten zur Analyse der Oberflächenmagnetisierung und über die Spinabhängigkeit inelastischer Streuprozesse.

Einen anderen Zugang zur Bestimmung der Oberflächenbarriere und gegebenenfalls deren Spinabhängigkeit liefern die energetischen Positionen von Oberflächenzuständen. Rechnungen zeigen, dass eine Austauschspaltung dieser Zustände an ferromagnetischem Fe(110) auftritt, die auch durch eine Spinabhängigkeit der Oberflächenbarriere hervorgerufen wird [Nekovee et al. 1993, Nekovee und Inglesfield 1995].

Dieser Beitrag ist klein im Vergleich zum Beitrag des spinabhängigen Kristallpotentials und außerdem von entgegengesetztem Vorzeichen. Die von Nekovee *et al.* mit der spinabhängigen Oberflächenbarriere im JJJ-Modell bestimmte Aufspaltung des ( $n = 1$ )-Bildpotentialzustands liegt in guter Übereinstimmung mit dem experimentellen Wert aus Inversen Photoemissionsmessungen an Fe(110) [Passek *et al.* 1995]. Für nicht ferromagnetisches Kupfer bestimmen Grass *et al.* die Oberflächenbarriere der Hochsymmetrieoberflächen von Kupfer mittels Inverser Photoemissions- und Zwei-Photonen-Photoemissionsdaten, so dass sowohl die energetische Position als auch die effektive Masse aller experimentell beobachteten Oberflächenzustände reproduziert wird [Grass *et al.* 1993]. Dafür wird ein RM-Modell der Oberflächenbarriere verwendet. Braun *et al.* gehen bei der ferromagnetischen Fe(110) Oberfläche mittels spinaufgelöster Inverser Photoemissionsdaten gleichermaßen vor und bestimmen damit zwei Oberflächenbarrieren, jeweils eine pro Spinsorte, die gegeneinander verschoben sind [Braun *et al.* 2002].

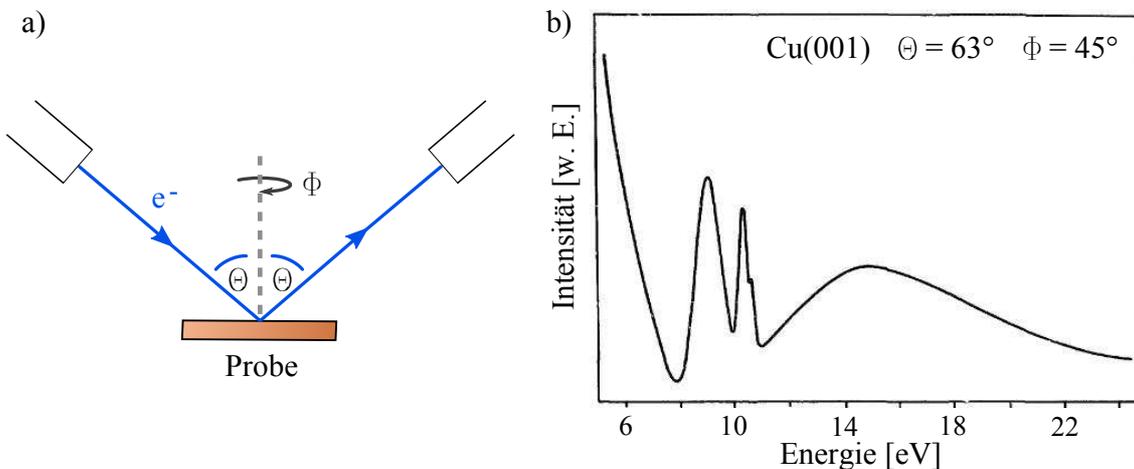
Die aufgrund der nachgewiesenen Spinabhängigkeit der Oberflächenbarriere zu erwartende Spinabhängigkeit in der Streuintensität von sehr niederenergetischen Elektronen an ferromagnetischen Oberflächen wird schon in einer neuen Art von VLEED-Spindetektor verwendet [Winkelmann *et al.* 2008, Okuda *et al.* 2008]. Obwohl also eine Spinabhängigkeit der barriereninduzierten Feinstruktur zu erwarten ist, existieren bisher keine SPVLEED-Messungen an ferromagnetischen Oberflächen im entsprechenden Energiebereich. Diese bieten zum einen eine Alternative zur Bestimmung der Oberflächenbarriere und ihrer Spinabhängigkeit aus Oberflächenzuständen und zum anderen Hinweise auf optimale Arbeitspunkte des VLEED-Spindetektors. Messungen zu diesem Zweck sollten über große Einfallswinkel- und Azimutwinkelbereiche sowie bei einer Energieauflösung besser als 400 meV durchgeführt werden, um die Oberflächenbarriere ableiten zu können.

Als Probensystem zum Test eines SPVLEED-Messaufbaus eignet sich Cu(001), für das bereits eine Vielzahl von VLEED-Feinstruktur Messungen in der Literatur zu finden sind. Vergleiche mit in der Literatur angegebenen Oberflächenbarrieren für Cu(001) können dann als Test für das gewählte Barrierenmodell und die ermittelten Parameter dienen.



## 2 Streuprozesse bei VLEED

Zu den grundsätzlichen Bestandteilen eines Experiments zur Beugung sehr niederenergetischer Elektronen (VLEED) gehört eine Elektronenquelle, mit der ein Elektronenstrahl mit definierter Energie und unter definiertem Winkel auf eine metallische Probe gerichtet wird. Außerdem wird ein energiselektiver Detektor im spekulär reflektierten Strahl positioniert, d. h. entsprechend einer Spiegelung mit Einfallswinkel gleich Ausfallswinkel, der ausschließlich den elastisch reflektierten Elektronenstrom misst (s. Abb. 2.1 a)). In diesem Strom, aufgenommen als Funktion der Elektronenenergie in einem Bereich von 0 bis 30 eV, werden sogenannte Feinstrukturen beobachtet. Deren Auftreten ist charakteristisch für die Form des Potentials an der Metall-Vakuum Grenzfläche, das in diesem Bereich als Oberflächen(potential)barriere bezeichnet wird. Aufgrund dieser Lokalisierung ist die Oberflächenbarriere von zentraler Bedeutung für jedwede Art von Ladungstransportprozess an metallischen Oberflächen. Ihre Kenntnis ist daher zwingend erforderlich zur Interpretation von Daten aus oberflächenspektroskopischen Messverfahren wie z. B. die (Inverse) Photoemission, LEED und Rastertunnelmikroskopie und -spektroskopie.



**Abbildung 2.1:** a) Schematische Darstellung des VLEED-Experiments.  $\Theta$  bezeichnet den Einfallswinkel,  $\Phi$  den Azimutwinkel, unter dem die Elektronen auf die Probe treffen.  
b) Feinstruktur gemessen an Cu(001) [Hitchin und Thurgate 1988a].

Das VLEED-Experiment bietet die Möglichkeit, die Oberflächenbarriere durch die Untersuchung ihrer Streueigenschaften zu bestimmen. Bei einer VLEED-Messung werden nach dem oben beschriebenen Prinzip sogenannte  $I(V)$ -Kurven aufgenommen. Dabei wird der elastisch reflektierte Strom  $I(E, \Theta, \Phi)$  als Funktion der kine-

tischen Energie  $E$  der Elektronen, des Einfallswinkels  $\Theta$  und des Azimutwinkels  $\Phi$  gemessen. Bei einem spinaufgelösten VLEED-Experiment wird  $I(E, \Theta, \Phi)$  zusätzlich als Funktion des Elektronenspins aufgenommen. Es ergeben sich daher zwei Elektronenströme als Observable, die sich durch die Orientierung ihrer Polarisation  $\vec{P}$  unterscheiden und im Folgenden als Spinströme  $I_{\uparrow, \downarrow}(E, \Theta, \Phi)$  bezeichnet werden. In Abb. 2.1 b) ist eine  $I(V)$ -Kurve eines VLEED-Experiments durchgeführt von Hitchen und Thurgate an einer Cu(001) Oberfläche dargestellt, die in diesem Beispiel eine Feinstruktur im Energiebereich zwischen  $E = 8 - 11$  eV beobachten [Hitchen und Thurgate 1988a].

Im folgenden Kapitel soll nun beschrieben werden wie es zur Entstehung dieser Feinstruktur kommt und wie aus experimentellen VLEED- $I(V)$ -Kurven die Oberflächenbarriere ermittelt wird. Zunächst werden Modelle der Oberflächenbarriere und deren Spinabhängigkeit eingeführt. Im Experiment werden die Elektronen immer sowohl am Kristall als auch an der Oberflächenbarriere gestreut, so dass diese Beiträge nie getrennt voneinander beobachtet werden können. Die Streueigenschaften von Kristall und Barriere werden daher zwar zunächst einzeln beschrieben, danach aber zum gesamten VLEED-Streuprozess kombiniert, aus dem letztendlich die Feinstruktur hervorgeht. Zuletzt wird dann ein Programm zur Berechnung von  $I(V)$ -Kurven vorgestellt, mit deren Hilfe die Oberflächenbarriere modelliert wird.

## 2.1 Die Oberflächenbarriere

Im Gleichgewichtszustand eines metallischen Festkörpers stellt sich eine Verteilung der freien Ladungsträger ein, so dass an jedem Ort  $\vec{r}$  das elektrische Feld gleich null bzw. das Potential über das gesamte Volumen konstant ist. Eine Ladung im Abstand  $-z$  vor dieser Oberfläche induziert ein elektrisches Feld, was zu einer Ladungsumverteilung im Festkörper führt, so dass sich wieder ein Gleichgewichtszustand einstellt. Für den Fall eines Elektrons vor der Oberfläche kann diese Ladungsumverteilung durch die Einführung einer fiktiven positiven Bildladung beschrieben werden (s. Abb. 2.2 a)). Die Feldlinien des elektrischen Feldes auf der Vakuumseite stehen dann senkrecht auf der Oberfläche. Das elektrostatische Potential  $\varphi(z)$  ergibt sich aus der Lösung der Laplace Gleichung für die Randbedingung  $\varphi(z = 0) = 0$ . Durch das Modell der Bildladung wird die geforderte Randbedingung erfüllt und das Randwertproblem vereinfacht sich zu einem Problem ohne Randwertbedingung [Nolting 1990].

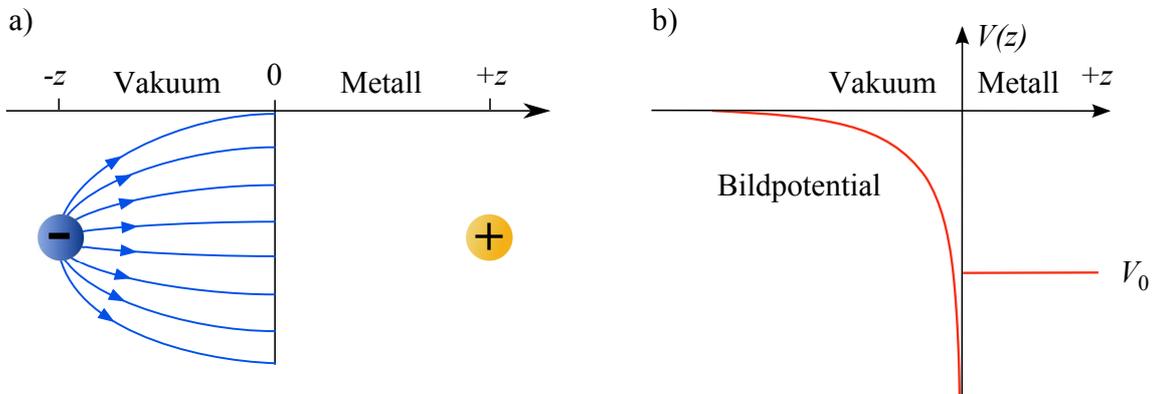
Auf das Elektron vor der Oberfläche wirkt eine anziehende Kraft

$$F(z) = -\frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \frac{1}{(2z)^2}, \quad (2.1)$$

die im Modell der Bildladung der Coulombkraft entspricht, die die fiktive Ladung bei  $+z$  auf das Elektron bei  $-z$  ausübt. Sie wird daher als Bildkraft bezeichnet. Durch Integration ergibt sich daraus das sogenannte Bildpotential vor der metallischen Oberfläche zu

$$V(z) = -\frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \frac{1}{4z}. \quad (2.2)$$

In der klassischen Elektrostatik liegt die Oberfläche per Definition bei  $z = 0$  und wird als Spiegelebene bezeichnet.



**Abbildung 2.2:** a) Prinzip der Bildladung. b) Bildpotential und inneres Potential  $V_0$  als Funktion von  $z$  senkrecht zur Oberfläche.

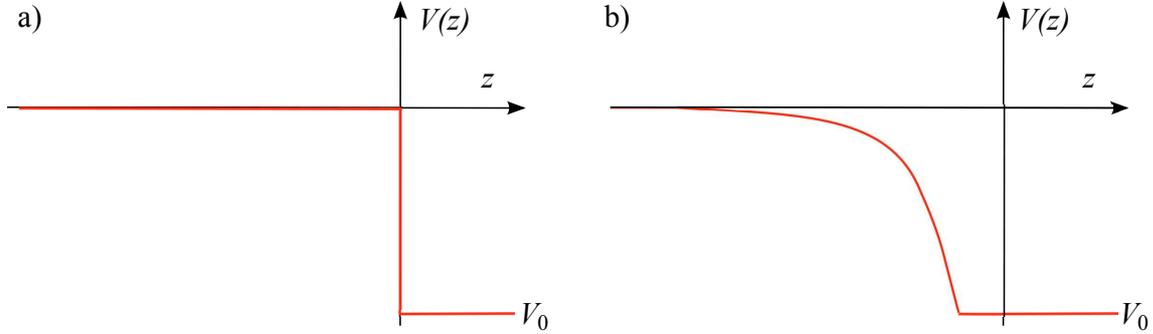
Das Bildpotential beschreibt den Potentialverlauf im Vakuum sehr gut, bis auf einen Bereich mit einer Ausdehnung weniger Atomlagen direkt vor der Oberfläche, weshalb an dieser Stelle Korrekturen vorgenommen werden müssen. Hier erfährt das Elektron nicht mehr nur die langreichweitige Coulombwechselwirkung mit den freien Ladungsträgern im Kristall bzw. der Bildladung, sondern es treten Wechselwirkungen auf mikroskopischer Größenskala des Festkörpers auf, die in der klassischen Elektrostatik vollständig vernachlässigt werden. So zeigt Bardeen, dass der Potentialverlauf in diesem Bereich hauptsächlich aus Austausch- und Korrelationseffekten hervorgeht [Bardeen 1940]. Während beim Bildladungspotential an der Stelle  $z = 0$  eine Singularität auftritt (Abb. 2.2 b)), wird für  $z > 0$  im Metall das endliche innere Potential  $V_0$  angenommen, dessen Wert charakteristisch für das jeweilige Material ist [Jennings und Thurgate 1981]. Für  $z \rightarrow 0$  muss das Bildladungspotential daher so korrigiert werden, dass ein stetiger Übergang ins innere Potential des Festkörpers gewährleistet ist. An dieser Stelle werden verschiedene phänomenologische und analytisch beschreibbare Modelle für den Übergangsbereich eingeführt, der als Oberflächenbarriere bezeichnet wird. Einige davon sollen im Folgenden vorgestellt werden.

### 2.1.1 Barrierenmodelle

Aus den Grenzfällen des Barrieropotentials für  $z \rightarrow -\infty$  und  $z > 0$  ergeben sich Bedingungen, die das Modell der Oberflächenbarriere (kurz OFB) erfüllen muss. Für  $z \ll 0$  muss sie in das Bildladungspotential übergehen, das für  $z \rightarrow -\infty$  gegen die Vakuumenergie konvergiert. Aus dieser Forderung ergibt sich direkt die aus der klassischen Elektrostatik bekannte Spiegelebene als Parameter  $z_I$  des Barrierenmodells. Bei mikroskopischer Betrachtung wird  $z_I$  nun exakt, relativ zum Mittelpunkt der ersten Atomlage angegeben, der jetzt per Definition den Punkt  $z = 0$  markiert. Für

$z > 0$  muss das endliche innere Potential  $V_0$  angenommen werden.

Aus diesen Bedingungen ergeben sich zwei phänomenologisch abgeleitete Barrierenmodelle, die in Abb. 2.3 abgebildet sind. Das intuitivste Modell, die Stufenbarriere, sowie das abgeschnittene Bildladungspotential werden bei der Berechnung von LEED- $I(V)$ -Kurven bei Energien oberhalb von  $E \approx 100$  eV verwendet.



**Abbildung 2.3:** Phänomenologisch abgeleitete Barrierenmodelle: a) Stufenbarriere. b) Abgeschnittenes Bildpotential.

Aufgrund einer unphysikalischen Diskontinuität im Potentialverlauf eignen sich diese nicht für die Beschreibung von Ladunstransportprozessen an der Oberfläche im Niederenergiebereich. Verbreitet genutzt werden dafür hauptsächlich die folgenden zwei Barrierenmodelle. Die Rundgren-Malmström- (RM-) Barriere besteht aus drei Abschnitten

$$V_{\text{RM}}(z) = \left\{ \begin{array}{ll} -\frac{1}{2(z-z_I)} + \frac{V_1}{(z-z_I)^2} & z \leq z_A \leq z_I \\ \text{Polynom 3. Grades} & z_A < z < z_E \\ V_0 & z \geq z_E \end{array} \right\}, \quad (2.3)$$

[Rundgren und Malmström 1977b], wobei das Polynom über die bei  $z_A$  (Anfang der OFB) und  $z_E$  (Ende der OFB) angenommenen Werte und die Ableitungen an diesen Stellen eindeutig bestimmt ist. Der Summand  $V_1$  ist ein Korrekturterm für das Bildladungspotential nahe der Oberfläche, mit dem im äußersten Fall ein Übergang ins innere Potential ohne Verwendung eines Polynoms als Übergangskurve realisiert werden kann. Ansonsten wird damit der Übergang des Bildladungspotentials in die Oberflächenbarriere modelliert. Abb. 2.4 zeigt die RM-Barriere für Fe(110).

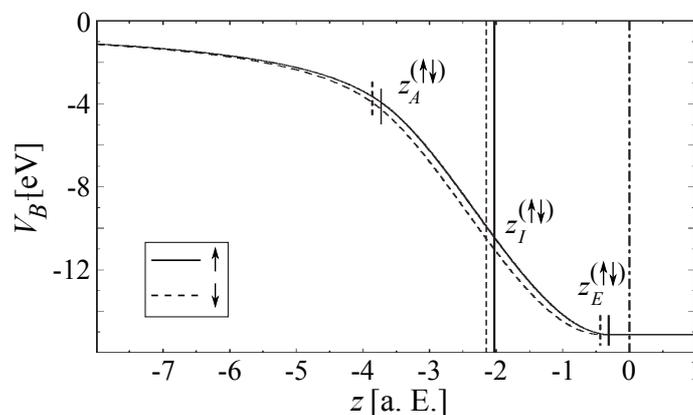
Die Jennings-Jones-Jepsen- (JJJ-) Barriere ist dagegen nur in zwei Bereiche unterteilt [Jones et al. 1984]:

$$V_{\text{JJJ}}(z) = \left\{ \begin{array}{ll} -\frac{1}{2(z-z_I)}(1 - \exp(\lambda(z-z_I))) & z < z_I \\ \frac{-V_0}{A \cdot \exp(-\beta(z-z_I)) + 1} & z > z_I \end{array} \right\}. \quad (2.4)$$

Die Konstanten  $A$  und  $\beta$  sind hier über die bei  $z = z_I$  angenommenen Werte und die Ableitung an dieser Stelle gegeben. Daraus ergibt sich  $\beta = V_0/A$  und  $A = 1 - 2V_0/\lambda$ . Der Parameter  $\lambda$  bestimmt die Weite der Oberflächenbarriere zwischen Bildladungspotential und innerem Potential, für den die RM-Barriere den Anfangs- und Endpunkt  $z_A$  und  $z_E$  angibt. Es gilt  $V_{JJJ}(z_I) = -\lambda/2$ . Diese beiden Modelle unterscheiden sich durch den Ort  $z$ , an dem die Oberflächenbarriere in das innere Potential übergeht. Während dies bei der RM-Barriere innerhalb der ersten Atomlage ( $z \approx 0$ ) geschieht, reicht die JJJ-Barriere einige Atomlagen in den Kristall hinein.

### 2.1.2 Spinabhängigkeit der Barriere

Aufgrund der Ununterscheidbarkeit eines Elektrons vor einer metallischen Oberfläche von den Elektronen im Festkörper geht die Oberflächenbarriere nicht aus einer reinen Coulombwechselwirkung, sondern auch aus der Austauschwechselwirkung hervor. Bei einer ferromagnetischen Probe ist die Zustandsdichte der Elektronen an der Fermienergie spinabhängig [Borstel und Thörner 1988]. In diesem Fall ist die Wechselwirkung der Festkörperelektronen mit dem Elektron vor der Oberfläche abhängig von dessen Spin, was zu einer Spinabhängigkeit der Barriere führt. Diese wurde zunächst von Nekovee *et al.* für die Fe(110)-Oberfläche berechnet [Nekovee et al. 1993, Nekovee und Inglesfield 1995]. Anhand von experimentellen Daten aus der spinaufgelösten Inversen Photoemission bestimmen [Braun et al. 2002] die Oberflächenbarriere von Fe(110) nach dem RM-Modell, dargestellt in Abb. 2.4.



**Abbildung 2.4:** Aus Inversen Photoemissionsdaten bestimmte spinabhängige Oberflächenbarriere nach dem RM-Modell [Braun et al. 2002]. Aufgetragen ist das Potential an der Oberfläche als Funktion vom Abstand  $z$  zur Oberfläche.  $\uparrow$  bzw.  $\downarrow$  bezeichnet die OFB für Majoritäts- bzw. Minoritätselektronen.

Deren Spinabhängigkeit wird dabei durch die Wahl zweier unterschiedlicher Parametersätze  $(z_I, z_A, z_E)_{\uparrow\downarrow}$  je nach Orientierung des Elektronenspins relativ zur Magneti-

sierungsrichtung des Kristalls berücksichtigt. Dies resultiert in zwei gegeneinander verschobenen Oberflächenbarrieren. Die Spiegelebene  $z_{I\uparrow}$  der Oberflächenbarriere der Majoritätselektronen liegt näher an der Oberfläche als die der Minoritätselektronen. Das bedeutet, für ein gegebenes  $z$  ist die Bildkraft für ein Majoritätselektron kleiner.

## 2.2 Streuung am Kristall

Ein einkristalliner metallischer Festkörper besitzt eine dreidimensionale Kristallstruktur, in der die atomaren Bausteine regelmäßig auf sogenannten Gitterplätzen angeordnet sind. Dabei handelt es sich um positiv geladene Ionenrümpfe, um die herum sich die Valenzelektronen quasifrei bewegen. Die kleinste Einheit der Kristallstruktur, durch deren periodische Aneinanderreihung sich der gesamte Festkörper aufbauen lässt und die dessen Struktur damit vollständig beschreibt, wird als Elementarzelle bezeichnet.

Lenkt man langsame Elektronen auf einen metallischen Einkristall und analysiert die elastisch, d. h. ohne Energieverlust zurückgestreute Intensität, so stellt man fest, dass diese sowohl richtungs- als auch energieabhängig ist. Zur Auswertung dieses Beugungsbildes existieren verschiedene Theorien von unterschiedlicher Komplexität, mit denen jeweils auch Informationen unterschiedlicher Komplexität über das metallische Substrat, an dem gestreut wird, gewonnen werden. Mit der zugänglichsten dieser Theorien, der geometrischen Beugungstheorie, können die Geometrie der Elementarzelle anhand des Beugungsbildes und Bedingungen für das Beobachten von Elektronenintensität im Beugungsbild, der sogenannten Beugungsstrahlen abgeleitet werden. Diese sind für den VLEED-Streuprozess von Bedeutung. Im Folgenden wird daher zunächst das Konzept der geometrischen Beugungstheorie erläutert.

Mit der kinematischen Beugungstheorie können unter der Annahme, dass jedes Elektron nur genau einmal elastisch gestreut wird, Aussagen über die Energieabhängigkeit der einzelnen Beugungsstrahlen getroffen werden. Im Rahmen dieser Theorie wird das Auftreten sogenannter „primärer Braggzustände“, die auch im VLEED-Spektrum zu beobachten sind, erklärt. Für das Auftreten der Feinstruktur muss letztendlich die komplexe dynamische Beugungstheorie herangezogen werden, die Vielfachstreuprozesse<sup>(1)</sup>berücksichtigt. Damit kann z. B. wieder durch die Auswertung der Intensitäten einzelner Beugungsstrahlen als Funktion der Energie eine Strukturanalyse erfolgen, in der sich die atomaren Positionen innerhalb der Elementarzelle ergeben. In dieser Arbeit ist die dynamische Theorie für die quantitative Auswertung der VLEED-Spektren bei deren Berechnung zur Bestimmung der Oberflächenbarriere von Bedeutung. Die dynamische Theorie wird daher anhand eines eindimensionalen Modells eingeführt, während sie im in Abschnitt 2.5 vorgestellten

---

<sup>(1)</sup> LEED-Elektronen durchlaufen in der Regel Vielfachstreuprozesse, da der Streuquerschnitt für Elektronenstreuung an Gitteratomen im Niederenergiebereich groß ist [van Hove 1986]. Dadurch erhöht sich der rechnerische Aufwand der LEED-Theorie, gleichzeitig ist die geringe mittlere freie Weglänge und die daraus ebenfalls folgende geringe Eindringtiefe der Elektronen von wenigen Atomlagen in den Festkörper [Seah und Dench 1979], die die hohe Oberflächensensitivität der Beugung niederenergetischer Elektronen ausmacht, durchaus erwünscht.

Programm zur Berechnung von VLEED-Spektren für einen dreidimensionalen Kristall eingeht.

Im Folgenden wird für alle Streuprozesse das einfallende Elektron außerhalb des Festkörpers durch eine ebene Welle mit Wellenvektor  $\vec{k}_0$

$$\varphi(\vec{r}) = e^{i\vec{k}_0\vec{r}} \quad (2.5)$$

mit der Energie des freien Elektrons

$$E = \frac{\hbar^2 \vec{k}_0^2}{2m_e} \quad (2.6)$$

beschrieben. Der einfallende Elektronenstrahl ist also in Energie und Ausbreitungsrichtung vollständig bestimmt durch den Wellenvektor  $\vec{k}_0 = \vec{k}_0(E, \Theta, \Phi)$ , wobei  $\Theta$  der Einfallswinkel und  $\Phi$  der Azimutwinkel der einfallenden Elektronen ist (vergleiche Abb. 2.1).

### 2.2.1 Geometrische Beugungstheorie

Treffen Elektronen auf einen metallischen Festkörper und besitzen eine de-Broglie-Wellenlänge in der Größenordnung von dessen Gitterkonstante, so werden sie am zweidimensionalen Kristallgitter der Oberfläche gebeugt. In der beobachteten elastisch zurückgestreuten Intensität existiert also nicht nur ein spekulär reflektierter Elektronenstrahl, sondern es treten zusätzliche Elektronenstrahlen in verschiedenen Richtungen, je nach Wellenvektor  $\vec{k}_0$  der einfallenden Elektronen, auf. Ist  $\vec{k}'$  der Wellenvektor der elastisch gestreuten Elektronen, so wird gerade für solche  $\vec{k}'$  Intensität aufgrund von konstruktiver Interferenz gestreuter Elektronen beobachtet, die die Laue-Gleichung

$$(\vec{k}' - \vec{k}_0)\vec{R} = \Delta\vec{k} \cdot \vec{R} = 2\pi n \quad n \in \mathbb{Z} \quad (2.7)$$

erfüllen [Demtröder 2004]. Dabei ist  $\vec{R}$  ein zweidimensionaler Translationsvektor der Oberfläche des Kristallgitters und kann als Linearkombination aus dessen Basisvektoren dargestellt werden:

$$\vec{R} = m_1\vec{a}_1 + m_2\vec{a}_2 \quad m_1, m_2 \in \mathbb{Z}. \quad (2.8)$$

$\Delta\vec{k} = \vec{k}' - \vec{k}_0$  kann als Summe aus einem zur Oberfläche parallelen und senkrechten Anteil als  $\Delta\vec{k} = \Delta\vec{k}_{\parallel} + \Delta\vec{k}_{\perp}$  ausgedrückt werden. Damit schreibt sich die Laue-Gleichung 2.7

$$(\Delta\vec{k}_{\parallel} + \Delta\vec{k}_{\perp}) \cdot (m_1\vec{a}_1 + m_2\vec{a}_2) = 2\pi n. \quad (2.9)$$

Da  $\vec{R}$  als Translationsvektor der Oberfläche senkrecht zu  $\Delta\vec{k}_{\perp}$  ist, gilt

$$\Delta\vec{k}_{\perp} \cdot (m_1\vec{a}_1 + m_2\vec{a}_2) = 0 \quad (2.10)$$

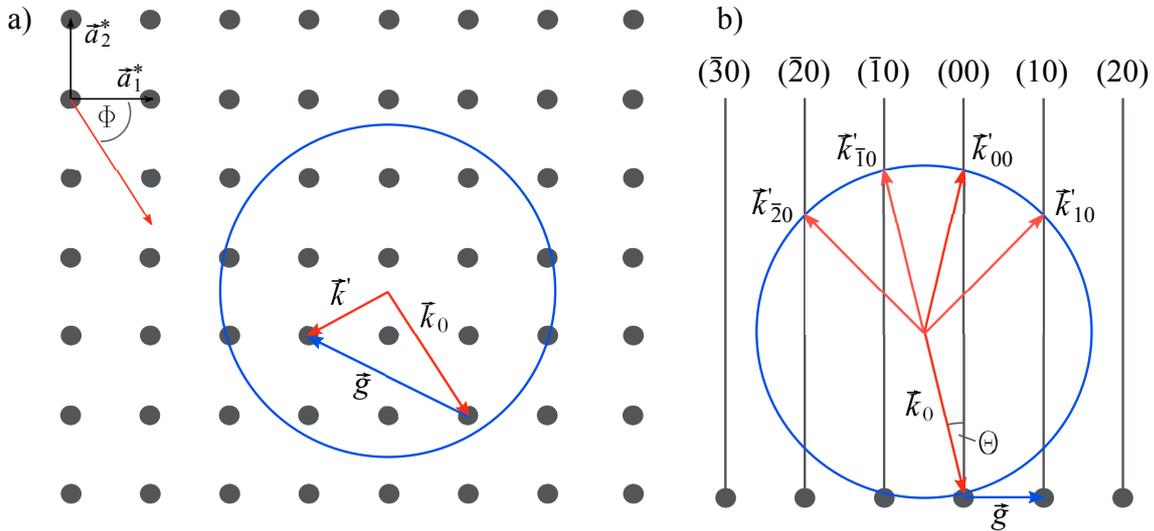
und somit

$$\begin{aligned} \Delta\vec{k}_{\parallel} \cdot \vec{a}_1 &= 2\pi n_1, & n_1 &\in \mathbb{Z} \\ \Delta\vec{k}_{\parallel} \cdot \vec{a}_2 &= 2\pi n_2, & n_2 &\in \mathbb{Z} \end{aligned} \quad (2.11)$$

da  $\vec{a}_1$  und  $\vec{a}_2$  linear unabhängig sind. Ein Translationsvektor des reziproken Gitters ergibt sich analog zu Glg. 2.8 aus den Basisvektoren  $\vec{a}_1^*$  und  $\vec{a}_2^*$  des reziproken Gitters zu

$$\vec{g} = h_1 \vec{a}_1^* + h_2 \vec{a}_2^* \quad h_1, h_2 \in \mathbb{Z}. \quad (2.12)$$

Die Basisvektoren erfüllen die Gleichung  $\vec{a}_i \cdot \vec{a}_j^* = 2\pi \cdot \delta_{i,j}$ . Jetzt wird direkt deutlich, warum sich eine Beschreibung des Beugungsprozesses in der Darstellung des reziproken Gitters anbietet: Für  $\Delta \vec{k}_{\parallel} = \vec{g}$  ist Glg. 2.11 immer erfüllt. D. h. Beugung bedeutet, dass einfallende Elektronen reziproke Gittervektoren der Oberfläche austauschen und in den daraus resultierenden Richtungen  $\vec{k}'$  konstruktive Interferenz zum Auftreten eines Beugungsstrahls führt. Dies lässt sich anschaulich an der Ewaldkonstruktion für ein zweidimensionales Gitter darstellen. Auf jeden Punkt des reziproken Gitters wird eine zur Oberfläche senkrechte Linie eingezeichnet, so dass ein sogenannter Stangenwald entsteht<sup>(2)</sup>. Dann wird der Wellenvektor der einfallenden Elektronen  $\vec{k}_0$  so eingezeichnet, dass er auf einem beliebigen Punkt des reziproken Gitters endet. Dies ist in Abb. 2.5 a) als Aufsicht und b) als Seitenansicht gezeigt.



**Abbildung 2.5:** Zweidimensionale Ewaldkonstruktion als a) Aufsicht auf einen Schnitt durch die zweidimensionale Gitterebene und b) als Seitenansicht auf einen Schnitt senkrecht zur Gitterebene durch eine einzelne Reihe von Gitterpunkten. Die Wellenvektoren sind jeweils als Projektion mit den entsprechenden Einfallswinkeln  $\Phi$  bzw.  $\Theta$  dargestellt.  $\vec{a}_1^*$  und  $\vec{a}_2^*$  sind die Basisvektoren des reziproken Gitters,  $\vec{g}$  ist ein beliebiger reziproker Gittervektor.

Um den Ursprung von  $\vec{k}_0$  wird dann jeweils eine Kugel mit dem Radius  $|\vec{k}_0|$  eingezeichnet. Zwischen Schnittpunkten der Stangen mit dieser Kugel und deren Mittelpunkt werden die  $\vec{k}'$  eingezeichnet, in deren Richtungen konstruktive Interferenz

<sup>(2)</sup>Im Rahmen der geometrischen Beugungstheorie entspricht die einzelne Gitterebene (Oberfläche) im Realraum einer  $\delta$ -Funktion, deren Fouriertransformation eine Konstante ist. Die einzelne Gitterebene wird daher im reziproken Raum in jedem Gitterpunkt durch eine Stange senkrecht zur Oberfläche dargestellt

auftritt und daher Beugungsstrahlen beobachtet werden. Abb. 2.5 b) zeigt, wie die Beugungsstrahlen entsprechend des ausgetauschten Gittervektors  $\vec{g}$  indiziert und in verschiedene Beugungsordnungen (10), (20), (...) eingeteilt werden.

Anhand dieser Konstruktion zeigt sich auch, dass eine Erhöhung der Energie aufgrund von Glg. 2.6 zunächst eine entsprechende Vergrößerung von  $|\vec{k}_0|$  und damit vom Radius der Ewaldkugel bedeutet. Infolgedessen werden die Winkel  $\Theta$  und  $\Phi$ , unter denen die gebeugten Strahlen auftreten, kleiner, so dass die einzelnen Beugungsordnungen näher zusammenrücken. Außerdem kommen weitere Beugungsreflexe hinzu, da weitere Stangen geschnitten werden. Ein Grenzfall wird hier direkt deutlich: Für jede Beugungsordnung existiert eine Energie  $E_{\vec{g}}$ , bei der der entsprechende Beugungsstrahl unter einem Winkel von  $\Theta = 90^\circ$ , d. h. parallel zur Oberfläche propagieren würde. In diesem Fall berührt die entsprechende Stange die Ewaldkugel in Abb. 2.5 b) tangential. Diese Energie spielt eine wichtige Rolle im VLEED-Experiment, da die auftretenden Feinstrukturen jeweils gegen diese sogenannte Emergenzenergie oder auch Schwellenergie  $E_{\vec{g}} = E_T$  konvergieren<sup>(3)</sup>. Sie kann anhand der hier beschriebenen geometrischen Beugungstheorie direkt abgeleitet werden. Da Beugung elastisch ist, ist die Energie während des gesamten Beugungsprozesses erhalten. Zu Beginn ist

$$E = \frac{\hbar^2 |\vec{k}_0|^2}{2m_e} = \frac{\hbar^2}{2m_e} (|\vec{k}_{0\parallel}|^2 + |\vec{k}_\perp|^2) = E_{\parallel} + E_\perp. \quad (2.13)$$

Nach dem Austausch eines reziproken Gittervektors der Oberfläche  $\vec{g}$  gilt

$$E = \frac{\hbar^2}{2m_e} (|\vec{k}_{0\parallel} + \vec{g}|^2 + |\vec{k}_\perp|^2). \quad (2.14)$$

Beim vorliegenden elastischen Prozess muss  $|\vec{k}_\perp|$  dementsprechend kleiner werden. Die Emergenzenergie für einen aus dem reziproken Gittervektor  $\vec{g}$  hervorgehenden Beugungsstrahl ergibt sich für  $k_\perp = 0$  zu

$$E_T(k_\perp = 0) = \frac{\hbar^2}{2m_e} |\vec{k}_{0\parallel} + \vec{g}|^2. \quad (2.15)$$

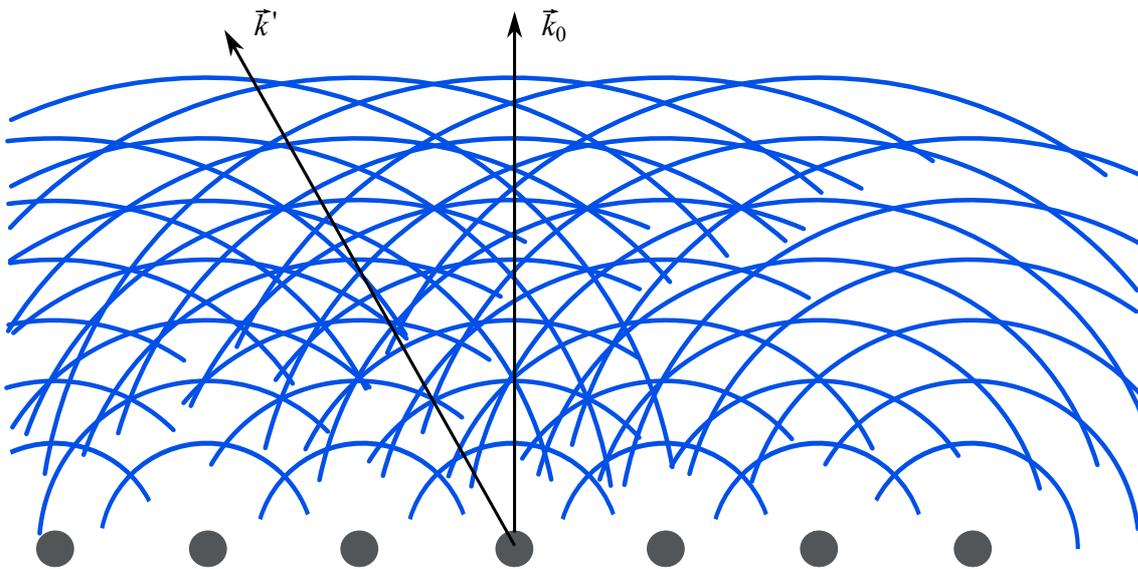
Erst für  $E > E_T$  und damit  $k_\perp > 0$  propagiert dieser Beugungsstrahl im Vakuum und kann beobachtet werden.

Die geometrische Beugungstheorie liefert Ergebnisse, die sich allein aus der Geometrie des Beugungsbildes ohne Analyse der Intensitäten der gebeugten Strahlen ergeben. Bei bekannter Elementarzelle kann z. B. die Emergenzenergie verschiedener Beugungsordnungen berechnet werden (s. Abschnitt 2.4). Auch der VLEED-Streuprozess und das Auftreten der Feinstruktur wird aus hier gewonnenen Erkenntnissen abgeleitet. Um letztendlich die Oberflächenbarriere bestimmen zu können, wird die Intensität des spekularen Strahls des Beugungsbildes ((00) in Abb. 2.5 b)) als Funktion der Elektronenenergie ausgewertet. Zur Erklärung der Intensitätsvariation der Beugungsreflexe liefert zunächst die kinematische Theorie einen relativ einfachen Zugang und außerdem die Basis für die dynamische Theorie.

<sup>(3)</sup>  $T$  für engl. threshold, dt. Schwelle.

## 2.2.2 Kinematische Theorie

Wird eine ebene Elektronenwelle an einer Kristalloberfläche gestreut, gehen von jedem einzelnen Streuzentrum des Kristallgitters Streuwellen in Form von Kugelwellen aus (Abb. 2.6). Diese Überlagern sich, so dass in bestimmten Richtungen konstruktive Interferenz auftritt. Außerhalb des Kristalls werden daher Beugungsreflexe beobachtet. Ginge man, wie im letzten Abschnitt beschrieben, von einer zweidimensionalen periodischen Anordnung punktförmiger Streuzentren aus, würde keine Variation der Intensität einzelner Beugungsreflexe auftreten [Ertl 1985].



**Abbildung 2.6:** Zweidimensionaler Schnitt durch die Huygens'sche Konstruktion: Sphärische Wellen, die von punktförmigen Streuzentren ausgehen, überlagern sich, so dass gebeugte Strahlen in Richtung  $\vec{k}'$  propagieren.

Bei den Streuzentren jeder einzelnen Gitterebene handelt es sich um die Ionenrümpfe des Kristallgitters, die eine innere Struktur besitzen. Ihr Streupotential ist daher nicht punktförmig, sondern sphärisch symmetrisch innerhalb eines endlichen kugelförmigen Volumens. Eine an einem Ionenrumpf gestreute Elektronenwelle kann daher durch unendlich viele Partialwellen  $u_l$  <sup>(4)</sup> dargestellt werden, die sich asymptotisch zu einer Kugelwelle mit dem Ionenrumpf als Zentrum überlagern [Nolting 1993]. Jede Partialwelle besitzt eine Phasenverschiebung relativ zu dieser Kugelwelle, die als Streuphase  $\delta_l$  bezeichnet wird. Sind diese Streuphasen bekannt, können die Ionenrümpfe einer Gitterebene wieder durch punktförmige Streuzentren ersetzt werden, deren Streueigenschaften vollständig durch die Streuphasen bestimmt sind. Im Energiebereich des VLEED-Experiments gehen sechs oder weniger dieser Streuphasen bei der Beschreibung der Ionenrumpfstreuung ein [Heinz 2009]. Die Lösung des

<sup>(4)</sup>Die Drehimpulsquantenzahl  $l$  ergibt sich aus der Entwicklung der Lösungsfunktion nach Kugelflächenfunktionen.

Streuproblems an einer zweidimensionalen Anordnung von Ionenrümpfen ergibt sich als Summe über deren einzelne Beiträge. Sämtliche Kugelwellen überlagern sich zu einem Wellenfeld aus ebenen Wellen, die in bestimmte Richtungen fortschreiten (s. Abb. 2.6). Diesen Richtungen soll wieder der Wellenvektor  $\vec{k}'$  zugeordnet werden. Für eine zweidimensionale Anordnung von  $M_1 \cdot M_2$  Gitterpunkten ergibt sich die Interferenzfunktion [Ertl 1985]

$$J = \frac{\sin^2(1/2M_1\vec{a}_1(\vec{k}' - \vec{k}_0))}{\sin^2(1/2\vec{a}_1(\vec{k}' - \vec{k}_0))} \cdot \frac{\sin^2(1/2M_2\vec{a}_2(\vec{k}' - \vec{k}_0))}{\sin^2(1/2\vec{a}_2(\vec{k}' - \vec{k}_0))}. \quad (2.16)$$

Maxima in der Intensität sind in Richtungen  $\vec{k}'$  zu erwarten, für die die Argumente beider Sinusfunktionen im Nenner Vielfache von  $\pi$  sind:

$$\begin{aligned} \Delta\vec{k}_{||} \cdot \vec{a}_1 &= 2\pi n_1, & n_1 &\in \mathbb{Z} \\ \Delta\vec{k}_{||} \cdot \vec{a}_2 &= 2\pi n_2, & n_2 &\in \mathbb{Z} \end{aligned} \quad (2.17)$$

Glg. 2.17 entspricht genau den Laue-Bedingungen, die in der geometrischen Beugungstheorie verwendet werden.

Bisher wurde die Streuung an einem zweidimensionalen Gitter betrachtet. Wegen der Eindringtiefe der Elektronen von wenigen Monolagen findet Streuung an mehr als einer Gitterebene statt. Die Intensität der Beugungsreflexe wird daher auch von der Interferenz der Beiträge der verschiedenen senkrecht zur Oberfläche angeordneten Gitterebenen bestimmt [Ertl 1985]. Die Periodizität senkrecht zur Oberfläche fordert die Erfüllung einer dritten Laue-Bedingung

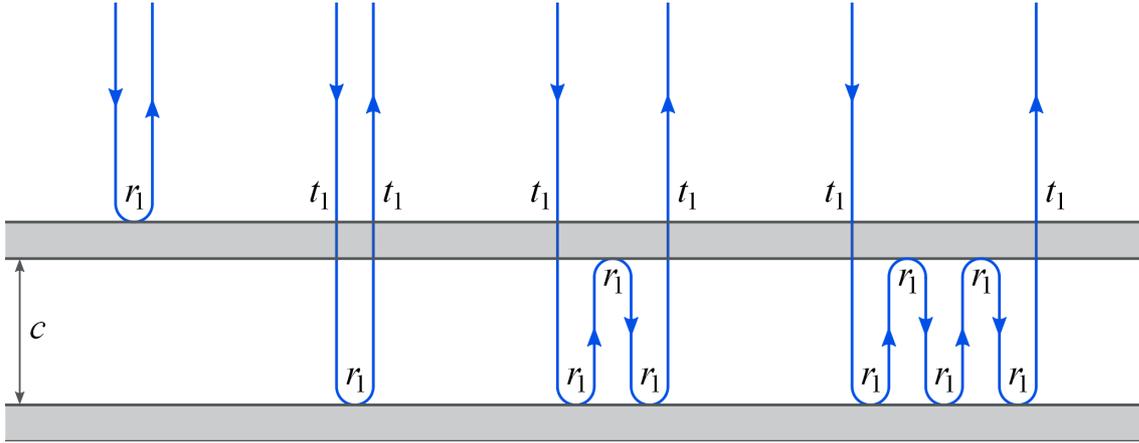
$$(\vec{k}' - \vec{k}_0)\vec{a}_3 = 2\pi n_3. \quad (2.18)$$

$\vec{a}_3$  steht senkrecht auf der Oberfläche und der Betrag entspricht dem Abstand der Gitterebenen. Im Bild der Ewaldkonstruktion bedeutet das, die Stangen werden durch reziproke Gitterpunkte ersetzt. Maxima in den Richtungen, die nach den Laue-Bedingungen in zwei Dimensionen auftreten sollten, werden nur beobachtet, wenn die Ewaldkugel für bestimmte Energien diese Punkte schneidet, also auch die dritte Laue-Gleichung erfüllt ist. Diese eigentlich scharfe Definition wird aufgeweicht, da die Elektronen aufgrund ihrer Eindringtiefe von nur wenigen Atomlagen die Periodizität in der dritten Dimension nur bedingt „spüren“ im Vergleich zur Ausdehnung der Oberfläche. Es treten sogenannte „primäre Braggzustände“ von mehreren Elektronenvolt energetischer Breite auf.

### 2.2.3 Dynamische Theorie

Neben den primären Braggzuständen treten in LEED- $I(V)$ -Kurven weitere Strukturen, sogenannte „sekundäre Braggzustände“, und im sehr niedrigen Energiebereich einer VLEED-Messung die Feinstrukturen auf. Diese können bei der Berechnung von  $I(V)$ -Kurven nicht im Rahmen der kinematischen Theorie reproduziert werden. Die Annahme, die Wechselwirkung der Elektronen mit dem Festkörper sei so gering, dass nur wenige Streuprozesse, nämlich genau einer pro Elektron, stattfinden, ist keine gute Näherung. Anstatt alle von den Ionenrümpfen ausgehenden Streuwellen

zu einem Gesamtwellenfeld zu überlagern, muss berücksichtigt werden, dass jede dieser Streuwellen noch an weiteren Streuzentren quasi beliebig oft gestreut werden kann. Einige mögliche Streuprozesse an zwei einzelnen identischen Streuzentren im Abstand  $c$  voneinander sind in Abb. 2.7 dargestellt. An diesem eindimensionalen Modell soll erläutert werden wie die gesamte Reflektivität  $R$  eines Kristalls unter Berücksichtigung aller möglichen elastischen Streuprozesse bestimmt werden kann [van Hove und Pendry 1975].



**Abbildung 2.7:** Schematische Darstellung von einigen möglichen Streuprozessen an einem eindimensionalen Modell zweier identischer Streuzentren im Abstand  $c$ . Aus Gründen der Übersichtlichkeit sind die Strahlengänge nebeneinander gezeigt.

Die Reflexions- bzw. die Transmissionskoeffizienten der einzelnen Streuzentren sei  $r_1$  bzw.  $t_1$ . Gesucht sind zunächst die Größen  $r_2$  und  $t_2$  als Koeffizienten, die diese zwei Streuzentren als ein einzelnes beschreiben. Die Superposition aller möglichen Streuprozesse ergibt die Reflektivität  $r_2$

$$\begin{aligned}
 r_2 &= r_1 + t_1 p_+ r_1 p_- t_1 + t_1 p_+ r_1 p_- r_1 p_+ r_1 p_- t_1 + \dots \\
 &= r_1 + t_1^2 \sum_{i=1}^{\infty} r_1^{2i+1} p_+^{i+1} p_-^{i+1} \\
 &= r_1 + t_1^2 \frac{p_+ p_- r_1}{1 - p_+ p_- r_1^2}
 \end{aligned} \tag{2.19}$$

und die Transmission  $t_2$

$$\begin{aligned}
 t_2 &= t_1 p_+ t_1 + t_1 p_+ r_1 p_- r_1 p_+ t_1 + \dots \\
 &= t_1^2 p_+ \sum_{i=1}^{\infty} (p_+ p_- r_1^2)^i \\
 &= t_1^2 \frac{p_+}{1 - p_+ p_- r_1^2} .
 \end{aligned} \tag{2.20}$$

Durch  $p_+$  und  $p_-$  wird die Phasenänderung der Streuwellen berücksichtigt, die sie im Bereich zwischen den Streuzentren erfahren. Es gilt  $p_+ = \exp(ikc)$  und  $p_- =$

$\exp(-ikc)$ . Durch Verdopplung dieses Stapels zu einer Folge von vier Streuzentren werden die Reflexions- und Transmissionskoeffizienten  $r_4$  und  $t_4$  analog zu  $r_2$  und  $t_2$  berechnet:

$$r_4 = r_2 + t_2^2 \frac{p_+ p_- r_2}{1 - p_+ p_- r_2^2} \quad (2.21)$$

$$t_4 = t_2^2 \frac{p_+}{1 - p_+ p_- r_2^2} \quad (2.22)$$

Bei  $2n$ -maliger Wiederholung dieser Verdopplung erhält man die Reflektivität einer Folge von  $2^n$  Streuzentren. Es reicht aus, diese Methode des „Layer-doubling“ bis  $n = 10$  durchzuführen, da im LEED-Energiebereich starke inelastische Dämpfung zum Abklingen der Wellenfunktion innerhalb einiger Atomlagen führt. So erhält man mit dieser Methode in guter Näherung die Ergebnisse einer analytischen Lösung des eindimensionalen Streuproblems. Im dreidimensionalen Fall kann es aber keine realistischen Ergebnisse liefern. Zusammen mit der Richtung der einlaufenden Wellen gibt es im eindimensionalen Modell nach Streuprozessen nur zwei mögliche Fortschreitungsrichtungen der Streuwellen, in gleicher oder entgegengesetzter Richtung. Bei einer Stapelfolge von zweidimensionalen Gitterebenen im Volumen kann bei jedem Streuprozess der mit  $\vec{k}_0$  einlaufenden Wellen der Austausch eines reziproken Gittervektors  $\vec{g} = (g_x, g_y)$  an einer beliebigen einzelnen Gitterebene stattfinden. Es existieren neben Wellen mit Wellenvektor  $\vec{k}_0$  auch solche mit einem Wellenvektor

$$\vec{k}'_{\vec{g}}{}^{\pm} = \left( k_{0x} + g_x, k_{0y} + g_y, \pm \sqrt{\frac{2m_e}{\hbar^2} (E - V_0) - |\vec{k}_{0\parallel} + \vec{g}|^2} \right) \quad (5). \quad (2.23)$$

Die Wellenfunktion zwischen zwei Gitterebenen  $n$  und  $n + 1$  ist dann die Summe aller möglichen Wellen

$$\varphi(\vec{r}) = \sum_{\vec{g}} \left\{ a_{n\vec{g}} \cdot \exp\left(i\vec{k}'_{\vec{g}}{}^+(\vec{r} - n\vec{c})\right) + b_{n\vec{g}} \cdot \exp\left(i\vec{k}'_{\vec{g}}{}^-(\vec{r} - n\vec{c})\right) \right\}. \quad (2.24)$$

Die Lösung des dreidimensionalen Streuproblems besteht jetzt darin, aus den Amplituden der einlaufenden Wellen  $a_{0\vec{g}}$  die der auslaufenden  $b_{0\vec{g}'}$  zu bestimmen. Sie sind über die Matrix  $\mathbf{R}_{\vec{g}'\vec{g}}$  miteinander verknüpft:

$$b_{0\vec{g}'} = \sum_{\vec{g}} \mathbf{R}_{\vec{g}'\vec{g}} a_{0\vec{g}}. \quad (2.25)$$

Die Matrix  $\mathbf{R}_{\vec{g}'\vec{g}}$  entspricht den  $r_i$  im eindimensionalen Fall und ist für das dreidimensionale Streuproblem von beliebiger Dimension. In Abschnitt 2.5 wird ein Programm vorgestellt, innerhalb dessen die Streumatrix des gesamten Kristalls, d. h. mit Kristall- und Barrierenbeiträgen, bei der Berechnung von VLEED-Spektren eingeht.

<sup>(5)</sup> Im Inneren des Kristalls wirkt auf die Elektronen ein attraktives, als inneres Potential  $V_0$  eingeführtes Potential. Da der Potentialgradient senkrecht zur Oberfläche verläuft, bleibt  $\vec{k}_{\parallel}$  beim Eintritt der Elektronen in die Oberfläche erhalten, während  $\vec{k}_{\perp}$  betragsmäßig zunimmt. Die Änderung der senkrechten Energiekomponente  $E_{i\perp} = E_{a\perp} - V_0$  muss bei der Berechnung der Wellenvektoren gestreuter Elektronenwellen im Kristall berücksichtigt werden.

### 2.2.4 Spinabhängigkeit der Streuung am Kristall

Neben der Coulombwechselwirkung, die dazu führt, dass die mittlere freie Weglänge der LEED-Elektronen nur wenige Angström beträgt, tritt vor allem in Materialien mit hoher Ordnungszahl  $Z$  die Spin-Bahn-Wechselwirkung auf. Sie führt dazu, dass bei der Streuung polarisierter Elektronen mit entgegengesetzter Spinorientierung eine Asymmetrie in der gestreuten Intensität auftritt.

Bei ferromagnetischen Materialien werden zusätzlich Austauschwechselwirkungsbeiträge zur gestreuten Intensität beobachtet, wobei das zugehörige Streupotential  $V_{\text{EX}}$  etwa zwei Größenordnungen kleiner ist als das der Spin-Bahn-Wechselwirkung  $V_{\text{SO}}$  [Alvarado et al. 1982]. Um den ungestörten magnetischen Austauschbeitrag des Streuprozesses zu bestimmen, wird im Allgemeinen eine experimentelle Geometrie gewählt, in der Spin-Bahn-Beiträge reduziert sind. Dies ist der Fall, wenn die Polarisation des einfallenden Elektronenstrahls  $\vec{P}$  sowie die Magnetisierung der Probe  $\vec{M}$  in der Streuebene liegen. Spin-Bahn-Beiträge werden dagegen z. B. nachgewiesen, wenn  $\vec{P}$  senkrecht zur Streuebene orientiert ist. Eine detailliertere Beschreibung spinabhängiger Streuprozesse an magnetischen und nicht magnetischen Oberflächen gibt [Feder 1981].

## 2.3 Streuung an der Barriere

Bei der Oberfläche eines Kristalls handelt es sich um eine zweidimensionale periodische Anordnung von Streuzentren, was, wie beschrieben, zur Beugung langsamer Elektronen führt. Der Potentialgradient der Oberflächenbarriere verläuft senkrecht zur Oberfläche, während sie parallel dazu als näherungsweise konstant angenommen wird (vergleiche Abschnitt 2.1.1). Zusätzliche Beugungsstrahlen aufgrund der Elektronenstreuung an der Oberflächenbarriere sind daher nicht zu erwarten und bislang weder experimentell beobachtet, noch in der Theorie behandelt worden.

Bei der theoretischen Analyse von Streuprozessen an metallischen Oberflächen wird die Oberflächenbarriere als oberste Lage auf einen Stapel von Gitterebenen aufgesetzt. Elektronen werden mit einer bestimmten Intensität reflektiert oder transmittiert analog zum eindimensionalen Modell des Streuproblems am Kristall aus Abschnitt 2.2.3.

Ein wesentlicher Unterschied ist jedoch, dass es sich bei der Oberflächenbarriere nicht um ein isotropes Streuzentrum handelt. Das bedeutet, einlaufende Wellen werden anders reflektiert oder transmittiert als auslaufende. Anstelle jeweils eines Reflexions- und Transmissionskoeffizienten werden zur Beschreibung der Barrierenstreuung deshalb jeweils zwei Koeffizienten ( $r^{-+}, r^{+-}$ ) und ( $t^{++}, t^{--}$ ) benötigt. (+) und (–) repräsentieren ein- und auslaufende Wellen. Diese vier Koeffizienten folgen aus der Lösung der Schrödinger Gleichung unter Annahme eines rein  $z$ -abhängigen Barrierenpotentials [Rundgren und Malmström 1977b].

## 2.4 Der gesamte VLEED-Streuprozess

In LEED-Experimenten werden  $I(V)$ -Kurven u. a. im spekulär reflektierten Elektronenstrahl aufgenommen. Darin treten für sehr geringe Energien ( $< 30$  eV) Fluktuationen in der Intensität auf, die als Feinstruktur bezeichnet werden und neben der Energie als Funktion des Einfallswinkels  $\Theta$  und des Azimutwinkels  $\Phi$  des einfallenden Elektronenstrahls gemessen werden.

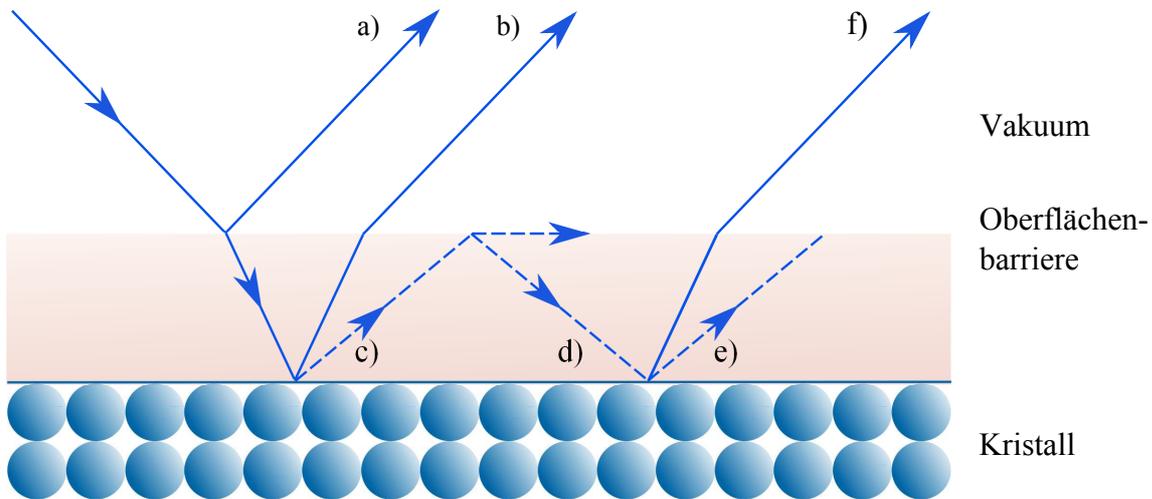
Bei der Berechnung von LEED- $I(V)$ -Kurven spielt in einem Energiebereich oberhalb  $\approx 100$  eV die Wahl des Modells der Oberflächenbarriere keine Rolle für die Erzielung von Übereinstimmungen mit experimentellen Kurven. Es werden im Allgemeinen Stufenbarrieren verwendet. Im Niederenergiebereich dagegen können die Feinstrukturen nur unter Berücksichtigung einer Barriere und Verwendung eines realistischen Modells reproduziert werden. Dabei bestimmen die Form und die Position der Oberflächenbarriere die Form der Serie von Feinstrukturzuständen. Daraus lässt sich folgern, dass das Auftreten der Feinstruktur direkt mit der Existenz der Barriere verknüpft ist. Im Umkehrschluss sollte sich aus einer experimentellen Messreihe der Feinstruktur durch Anpassen der Rechnungen durch Variation der Modellparameter die Barriere bestimmen lassen. Die Feinstruktur besitzt einige charakteristische Eigenschaften, die zum Teil direkt mit der Oberflächenbarriere in Verbindung gebracht werden können.

Die Feinstruktur besteht aus einer Serie von Feinstrukturzuständen, die gegen die in Glg. 2.15 eingeführte Emergenzenergie  $E_T$  konvergiert. Dabei beträgt der Abstand der ersten beiden Zustände zueinander etwa 1 eV, der Abstand des zweiten zum dritten Zustand 0,1 eV, usw. [Thurgate und Hitchen 1985], während die Amplitude der Zustände konstant ist. Die energetische Position eines Maximums  $n$ -ter Ordnung ist in etwa gegeben durch

$$E_{n,T} = E_T - \frac{R_y}{16(n+a)^2}. \quad (2.26)$$

Daraus folgt, dass der Feinstrukturzustand erster Ordnung ( $n = 1$ ) etwa 1 eV unterhalb der Emergenzenergie liegt [Echenique und Pendry 1978]. Die energetische Breite der Zustände skaliert mit  $n^{-3}$ . Sie ist für  $n = 1$  etwa eine Größenordnung geringer als die energetische Breite der primären Braggzustände und beträgt für  $n = 4$  etwa 30 meV [Echenique und Pendry 1978]. Die energetische Anordnung und Breite der Feinstrukturzustände ähnelt der durch die Rydberg-Gleichung beschriebenen Anordnung der Energieniveaus des Wasserstoffatoms. Der Faktor  $1/16$  stammt nach dem Konzept der Bildladung aus dem Abstand zwischen Elektron und Bildladung von  $2z$  [Nolting 1990]. Bei dem Quantendefekt  $a$  handelt es sich um einen Korrekturfaktor. Glg. 2.26 wird auch bei der Beschreibung von bildpotentialinduzierten Oberflächenzuständen an metallischen Oberflächen eingeführt [Fauster 2002]. In Anlehnung daran wird daher die Folge von Feinstrukturzuständen als Rydberg-Serie bezeichnet. Die Anordnung in einer Rydberg-Serie deutet darauf hin, dass die Oberflächenbarriere an der Entstehung der Feinstruktur beteiligt ist, da sie von Bildpotential-ähnlicher Form ist.

Rechnungen von LEED- $I(V)$ -Kurven zeigen außerdem, dass die Feinstruktur unter Annahme einer realistischen Oberflächenbarriere und eines Kristalls, in dem Elektronen nicht die in Abschnitt 2.2.3 beschriebenen Vielfachstreuungsprozesse durchlaufen, nicht reproduziert wird. Dies deutet darauf hin, dass ihre Entstehung auf eine Wechselwirkung zwischen gebeugten Elektronenstrahlen mit der Oberflächenbarriere zurückzuführen ist. Zur Beschreibung des VLEED-Streuprozesses, aus dem die Feinstruktur hervorgeht, müssen also die Ergebnisse der vorherigen Abschnitte bzgl. der Streuung an der Oberflächenbarriere und am Kristall kombiniert werden. Aus der Kombination von Barrieren- und Kristallstreuung ergeben sich eine Vielzahl von möglichen Prozessen, die zu verschiedenen Strahlengängen der gestreuten Elektronen an der Oberfläche führen. Einige davon sind in Abb. 2.8 dargestellt.



**Abbildung 2.8:** Schematische Darstellung des Strahlengangs beim VLEED-Streuprozess.

Ein Elektron kann direkt an der Barriere reflektiert werden (a). Außerdem kann es durch die Barriere transmittiert, am Kristall reflektiert und wieder durch die Barriere transmittiert werden (b). Eine weitere Möglichkeit ist, dass es nach der Reflexion am Kristall auch an der Barriere zurückreflektiert wird. Dieser Prozess kann sich beliebig<sup>(6)</sup> oft wiederholen bis das Elektron wieder an der Barriere transmittiert wird. Am Kristall kann es neben der Reflexion des Elektrons auch zu einem Beugungsprozess kommen, bei dem das Elektron z. B. einen reziproken Gittervektor der Oberfläche aufnimmt (c). Danach kann es zunächst an der Barriere unter Umständen transmittiert oder reflektiert (d) werden und danach am Kristall fortlaufend reflektiert (e) oder aber durch Zurücktauschen des reziproken Gittervektors wieder in Richtung des reflektierten Strahls gebeugt werden (f). Die einzelnen Prozesse werden durch die Reflexions-  $\mathbf{r}^{-+}(\mathbf{r}^{+-})$  und Transmissions-  $\mathbf{t}^{++}(\mathbf{t}^{--})$  Matrizen der Oberflächenbarriere für einlaufende (auslaufende) Elektronen bzw. die Streumatrix des Kristalls  $\mathbf{R}^{-+}$  des Kristalls beschrieben.  $\mathbf{R}_{00}^{-+}$  bezeichnet einen reinen Reflexionsprozess am Kristall,

<sup>(6)</sup>Im Wellenbild der Elektronen treten bei jedem Reflexionsprozess Intensitätsverluste auf, die letztendlich dazu führen, dass eine mehrfach reflektierte Welle weggedämpft wird.

während  $\mathbf{R}_{0\vec{g}}^{-+}$  bedeutet, dass ein einlaufender Elektronenstrahl am Kristall gebeugt wird und ein durch  $\vec{g}$  gekennzeichneteter Gittervektor ausgetauscht wird. Alle möglichen Prozesse summieren sich zur gesamten Streumatrix des VLEED-Streuprozesses

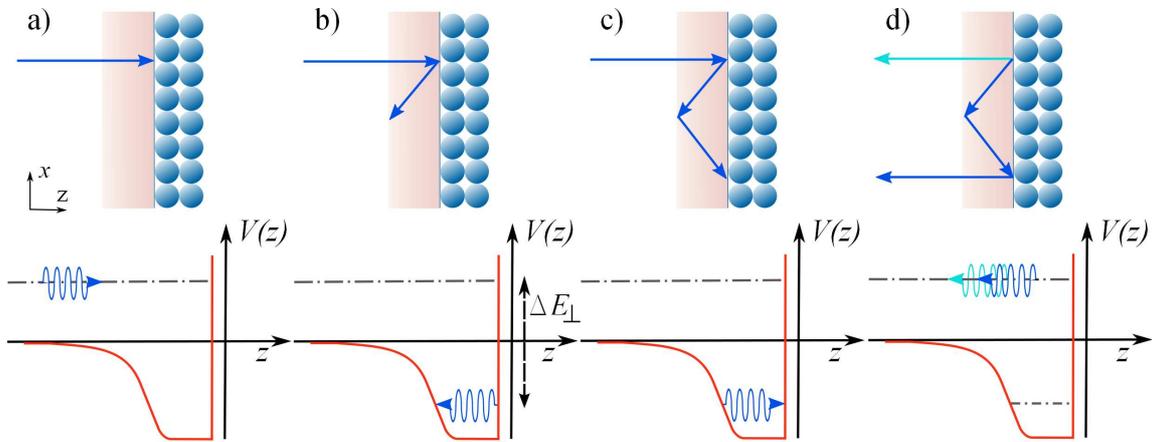
$$\mathbf{R}_{\text{VLD}} = \mathbf{r}_{00}^{-+} + \mathbf{t}_{00}^{-+} \mathbf{R}_{00}^{-+} \mathbf{t}_{00}^{++} + \mathbf{t}_{00}^{-+} \mathbf{R}_{0\vec{g}}^{-+} \mathbf{r}_{\vec{g}\vec{g}}^{+-} \mathbf{R}_{\vec{g}0}^{-+} \mathbf{t}_{00}^{++} + \dots \quad (2.27)$$

[Jones und Jennings 1983].  $\mathbf{r}_{00}^{-+}$  ist im vorliegenden Energiebereich klein und wird im Allgemeinen vernachlässigt.

Die Ursachen für das Auftreten der Feinstruktur in der Amplitude des spekulär reflektierten Strahls  $A_{00}$  ist die Interferenz zwischen dem am Kristall reflektierten ( $R_{00}$ ) und einem am Kristall gebeugten ( $R_{0\vec{g}}$ ) Elektronenstrahl. Aufgrund inelastischer Streuprozesse am Kristall sind die Terme über die in Glg. 2.27 angegebene Ordnung hinaus vernachlässigbar [Jones und Jennings 1983]. Die Amplitude des spekulären Strahls inklusive des Interferenzterms ergibt sich daher in guter Näherung zu

$$\begin{aligned} A_{00} &= t_{00}^{-+} R_{00}^{-+} t_{00}^{++} + t_{00}^{-+} R_{0\vec{g}}^{-+} r_{\vec{g}\vec{g}}^{+-} R_{\vec{g}0}^{-+} t_{00}^{++} \\ &= t_{00}^{-+} t_{00}^{++} \left[ R_{00}^{-+} + R_{0\vec{g}}^{-+} r_{\vec{g}\vec{g}}^{+-} R_{\vec{g}0}^{-+} \right], \end{aligned} \quad (2.28)$$

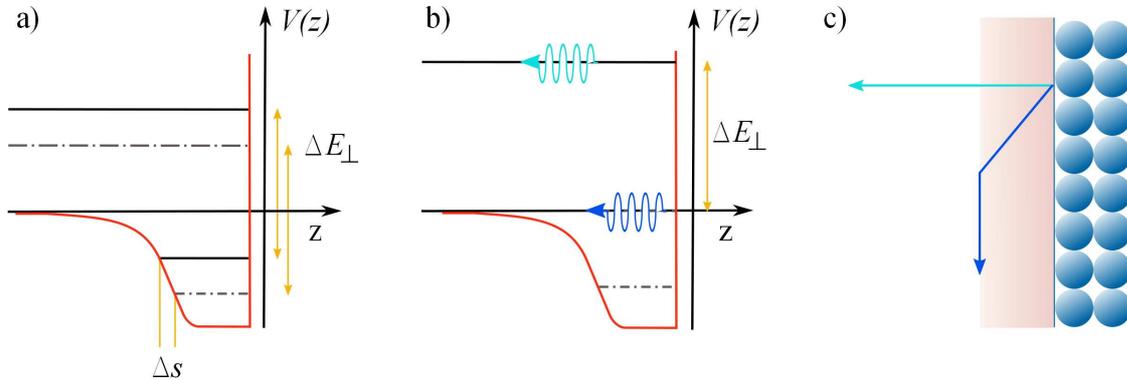
wobei  $r$  und  $t$  die Reflexions- und Transmissionskoeffizienten der Barriere sind und  $R$  der Reflexionskoeffizient des Kristalls ist [Jones und Jennings 1988].



**Abbildung 2.9:** Schematische Darstellung des Interferenzmechanismus beim VLEED-Streuprozess. Oberer Teil: Strahlengang. Unterer Teil: Änderung der senkrechten Energiekomponente  $\Delta E_{\perp}$  der Elektronen relativ zum Potential  $V(z)$  durch den Beugungsprozess.

Der Interferenzprozess lässt sich zunächst qualitativ wie folgt beschreiben. Ein Elektronenstrahl trifft wie in Abb. 2.9 a) gezeigt auf die Kristalloberfläche. Dort wird er reflektiert, aber auch gebeugt b). Nach Glg. 2.13 wird beim elastischen Austausch eines reziproken Gittervektors der zur Oberfläche senkrechte Anteil der

Elektronenenergie um  $\Delta E_{\perp}$  kleiner. Für ausreichend kleine Energien der einfallenden Elektronen ist dann  $E_{\perp} < 0 \hat{=} E_{\text{Vac}}$ , so dass der gebeugte Elektronenstrahl unterhalb der Vakuumenergie des Kristalls  $E_{\text{Vac}}$  im Potentialtopf zwischen der Kristalloberfläche und der Barriere propagiert. Nachdem er an der Barriere intern zurückreflektiert wurde c), wird er durch zurücktauschen des reziproken Gittervektors wieder in die Richtung des reflektierten Strahls zurückgebeugt d). An dieser Stelle des VLEED-Streuprozesses interferieren der reflektierte und der den Beugungsprozess durchlaufende Elektronenstrahl miteinander. Die Phasendifferenz ergibt sich aus der Wegdifferenz. Bei Erhöhung der Elektronenenergie wandert der gebeugte Elektronenstrahl zu höheren Energien im Potentialtopf der Oberfläche (Abb. 2.10 a)). Da die Steigung des Barrierepotentials dort abnimmt, ändert sich die Wegdifferenz und damit die Phasendifferenz immer stärker als Funktion der Elektronenenergie. Infolgedessen ergibt sich in der Intensität des spekularen Strahls eine Folge von Interferenzmaxima und -minima, deren Abstand mit zunehmender Elektronenenergie abnimmt. Diese Folge entspricht der in Abb. 2.1 b) gezeigten Feinstruktur mit den am Anfang dieses Abschnitts eingeführten Eigenschaften. Die Feinstruktur bricht bei der Elektronenenergie ab, bei der der gebeugte Strahl am Vakuumniveau propagiert, d. h. parallel zur Oberfläche mit  $E_{\perp} = 0$  (s. Abb. 2.10 b) und c)). Dies entspricht der Emergenzenergie  $E_T$  zum Austritt des gebeugten Strahls.



**Abbildung 2.10:** Schematischer Potentialverlauf  $V(z)$  vor der Kristalloberfläche. a) Änderung der Weglänge des gebeugten Elektronenstrahls im Potentialtopf der Oberfläche um  $2\Delta s$  bei Erhöhung der Elektronenenergie. b) Die Elektronenenergie entspricht jetzt der Emergenzenergie  $E = E_T$  an der Schwelle zum Austritt des gebeugten Elektronenstrahls zum reziproken Gittervektor  $\vec{g}$ . Dabei ist  $E_{\perp} = 0$ . c) Im schematischen Bild des Strahlengangs entspricht b) dem Fall eines parallel zur Oberfläche propagierenden Elektronenstrahls.

Zur quantitativen Beschreibung des VLEED-Streuprozesses werden den Amplituden in Glg. 2.28 Phasen ( $\Phi_{a,b,B}$ ) und Beträge ( $a, b, r$ ) zugeordnet [Bosse et al. 1982]:

$$t_{00}^{--} R_{00}^{-+} t_{00}^{++} = a \cdot e^{i\Phi_a} \quad , \quad t_{00}^{--} R_{0\bar{g}}^{-+} R_{\bar{g}0}^{-+} t_{00}^{++} = b \cdot e^{i\Phi_b} \quad , \quad r_{\bar{g}\bar{g}}^{-+} = r \cdot e^{i\Phi_B}. \quad (2.29)$$

Dabei sind  $a$  bzw.  $b$  der Reflexion bzw. Beugung am Kristall und  $r$  und  $B$  der Reflexion an der Barriere zuzuordnen. Zu beachten ist außerdem, dass  $\Phi_{a,b}$  und  $\Phi_B$  energieabhängig sind. Für die spekulär reflektierte Intensität  $I_{00}$  ergibt sich damit

$$I_{00} = |A_{00}|^2 = a^2 + b^2 r^2 + 2abr \cdot \cos(\Phi_B + \Psi) \quad , \quad \Psi = \Phi_b - \Phi_a. \quad (2.30)$$

Konstruktive Interferenz tritt auf für  $\Phi_B(E) + \Psi(E) = 2\pi \cdot n, n \in \mathbb{Z}$ .

Vor 1980 wurde das Auftreten von Feinstrukturen in VLEED- $I(V)$ -Kurven mit dem Auftreten von Oberflächenresonanzen in Verbindung gebracht [McRae 1979]. Dabei sollten die gebeugten Elektronen mit  $E_{\perp} < 0$  im Potentialtopf der Oberfläche gebunden sein, so dass sie dort eine Vielzahl von Reflexionsprozessen durchlaufen. Dafür müssen verschiedene Bedingungen erfüllt sein. Ordnet man den Streuamplituden an Barriere und Kristall wieder Betrag ( $r_B$  und  $r_C$ ) und Phase ( $\Phi_B$  und  $\Phi_C$ ) zu, so gilt

$$r^{+-} = r_B \cdot e^{i\Phi_B} \quad , \quad R^{-+} = r_C \cdot e^{i\Phi_C}, \quad (2.31)$$

mit  $\Phi_B(E)$  bzw.  $\Phi_C(E)$  als Phasenänderung bei der Streuung an der Barriere bzw. am Kristall. Als Summe über die Amplituden nach  $n$  Reflexionsprozessen zwischen Kristall und Barriere ergibt sich

$$\sum_{j=0}^n \left\{ r_B r_C \cdot e^{i(\Phi_B + \Phi_C)} \right\}^j \xrightarrow{n \rightarrow \infty} \left( 1 - r_B r_C \cdot e^{i(\Phi_B + \Phi_C)} \right)^{-1}. \quad (2.32)$$

Ein Pol in diesem Ausdruck bedeutet das Auftreten eines gebundenen Oberflächenzustands [Echenique und Pendry 1978]. Bedingungen dafür sind, dass der Elektronenstrahl sowohl an der Barriere als auch am Kristall totalreflektiert wird (d. h.  $r_B r_C = 1$ ) und zusätzlich dass sich  $r_B$  und  $r_C$  stark mit der Energie ändern, so dass Energien  $E_n$  existieren für die  $\Phi_B(E_n) + \Phi_C(E_n) = 2\pi \cdot n$  gilt. Sind diese sehr strikten Bedingungen erfüllt, tritt die Oberflächenresonanz als zusätzlicher Streukanal für die gebeugten Elektronen mit passender Energie  $E_{\perp} = E_n$  auf. Nach einer gewissen Zeit zerfällt dieser Zustand wieder. Die Elektronen werden in den spekulären Strahl zurückgebeugt und erzeugen dort Maxima in der spekulären Intensität. Da die beteiligten Oberflächenzustände aus dem Barrierenpotential hervorgehen<sup>(7)</sup>, ist die Folge der Maxima wiederum in einer Rydberg-Serie angeordnet [McRae 1979].

[Bosse et al. 1982] zeigen allerdings, dass der Interferenzmechanismus der dominierende Prozess für das Auftreten der Feinstruktur in VLEED- $I(V)$ -Kurven ist und dass, selbst wenn Bedingungen zum Auftreten eines Oberflächenzustands erfüllt sind,

<sup>(7)</sup> Wird die Phasenbedingung durch Variation von  $\Phi_B$  erfüllt, spricht man von einem barriereinduzierten Oberflächenzustand [Echenique und Pendry 1978].

die Annahme eines reinen Resonanzmechanismus nicht korrekt ist<sup>(8)</sup>. Das verdeutlicht die Stärken des VLEED-Experiments zur Bestimmung der Oberflächenbarriere. Für den Interferenzmechanismus müssen die gebeugten Elektronenstrahlen keinen gebundenen Zustand einnehmen. Vielmehr treten inelastische Streuprozesse am Kristall auf, so dass gebeugte Elektronen, die mehrfach zwischen Kristall und Barriere hin und her reflektiert werden, nicht zur Feinstruktur beitragen (s. o.). Trotzdem treten stark ausgeprägte Feinstrukturen auf [Gaubert et al. 1984]. Darin liegt auch der Vorteil des VLEED-Experiments gegenüber der Inversen Photoemission, in deren Rahmen die Bestimmung der Oberflächenbarriere anhand der Dispersion von Oberflächenzuständen erfolgt. VLEED ist in diesem Fall die universellere Methode, da sie nicht auf das Auftreten von Oberflächenzuständen angewiesen ist.

Aus dem VLEED-Streuprozess, der zur Entstehung der Feinstruktur führt, kann noch eine weitere wichtige Schlussfolgerung gezogen werden. Gerade die ersten Zustände der Feinstruktur-Serie stammen aus einer Wechselwirkung, an der gebeugte Elektronen beteiligt sind, die im unteren Teil des Potentialtopfes der Oberfläche propagieren. Für Maxima bzw. Minima höherer Ordnung dagegen propagieren die beteiligten gebeugten Strahlen im oberen Teil und werden am mehr und mehr Bildpotential-ähnlichen Teil der Barriere reflektiert. Dieser ändert sich weder als Funktion der Barrierenparameter noch der verschiedenen Barrierenmodelle signifikant, sondern ist für alle Barrieren gleich. Informationen über die charakteristischen Details der Barrierenform, das ist insbesondere der Bereich, in dem der Übergang in das innere Potential erfolgt, finden sich daher in der ersten und zweiten Ordnung der Rydberg-Serie, in den Positionen der Maxima und Minima dieser Feinstrukturzustände [Gaubert et al. 1983]. Daraus folgern Gaubert *et al.*, dass hochauflösende VLEED-Experimente in Bezug auf die Energieauflösung nicht unbedingt notwendig sind. Für die eindeutige Bestimmung der Oberflächenbarriere ist vielmehr die Messung der ersten Feinstrukturzustände unter Variation der experimentellen Parameter entscheidend.

Bei Variation des Einfallswinkels  $\Theta$  und des Azimutwinkels  $\Phi$  ändert sich die energetische Position der Feinstruktur, da die Emergenzenergie  $E_T$  eine Funktion dieser Parameter ist. Nach Hitchen und Thurgate folgt aus Glg. 2.13 und der Geometrie des Strahlengangs (s. Abb. 2.8) die in  $\sqrt{E_T}$  quadratische Gleichung

$$0 = -F^2 E_T \cdot \cos^2(\Theta) + 2F \sqrt{E_T} \cdot \sin\Theta \left( \frac{k}{b_1} \cos\Phi + \frac{l}{b_2} \sin\Phi \right) + \left( \frac{k}{b_1} \right)^2 + \left( \frac{l}{b_2} \right)^2 \quad (2.33)$$

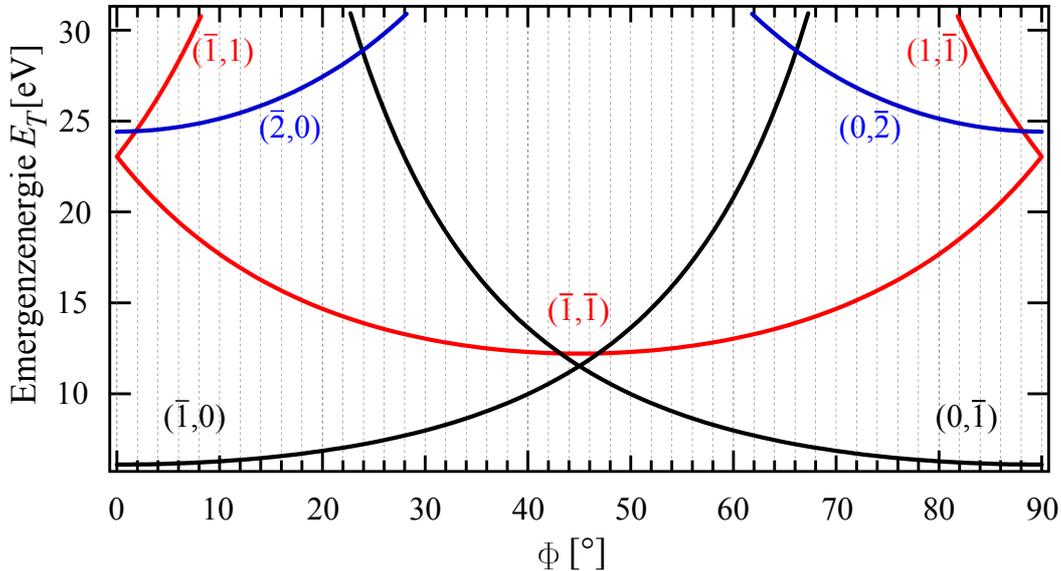
[Hitchen und Thurgate 1988a].  $k$  und  $l$  sind die Millerschen Indizes des beteiligten gebeugten Strahls,  $b_1$  und  $b_2$  die Längen der Gittervektoren der Oberfläche des Kristalls in Angström und  $F = \frac{\sqrt{2m_e}}{h}$  eine Konstante, wobei  $h$  das Plancksche Wirkungsquantum ist.  $E_T$  wird in Elektronenvolt angegeben.

In Abb. 2.11 ist  $E_T(\Phi)$  für einige Feinstrukturen zu unterschiedlichen Beugungsordnungen der Cu(001)-Oberfläche dargestellt. Die Feinstrukturen liegen jeweils genau

---

<sup>(8)</sup>Insbesondere ist die Feinstruktur in der spekularen Intensität an Cu(001) auf einen reinen Interferenzmechanismus zurückzuführen.

unterhalb der Emergenzenergie  $E_T(\Phi)$  und für einige Winkel  $\Phi$  ist zu erwarten, dass im VLEED-Spektrum mehr als eine Feinstruktur auftritt.



**Abbildung 2.11:** Emergenzenergie  $E_T$  als Funktion des Azimutwinkels  $\Phi$  bei  $\Theta = 70^\circ$  für verschiedene Feinstrukturen der fcc-Cu(001)-Oberfläche nach Glg. 2.33. Dabei ist  $b_1 = b_2 = b/\sqrt{2}$  mit  $b_{\text{Cu}(001)} = 3,61 \text{ \AA}$  [Ashcroft 1976].  $\Phi = 45^\circ$  entspricht einem Elektroneneinfall entlang der [11]-Richtung der Oberfläche bzw. der [100]-Richtung des Volumenkristalls (s. auch Abb. 3.13).

Es ist u. U. bei der Berechnung von VLEED-Spektren möglich, Feinstrukturen zwar z. B. zu einem einzelnen Azimutwinkel  $\Phi$  zu reproduzieren. Gleichzeitig kann aber der gewählte Satz an Barrierenparametern bei der Darstellung der gleichen Feinstruktur unter anderen Azimutwinkeln versagen. Zur eindeutigen Bestimmung der Oberflächenbarriere, d. h. der Barrierenparameter vom gewählten Modell, müssen daher  $I(V)$ -Kurven zu verschiedenen Einfallswinkel- und Azimutwinkeln vorliegen, um die einzelnen Rechnungen jeweils zu überprüfen. Dabei ist dann vor allem eine Übereinstimmung im ersten Maximum bzw. Minimum der Feinstruktur wichtig (s. dazu [Dietz et al. 1980, Gaubert et al. 1983]).

## 2.5 Berechnung von VLEED-Spektren mit einem „LEED Computer Program“

Die in dieser Arbeit gezeigten theoretischen VLEED-Spektren werden mit dem „LEED Computer Program“ zur Kalkulation von LEED-Intensitäten nach Pendry berechnet [Pendry 1974].

Der Kristallanteil an den Streuintensitäten folgt aus der numerischen Lösung der

Dirac-Gleichung für das sphärisch symmetrische Potential innerhalb des kugelförmigen endlichen Volumens eines einzelnen Ionenrumpfs des Festkörpers mit Muffin-Tin Radius. Durch einen heuristisch modellierten Imaginärteil des Potentials  $V$  der Form

$$\text{Im}(V) = a + b(E - E_F)^c \quad (2.34)$$

mit  $a, b, c$  als Parameter werden Lebensdauereffekte und deren Einfluss auf die Intensität der einzelnen Feinstrukturzustände berücksichtigt ([Braun 2011] nach [Samarin et al. 2007]). Aus den Ankopplungsbedingungen am Rand dieser Kugel an das langreichweitige Coulomb-Potential im Volumen außerhalb der Kugel ergibt sich die Streumatrix für einen einzelnen Ionenrumpf. Die in Abschnitt 2.2.2 eingeführten Streuphasen  $\delta_l$  sind Teil dieser Lösung für Austausch- und Spin-Bahn-Wechselwirkungsfreie Systeme. Ansonsten sind sie aufgrund einer Kopplung der Drehimpulse  $l$  nicht wie eingeführt definiert [Braun 2011]. Mittels der Methoden der Vielfachstreuung wird aus der Streumatrix eines einzelnen Ionenrumpfs die Streumatrix einer Atomlage berechnet. Bei einem System, das aus einer Anordnung identischer Schichttypen besteht, wird dann anhand der Layer-doubling-Methode die Streumatrix eines unendlichen Stapels von Schichten bestimmt. In der Praxis konvergiert die berechnete Streuintensität numerisch, wenn eine Folge von, je nach betrachtetem System, etwa 20 Atomlagen berücksichtigt wird [Braun 2011]. Mit der so ermittelten  $(20 \times 20)$ -Matrix ergibt sich die Streuintensität eines bestimmten, z. B. des spekularen Strahls aus der Summe über eine symmetrische Zahl von reziproken Gittervektoren bzw. über die diesen entsprechenden Beugungsstrahlen (vergleiche Glg. 2.25). Für Cu(001) werden 21 reziproke Gittervektoren berücksichtigt [Braun 2011].

Die Bestimmung der Reflexions- und Transmissionsmatrizen der Oberflächenbarriere folgt aus der analytischen Lösung der Schrödinger Gleichung für ein  $(1/z)$ -Potential für  $z \rightarrow -\infty$  (im Vakuum) und für ein konstantes Potential für  $z = 0$  (Kristalloberfläche) sowie den Ankopplungsbedingungen für die Lösungen an der Spiegelebene  $z = z_I$ .

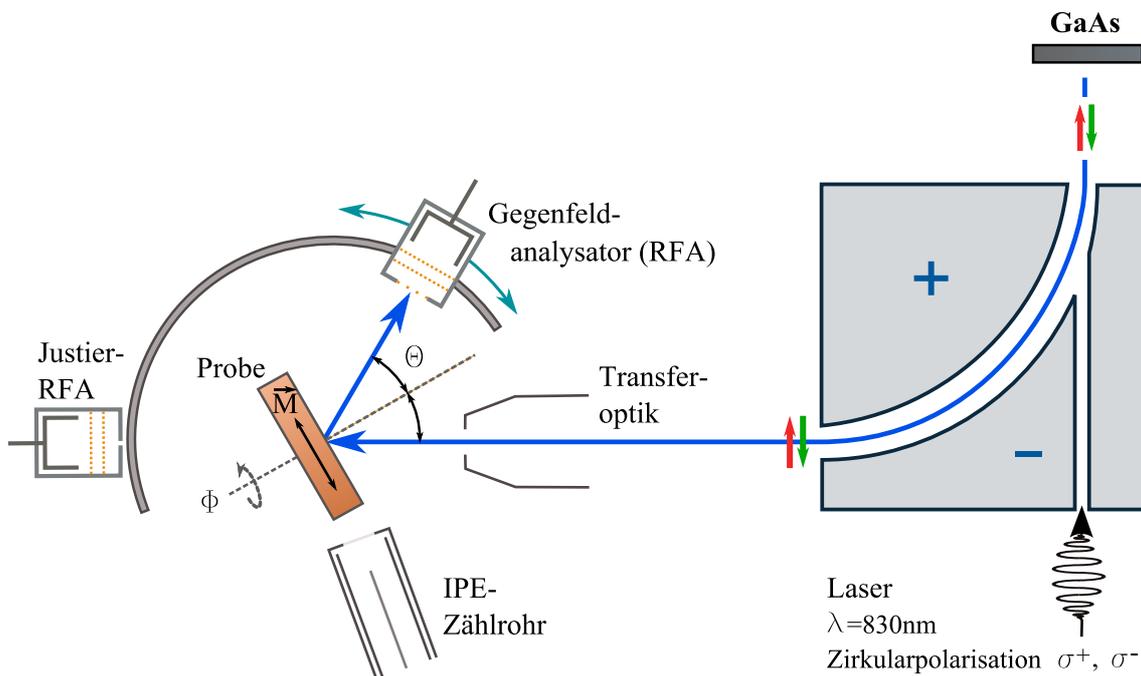
Erneutes Anwenden der Layer-doubling-Methode koppelt schließlich die Barrierenmatrix an die Kristallmatrix und man erhält die komplette Streumatrix zur Berechnung der Streuintensitäten des VLEED-Experiments.

Das Ergebnis dieser Rechnungen sind Simulationen von VLEED- $I(V)$ -Kurven auf der Grundlage der berechneten Streumatrizen für Barriere und Kristall. Durch Vergleiche dieser berechneten  $I(V)$ -Kurven mit gemessenen werden die Parameter wie z. B. die Spiegelebene  $z = z_I$  eines gewählten Barrierenmodells bestimmt. Mit diesen Parametern wird dann die Oberflächenbarriere modelliert.

# 3 Aufbau und Charakterisierung der VLEED-Apparatur

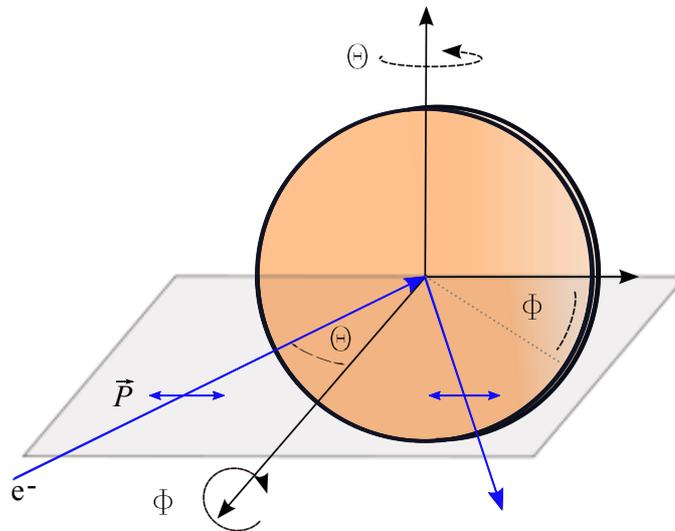
## 3.1 Apparativer Aufbau

Die VLEED-Apparatur besteht aus zwei Ultrahochvakuumkammern, der Analysenkammer und der Quellenkammer, die zu Präparationszwecken durch ein Ventil voneinander getrennt werden können. Die Analysenkammer ist in zwei Ebenen unterteilt, die in Abb. 3.1 schematisch dargestellte Messebene und die Präparations-ebene. In der zweiten Kammer, der Quellenkammer, werden ebenfalls in der Messebene spinpolarisierte Elektronen erzeugt, die durch ein System aus 90°-Ablenker und Transferoptik in die Analysenkammer gelangen.



**Abbildung 3.1:** Schematische Darstellung der Messebene. Im rechten Teil erfolgt die Erzeugung spinpolarisierter Elektronen, links befinden sich das VLEED- und IPE-Messsystem in der Analysenkammer. Für Bezeichnungen siehe auch Text.

In der Messebene der Analysenkammer befindet sich das VLEED-Messsystem und zusätzlich ein IPE-Messsystem. Das VLEED-Messsystem besteht aus der Elektrodenquelle und einem Gegenfeldanalysator. Der Analysator fungiert als Hochpass. Durch Anlegen einer definierten Gegenspannung kann er zur Detektion der von der Probe elastisch reflektierten Elektronen verwendet werden. Er ist auf einer Schiene befestigt, so dass er in der Messebene auf einer Kreisbahn mit einem Abstand von 2 cm um deren Mittelpunkt bewegt werden kann. Damit besteht die Möglichkeit, bei VLEED-Messungen unter verschiedenen Einfallswinkeln  $\Theta$  der Elektronen auf die Probe, den Analysator in die Messposition im spekularen Strahl zu verfahren. Die von der Probe reflektierten Elektronen treffen so immer senkrecht auf die Oberfläche des Analysators. Des Weiteren kann der Analysator bis senkrecht vor die Austrittsblende der Transferoptik bewegt werden, um die Energieauflösung des Elektronenstrahls zu untersuchen. Dafür wird die Probe aus der Messebene herausgefahren. Der Probenmanipulator ist entkoppelt vom VLEED-Messsystem und ermöglicht, wie in Abb. 3.2 dargestellt, neben der Drehung um eine polare Achse zur Einstellung des Einfallswinkels  $\Theta$  und der Bewegung der Probe in die verschiedenen Mess- und Präparationspositionen auch eine Drehung um die Probennormale zur Variation des Azimutwinkels  $\Phi$  in VLEED-Messungen.



**Abbildung 3.2:** Schematische Darstellung des Strahlengangs der Elektronen im Experiment: Sie treffen unter dem Einfallswinkel  $\Theta$  und dem Azimutwinkel  $\Phi$  auf die Probenoberfläche.  $\Phi$  wird i. A. relativ zu einer Hauptsymmetrierichtung des Kristalls angegeben. Der Polarisationsvektor  $\vec{P}$  der Elektronen liegt in der Streuebene.

An das VLEED-Messsystem gekoppelt ist außerdem ein zweiter Gegenfeldanalysator mit einer Eintrittsblende von 0,5 mm Durchmesser, der gegenüber der Austrittsblende der Transferoptik an der Schiene fixiert ist. Er wird zur Justierung des Elektronenstrahls benutzt („Justier-RFA“). Da die Schiene mittels eines Manipulators zusätzlich in den drei Raumrichtungen verfahrbar ist, können mit dem Justier-RFA

Strahlprofile aufgenommen werden. Der Weg der Elektronen von der Austrittsblende der Transferoptik zur Probe bzw. von der Probe zum Analysator während einer Messung beträgt jeweils 2 cm. Fällt der Elektronenstrahl direkt gegenüber in den Analysator bzw. den Justier-RFA, beträgt der Abstand 4 cm bzw. 6 cm. Um zu verhindern, dass die Elektronen im VLEED-Energiebereich auf diesen Wegen z. B. durch das Erdmagnetfeld von ihrer ursprünglichen Bahn abgelenkt werden, ist die Analysenkammer mit einer Co-netic Legierung ausgekleidet, die aufgrund ihrer hohen Permeabilität solche Störfelder abschirmt. Aus diesem Grund sind auch die Transferoptik und die Quellenkammer mit Co-netic ausgekleidet.

In der Messebene befindet sich neben dem VLEED-Messsystem noch ein Geiger-Müller-Zählrohr als Photonendetektor des IPE-Messsystems unter  $70^\circ$  zur Austrittsblende der Transferoptik. Die Funktionsweise des optischen Bandpasses aus  $\text{CaF}_2$ -Fenster und Aceton Zählgas wird z. B. von Budke *et al.* beschrieben [Budke et al. 2007].

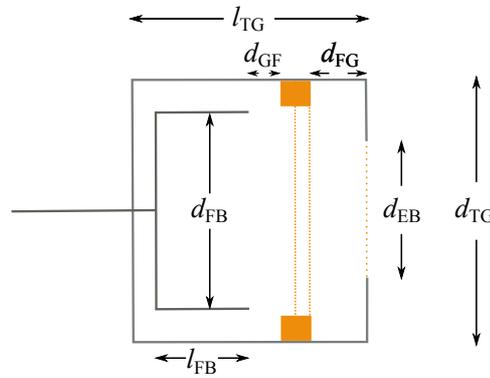
Oberhalb der Messebene liegt die Präparationsebene. Bestandteile dieser Ebene sind zum einen die Instrumente zur Probenpräparation wie die mit Argon betriebene Sputterkanone, der Verdampfer und die elektromagnetische Spule zur Magnetisierung von ferromagnetischen Proben. Zum anderen befinden sich dort ein kombiniertes System aus LEED-Optik und AES-Spektrometer zur Charakterisierung der kristallographischen Ordnung bzw. zur chemischen Analyse der präparierten Oberflächen. Detailliertere Beschreibungen dieser oberflächensensitiven Messmethoden geben z. B. Ertl und Küppers [Ertl 1985]. Zum Heizen der Probe bis ca. 600 K ist hinter der Probe ein Heizfilament aus thoriertem Wolframdraht angebracht. Im Folgenden werden der Gegenfeldanalysator und die Quelle spinpolarisierter Elektronen als Hauptbestandteile des VLEED-Messsystems genauer beschrieben.

### 3.1.1 Gegenfeldanalysator

Der im Rahmen dieser Arbeit entstandene Zwei-Gitter-Gegenfeldanalysator (RFA) hat die Aufgabe, nur elastisch reflektierte Elektronen, d. h. Elektronen oberhalb einer bestimmten kinetischen Energie, zu detektieren. Dies geschieht mittels eines in Abb. 3.3 schematisch dargestellten Zwei-Gitter-Systems, an das eine negative Spannung angelegt wird. Die im Analysator ankommenden Elektronen erfahren ein abbremsendes Feld, das sie idealerweise erst ab einem ausgewählten Impuls überwinden können. Hinter den Gittern besitzen sie dann eine kinetische Energie von etwa 0 eV und werden mit einer positiven Abzugsspannung zum Faradaybecher beschleunigt und gezählt. Allerdings ist der Gegenfeldanalysator nicht auf die totale kinetische Energie bzw. den Gesamtimpuls der Elektronen empfindlich, sondern nur auf den zur Fläche der Gitter senkrechten Anteil. Bei einer endlichen Winkelauflösung des Elektronenstrahls unterscheiden sich aber die senkrechten Impulskomponenten der Elektronen bei gleicher kinetischer Energie entsprechend ihres Auftreffwinkels. Dies würde zu einer effektiven Verbreiterung der Elektronenenergieverteilung im Analysator führen.

Zusätzlich treten Inhomogenitäten des Gegenfelds auf, die letztendlich auch zu einer durch den Messprozess verbreiterten Energieverteilung der Elektronen führen. Um diesen Effekt von vornherein zu minimieren, werden zwei aufeinanderfolgende

Gitter anstelle von nur einem einzelnen verwendet. Trotzdem führt dies zu einer endlichen Größe des Analysators dazu, dass die Äquipotentialflächen der Gitter vor allem im Randbereich nicht mehr parallel zueinander und zu den Gittern verlaufen. Zusätzlich verursacht die Öffnung des Analysators eine Krümmung der Äquipotentialflächen in dessen Zentrum. Diese Effekte können durch die Wahl der Verhältnisse von Außendurchmesser des Analysators, Durchmesser der Eintrittsblende und Abstand der Gitter zur Front des Analysators minimiert werden. Die Wahl des Außendurchmessers beschränkt den minimal einstellbaren Elektroneneinfallswinkel, unter dem VLEED-Messungen durchgeführt werden können. Bei der getroffenen Wahl von  $d_{TG} = 19 \text{ mm}$  (Abb. 3.3) liegt dieser bei etwa  $\Theta = 25^\circ$ . Nach [Liebl 2006] sollte ausgehend vom Wert für  $d_{TG}$  der Abstand des ersten Gitters zur Analysatorfront  $d_{FG} = 2,7 \text{ mm}$  betragen. Für den Durchmesser der Eintrittsblende wird ein optimaler Wert von  $d_{EB} = 0,5 \text{ mm}$  angegeben. Die Blende sollte außerdem am Rand kegelförmig angeschragt sein, um den Felddurchgriff an dieser Stelle zu minimieren.



**Abbildung 3.3:** Schematische Darstellung des Gegenfeldanalysators; für Bezeichnungen siehe Text.

Im Rahmen der Messungen stellt sich heraus, dass bei diesem  $d_{EB}$  eine starke Abhängigkeit der Transmission durch die Blende als Funktion der Elektronenenergie auftritt. Aus einer Testreihe verschiedener Blendendurchmesser bei ansonsten gleichbleibenden Analysatorabmessungen ergibt sich, dass für ein  $d_{EB} = 7 \text{ mm}$  diese Transmissionseffekte keinen Einfluss mehr nehmen bei einer akzeptablen Energieauflösung [Burgbacher 2010]. Zur Minimierung des Felddurchgriffs wird über die Eintrittsblende ein Molybdännetz der Maschenweite  $(0,6 \cdot 0,6) \text{ mm}^2$  gespannt. Die verzögernden Gitter mit einer Maschenweite von  $(0,1 \cdot 0,1) \text{ mm}^2$  sind in einem Abstand von  $1 \text{ mm}$  zueinander, absichtlich nicht deckungsgleich angebracht. Das vermindert den Einfluss von Linseneffekten [Hammer 2010]. Im Abstand  $d_{GF} = 1,4 \text{ mm}$  zum zweiten Gitter liegt der zylinderförmige Faradaybecher mit einem Durchmesser  $d_{FB} = 10 \text{ mm}$  und einer Länge  $l_{FB} = 4,5 \text{ mm}$ .

Alle Teile des Analysators sind aus unmagnetischem Titan gefertigt, so dass keine magnetischen Streufelder die Messungen beeinflussen. Alle Gitter bestehen aus ebenfalls unmagnetischem Molybdän mit einer Drahtstärke von  $25 \mu\text{m}$  und wurden

vergoldet. Sowohl auf dem Außenteil des RFA als auch im Innenteil, d. h. im Faradaybecher, kann der auftreffende Elektronenstrom gemessen werden. Während einer VLEED-Messung wird der Außenteil geerdet und an den verzögernden Gittern liegt eine Spannung an, die PC gesteuert über einen LabView Rahmen durchgeföhren werden kann. Die am Faradaybecher anliegende Abzugsspannung von  $U_A = +10\text{ V}$  wird so zusammen mit der verzögernden Spannung der Gitter durchgeföhren, so dass die Potentialdifferenz zwischen den Gittern und dem Faradaybecher konstant bleibt. Der ankommende Elektronenstrom wird mit einem Picoampèremeter auf Faradaybecher-Potential gemessen und zur Weiterverarbeitung des Signals in LabView über einen Trennverstärker auf Massepotential bezogen [Mai 2009].

### 3.1.2 Spinpolarisierte Elektronenquelle

In der Quellenkammer werden spinpolarisierte Elektronen erzeugt. Ziel ist es, einen monoenergetischen, kollimierten Elektronenstrahl auf die Probe zu richten. Dessen Quantisierungsachse der Spinpolarisation soll parallel zur in der Oberfläche liegenden Magnetisierungsrichtung der Probe, also transversal zur Bewegungsrichtung der Elektronen sein und in der Streuebene liegen (s. Abb. 3.1).

Die Erzeugung der Elektronen erfolgt nach dem Prinzip der elektronischen Anregung aus einem Galliumarsenid Halbleiter mit negativer Elektronenaffinität (NEA) nach Pierce und Meier [Pierce und Meier 1976]. Die Anregung erfolgt über senkrecht einfallendes, zirkular polarisiertes ( $\sigma^+$ ,  $\sigma^-$ ) Licht der Wellenlänge 830 nm aus dem Spin-Bahn aufgespaltenen Valenzband ins Leitungsbandminimum. Dies entspricht einem senkrechten Übergang am  $\Gamma$ -Punkt. Die spinselektive Anregung in dem nicht magnetischen Material folgt aus den Auswahlregeln für zirkular polarisiertes Licht zusammen mit den gegebenen Übergangswahrscheinlichkeiten. Die zu erwartende theoretische Spinpolarisation liegt bei 50%. Durch Depolarisationseffekte im GaAs-Kristall ergibt sich eine Polarisation des erzeugten Elektronenstrahls von  $P = 33\%$  [Donath et al. 1990]. Die NEA wird durch die Absorption von Cäsium und Sauerstoff in mehreren Präparationszyklen erreicht, wobei das Leitungsbandminimum unter die Vakuumenergie schiebt. Das bedeutet, dass die Austrittsarbeit verringert wird. Die ins Leitungsband angeregten Elektronen können durch eine Abzugsblende in senkrechter Richtung vom GaAs weg in den Kugelkondensator beschleunigt werden. Die Elektronen sind, vorgegeben durch den Spin des anregenden Laserlichts, zunächst longitudinal polarisiert. Durch die elektrostatische Ablenkung der Elektronen im Kugelkondensator um  $90^\circ$ , die die Richtung des Elektronenspins erhält, wird aus dem longitudinal polarisierten ein transversal polarisierter Elektronenstrahl mit einer Komponente parallel zur Magnetisierung  $\vec{M}$  in der Probenoberfläche wie in Abb. 3.1. Der Emissionsfleck auf dem GaAs, dessen Größe durch den Fokus der Laserdiode vorgegeben ist, wird in eine Ebene hinter dem Kugelkondensator abgebildet.

Die an den Kugelkondensator anschließende Transferoptik besteht aus einem System elektrostatischer Linsen, dessen Spannungen so gewählt sind, dass aus der Abbildung des Emissionsflecks ein möglichst paralleler monoenergetischer Elektronenstrahl erzeugt wird [Kolac et al. 1988]. Die Austrittsblende liegt stets auf Erdpotential, damit

sich die Elektronen in der Analysenkammer feldfrei bewegen. Die Energie der Elektronen ist damit vorgegeben durch das Potential  $U_C$  des GaAs.

Es lässt sich nur dann ein zu 100% paralleler Elektronenstrahl erzeugen, wenn die Elektronen die Linsenelemente mittig passieren. Deshalb stehen insgesamt acht Paare von Ablenkplatten zur Justierung des Elektronenstrahls zur Verfügung. Die endliche Größe des Emissionsflecks führt allerdings dazu, dass Parallelität nicht vollständig erreicht werden kann. Es tritt eine endliche Impulsverteilung und sogar eine energieabhängige Verschiebung des Elektronenstrahls auf. Diese Effekte können durch die Justage des Elektronenstrahls minimiert werden. Für weitere Details sei auf die Arbeit von [Kolac et al. 1988] verwiesen.

## 3.2 Messprozess

### 3.2.1 Spinabhängige Beugung sehr niederenergetischer Elektronen

Mit dem beschriebenen VLEED-Messaufbau soll anhand der Reflexion niederenergetischer Elektronen an einer einkristallinen metallischen Oberfläche deren Oberflächenbarriere bestimmt werden. Im Experiment treffen Elektronen einer kinetischen Energie von  $E_{\text{kin}} = 0 - 30 \text{ eV}$  unter definierten Einfallswinkeln  $\Theta$  und Azimutwinkeln  $\Phi$  auf die Probe. Ein Teil davon wird transmittiert und fließt bei geerdeter Probe als Probenstrom ab. Außerdem finden sowohl inelastische Streuprozesse, in denen die beteiligten Elektronen z. B. durch Elektronen-Loch-Paar- oder Phononenanregung einen Energieverlust erfahren, als auch der in Abschnitt 2.4 beschriebene elastische VLEED-Streuprozess statt. Die gesamte reflektierte Intensität beträgt etwa ein Zehntel der einfallenden.

Die zu messende Größe ist der durch den VLEED-Streuprozess modulierte elastisch reflektierte Strom in Abhängigkeit von der kinetischen Energie  $E_{\text{kin}}$  der einfallenden Elektronen in sogenannten  $I(V)$ -Kurven. Dafür wird der Gegenfeldanalysator jeweils im spekularen Strahl platziert und das Gegenfeld simultan mit der kinetischen Energie der Elektronen durchgeföhren. Die gemessene Intensität ist dann zwei bis vier Größenordnungen kleiner als die einfallende, je nach  $E_{\text{kin}}$ ,  $\Theta$  und  $\Phi$ . Bei einem üblichen Emissionsstrom von  $I_{\text{Em}} = 0,5 \mu\text{A}$  aus der GaAs-Photokathode während einer Messung liegt das Messsignal in der Größenordnung von  $0,01 - 1 \text{ nA}$ . Die Gegenspannung entspricht dabei betraglich nicht der kinetischen Energie der Elektronen, sondern ist etwas kleiner. Dieses Energiefenster der Gegenspannung wird mit  $\Delta E_{\text{gg}} = 1,66 \text{ eV}$  so gewählt, dass die zu messende Feinstruktur mit optimalem Verhältnis der Intensität zum Untergrund abgebildet wird.

Zur Charakterisierung der magnetischen Eigenschaften der durch die Oberflächenbarriere bestimmten Feinstruktur an ferromagnetischen Oberflächen werden spinpolarisierte Elektronen auf die Probe gelenkt, während der Nachweis im Analysator nicht spinaufgelöst erfolgt. Dort werden daher zwei Ströme gemessen, je einer pro Spinorientierung des Quellenstroms relativ zur Quantisierungsachse. Prinzipi-

ell wäre zur Durchführung des VLEED-Experiments auch eine Kombination aus unpolarisierter Elektronenquelle und Spinpolarisationsdetektor möglich, z. B. ein SPLEED-Detektor [Yu et al. 2007] oder auch ein VLEED-Detektor [Winkelmann et al. 2008, Okuda et al. 2008]. Deren grundlegendes Prinzip ist jeweils die spinabhängige Beugung von Elektronen. Für Experimente mit spinpolarisierter Quelle oder mit spinaufgelöstem Nachweis ist die Effizienz definiert als

$$\epsilon = \frac{I}{I_0} \cdot S^2 \quad (3.1)$$

[Donath 1994]. Dabei ist  $S$  die Sherman-Funktion oder Spintrennungs-Funktion im Fall des Spindetektors. Die beträgt z. B. 27% für den von [Yu et al. 2007] untersuchten SPLEED-Detektor.  $I_0$  ist der auf den Detektor gelenkte und  $I$  der nach der Streuung tatsächlich gemessene Strom, so dass  $\frac{I}{I_0} < 1$ . Im hier durchgeführten Experiment gilt für die Streuung an der Probenoberfläche  $\frac{I}{I_0} \approx 10^{-2} - 10^{-4}$ , s.o.<sup>(1)</sup>.

Bei Verwendung der spinpolarisierten Quelle geht bei der Effizienz  $\epsilon$  anstelle der Größe  $S$  die Polarisation  $P$  der Quelle ein. Die Polarisation der hier verwendeten Quelle liegt mit  $P = 33\%$  in der gleichen Größenordnung wie die Sherman-Funktion von SPLEED-Detektoren. Für die Ströme  $I$  und  $I_0$  gilt dagegen  $\frac{I}{I_0} = 1/2$ . Dieser Faktor 1/2 folgt aus der Notwendigkeit, immer zwei Messungen, je eine pro Spinorientierung, durchzuführen. Das Experiment mit spinpolarisierter Quelle hat daher insgesamt die größere Effizienz.

Ist die Polarisation  $P$  der Quelle bekannt, ist  $P < 100\%$  keine grundsätzliche Einschränkung der Effizienz. Vielmehr kann das Messsignal auf eine 100%ige Polarisation des einfallenden Elektronenstrahls normiert werden. Dabei kann auch berücksichtigt werden, dass bei entsprechender Wahl von  $\Theta$  und  $\Phi$  die Polarisation  $\vec{P}$  des Elektronenstrahls nicht mit der Richtung der Magnetisierung  $\vec{M}$  der Probe übereinstimmt. Es gilt

$$P_{\text{eff}} = \vec{P} \cdot \frac{\vec{M}}{|\vec{M}|} = P \cdot \cos\Theta \cdot \cos\Phi. \quad (3.2)$$

Die Asymmetriefunktion der im VLEED-Experiment als Funktion der kinetischen Energie der Elektronen und der Winkel  $\Theta$  und  $\Phi$  gemessenen Spinströme  $(I_{\uparrow, \text{Msg}}, I_{\downarrow, \text{Msg}})$ <sup>(2)</sup> erhält man folgendermaßen:

<sup>(1)</sup>Für einen Spinpolarisationsdetektor kann die Effizienz optimiert werden, da sie sowohl energie- als auch winkelabhängig ist [Yu et al. 2007]. Für den VLEED-Detektor kann das anhand des in dieser Arbeit vorgestellten Messaufbaus aus einer Elektronenquelle mit bekannter Polarisation an einer ferromagnetischen Probe erfolgen.

<sup>(2)</sup>Die Bezeichnung  $\uparrow$  bzw.  $\downarrow$  für die Polarisation der Elektronen folgt aus deren Anregung mit  $\sigma^+$  bzw.  $\sigma^-$  (zirkular-) polarisiertem Licht. Bei einer ferromagnetischen Probe wird  $I_{\uparrow}$  bzw.  $I_{\downarrow}$  entsprechend der Orientierung der Polarisation der Elektronen relativ zur Magnetisierungsrichtung der Probe als Majoritäts- bzw. Minoritätselektronenstrom definiert.

$$A = \frac{I_{\uparrow, \text{Msg}} - I_{\downarrow, \text{Msg}}}{I_{\uparrow, \text{Msg}} + I_{\downarrow, \text{Msg}}} \cdot \frac{1}{P \cdot \cos\Theta \cdot \cos\Phi}. \quad (3.3)$$

Die normierte Intensität  $I_{\uparrow(\downarrow)}$  ergibt sich damit aus der Summe der gemessenen Spinströme und der Asymmetriefunktion  $A$  zu

$$I_{\uparrow(\downarrow)} = \frac{I_{\uparrow, \text{Msg}} + I_{\downarrow, \text{Msg}}}{2} \cdot (1 + (-)A). \quad (3.4)$$

Für die Auswertung der  $I(V)$ -Kurven als Funktion der Winkel  $\Theta$  und  $\Phi$  wird das Auflösungsvermögen der VLEED-Apparatur bezüglich der experimentellen Parameter  $E_{\text{kin}}$ ,  $\Theta$  und  $\Phi$  in Abschnitt 3.4.1 und 3.4.2 analysiert. Bedingt durch die endliche Auflösung der Quelle ergibt sich in Kombination mit dem VLEED-Streuprozess noch ein intrinsischer Auflösungseffekt, der im Folgenden eingeführt werden soll. Die bei der Entstehung der Feinstruktur relevante Größe ist der senkrechte Anteil der Elektronenenergie nach dem Beugungsprozess, der nach Glg. 2.14 gegeben ist durch

$$E_{\perp} = E - \frac{\hbar^2}{2 \cdot m_e} \cdot |k_{\parallel} + g|^2. \quad (3.5)$$

Demnach ergibt sich bei einer auflösungsbedingten Verteilung der Elektronenenergie  $\Delta E$  auch für  $E_{\perp}$  eine Energieverteilung  $\Delta E_{\perp}$ , die eine im Experiment auftretende energetische Verbreiterung der gemessenen Feinstruktur bestimmt. Der Term  $|k_{\parallel} + g|$  ist neben der Energie der einfallenden Elektronen auch eine Funktion der Winkel  $\Theta$  und  $\Phi$ .  $\Delta E_{\perp}$  hängt daher neben  $\Delta E$  auch von den Verteilungen  $\Delta\Theta$  und  $\Delta\Phi$  der Elektronenquelle ab. [Gaubert et al. 1984] führen deshalb die sogenannte Äquivalente Auflösung ein. Diese berücksichtigt neben den Auflösungen der experimentellen Parameter (s. Abschnitt. 3.4) auch, wie schnell sich  $E_{\perp}$  mit diesen ändert. Die drei sogenannten Emergenzgeschwindigkeiten sind definiert als

$$\alpha_e = \frac{\partial E_{\perp}}{\partial E}, \quad \alpha_{\Theta} = \frac{\partial E_{\perp}}{\partial \Theta}, \quad \alpha_{\Phi} = \frac{\partial E_{\perp}}{\partial \Phi}. \quad (3.6)$$

Unter Annahme einer gaußförmigen Energie- und Winkelverteilung jeweils mit der Halbwertsbreite  $\Delta E$ ,  $\Delta\Theta$  bzw.  $\Delta\Phi$  zeigen [Gaubert et al. 1984], dass auch  $E_{\perp}$  gaußförmig verteilt ist mit einer Halbwertsbreite von

$$\Delta E_{\perp} = \left\{ (\alpha_e \cdot \Delta E)^2 + (\alpha_{\Theta} \cdot \Delta\Theta)^2 + (\alpha_{\Phi} \cdot \Delta\Phi)^2 \right\}^{1/2}. \quad (3.7)$$

Die Äquivalente Auflösung bestimmen sie dann zu

$$\Delta E_T = \frac{\Delta E_{\perp}}{\alpha_e} \quad (3.8)$$

an der Schwelle zum Austritt des am VLEED-Streuprozess beteiligten gebeugten Strahls  $E_T$ . Hitchen und Thurgate berechnen nach [Gaubert et al. 1984] die Emergenzgeschwindigkeiten zu<sup>(3)</sup>

$$\alpha_e = \frac{\partial E_{\perp}}{\partial E} = 1 - \sin^2\Theta - \frac{h}{2m_e a\sqrt{E}} \{h \cos\Phi + k \sin\Phi\} \quad (3.9)$$

---

<sup>(3)</sup>In 3.11 ist ein Vorzeichenfehler in der Ableitung korrigiert.

$$\alpha_{\Theta} = \frac{\partial E_{\perp}}{\partial \Theta} = -2E \cos\Theta \sin\Theta - \frac{h}{2m_e} 2\sqrt{E} \cos\Theta \{h \cos\Phi + k \sin\Phi\} \quad (3.10)$$

$$\alpha_{\Phi} = \frac{\partial E_{\perp}}{\partial \Phi} = \frac{h}{2m_e} \frac{2\sqrt{E}}{a} \sin\Theta \{h \cos\Phi + k \sin\Phi\} \quad (3.11)$$

[Hitchen und Thurgate 1988a]. Dabei sind  $(h, k)$  die Millerschen Indizes der jeweils beteiligten Beugungsordnung im zweidimensionalen Gitter der Oberfläche und  $a$  ist die Gitterkonstante der Oberfläche eines kubischen Gitters. Die Äquivalente Auflösung  $\Delta E_T$  muss daher für jede Feinstruktur als Funktion des Beugungstrahls, aus dem sie hervorgeht, separat berechnet werden. Für jede einzelne dieser Feinstrukturen hängt  $\Delta E_T$  dann außerdem noch von den Winkeln  $\Theta$  und  $\Phi$  sowie der zugehörigen Emergenzenergie  $E = E_T(\Theta, \Phi)$  ab.

In Abschnitt 3.4 wird zunächst die Auflösung der experimentellen Parameter grundsätzlich eingeführt und dann experimentell bestimmt. Damit wird anschließend die Äquivalente Auflösung beispielhaft für ausgewählte Winkel angegeben.

### 3.2.2 Inverse Photoemission zur Charakterisierung der Probe

Mit dem ebenfalls in der Messebene angebrachten Geiger-Müller-Zählrohr und der GaAs-Elektronenquelle wird spinaufgelöste Inverse Photoemission (IPE) betrieben. Diese bietet die Möglichkeit, die unbesetzte elektronische Struktur einer Probe oberhalb der Fermienergie zu bestimmen. Dafür werden Elektronen mit definierter kinetischer Energie im Bereich von  $E_{\text{kin}} = 0 - 30 \text{ eV}$  und definiertem Impuls  $\vec{k}$  auf die Probe gelenkt. Bei Übergängen in unbesetzte Zustände der Probe wird Energie in Form eines kontinuierlichen Spektrums an Bremsstrahlung emittiert. Das Zählrohr detektiert im hier betriebenen Isochromatenmodus nur Photonen einer festen Energie, die durch dessen optischen Bandpass vorgegeben ist. Im IPE-Spektrum wird schließlich die Photonenintensität als Funktion der kinetischen Energie der Elektronen in Einfallswinkelserien gemessen. Intensitätsmaxima können Übergängen der Elektronen in unbesetzte Zustände der Probe zugeordnet werden, die dann üblicherweise in  $E(k_{\parallel})$ -Diagrammen dargestellt werden. In der spinaufgelösten IPE besitzt der Spin der einfallenden Elektronen eine Komponente, die entweder parallel oder antiparallel zu bestimmten Richtungen in der Probe, z. B. zur Magnetisierungsrichtung einer ferromagnetischen Probe, orientiert ist. In dem Fall erhält man Zugriff auf unbesetzte Majoritäts- bzw. Minoritätszustände der Probe. Für eine detailliertere Beschreibung der Inversen Photoemission sei auf [Donath 1994] verwiesen.

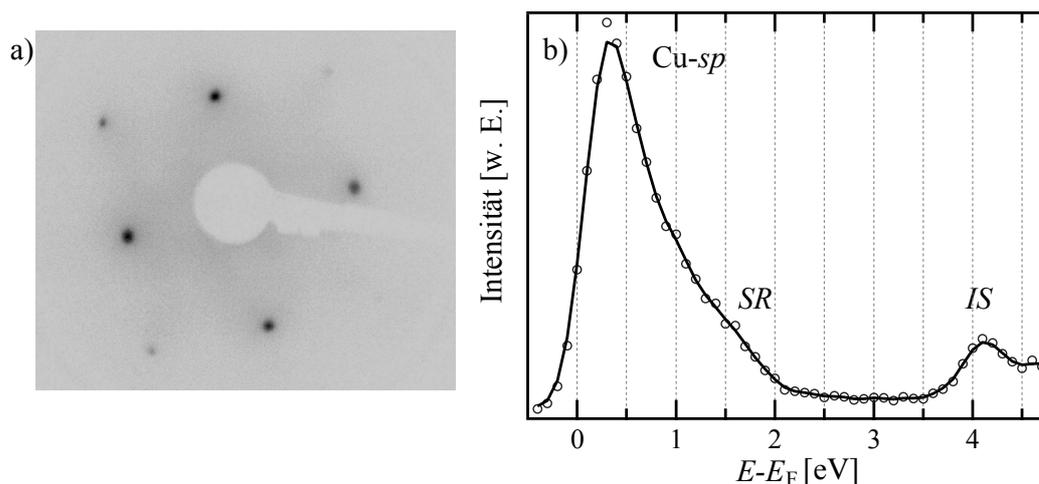
In dieser Arbeit werden Inverse Photoemissionsmessungen als Maß für die Qualität der Probenoberfläche herangezogen (s. Abschnitt 3.3). Zur Charakterisierung des experimentellen Aufbaus wird ein weiterer Bestandteil des IPE-Spektrums, die sogenannte Fermikante, genutzt. Bei Variation der kinetischen Energie der Elektronen setzt das Spektrum erst ein, wenn Übergänge in unbesetzte Zustände direkt an der Fermienergie stattfinden und gleichzeitig die Übergangsenergie der Detektionsenergie des Zählrohrs entspricht. Die energetische Breite dieser Fermikante ist bestimmt durch die Verbreiterung der Fermifunktion bei Raumtemperatur und die Energie-

auflösung des IPE-Systems. Diese soll in Kapitel 3.4.1 zum Vergleich für die im VLEED-System ermittelten Werte herangezogen werden.

### 3.3 Präparation und Charakterisierung der Probenoberfläche

In dieser Arbeit werden VLEED-Messungen sowohl an einer reinen Cu(001)- als auch an einer Co/Cu(001)-Oberfläche vorgestellt. Das Cu-Probensystem eignet sich besonders dazu, die Funktionsweise des VLEED-Messsystems anhand der in Kapitel 2 eingeführten Eigenschaften der Feinstruktur zu prüfen, da in der Literatur bereits Nachweise existieren, dass diese erfüllt werden (s. Abschnitt 1.2).

Die Cu-Oberfläche wird in einem Standard Sputter-Heiz-Verfahren in der Probenkammer gereinigt. Der Beschuss mit  $\text{Ar}^+$ -Ionen ( $E = 1 \text{ keV}$ ) erfolgt bis mittels AES ein reines Cu-Signal nachgewiesen wird. Daraufhin wird die Probe bei  $T = 850 \text{ K}$  geheizt bis zunächst anhand eines LEED-Bildes mit scharfem Beugungsmuster wie in Abb. 3.4 a) eine glatte, kristallographisch geordnete Probenoberfläche sichergestellt werden kann.



**Abbildung 3.4:** a) LEED-Bild der fcc-Oberfläche der Cu(001)-Probe bei einer Orientierung von  $\Phi = -12,5^\circ$  (vergleiche Abb. 3.13) und einer kinetischen Energie der einfallenden Elektronen von  $E = 128,7 \text{ eV}$ . b) IPE-Messung an Cu(001) unter senkrechtem Elektroneneinfall.

Hauptsächlich gibt das IPE-Spektrum in Abb. 3.4 b) Aufschluss über die Qualität der Cu-Oberfläche nach der Präparation. Dort treten drei schon bekannte Strukturen auf [Grass et al. 1993]. Dominiert wird das Spektrum von einem Übergang in das volumenartige Cu-sp-Band bei  $E = 0,35 \text{ eV}$ .

Die Qualität der Präparation wird anhand der beiden übrigen Strukturen bewertet. Die spektrale Intensität des bildpotentialinduzierten Oberflächenzustands (IS) bei  $E = 4,1 \text{ eV}$  zeugt von einer wohlpräparierten, glatten Oberfläche. Gleiches bedeutet

das Auftreten der kristallinduzierten Oberflächenresonanz ( $SR$ ) als Schulter an der energetisch höher gelegenen Seite des  $Cu-sp$ -Übergangs.

Neben VLEED-Messungen erfolgt an der so charakterisierten  $Cu(001)$ -Oberfläche die Präparation eines Kobalt-(Co-)Films<sup>(4)</sup> bei Raumtemperatur. Anschließend wird der Co-Film ebenfalls bei Raumtemperatur entlang der  $[110]$ -Richtung, der leichten Magnetisierungsrichtung in der  $Co(001)$ -Oberfläche [Schneider et al. 1990], magnetisiert. Das entspricht der  $\bar{\Gamma}\bar{X}$ -Richtung bzw. der  $[10]$ -Richtung im zweidimensionalen Gitter der Oberfläche unter  $\Phi = 0^\circ$  (vergleiche Abb. 3.13).

Ein Kriterium, anhand dessen überprüft wird, ob die Oberfläche remanent in Sättigung magnetisiert ist, bieten die  $Co-d$ -Zustände. In der Co-Bandstruktur sind keine unbesetzten Majoritäts- $d$ - sondern nur unbesetzte Minoritäts- $d$ -Zustände mit hoher Zustandsdichte nahe  $E_F$  zu finden [Yu et al. 2003]. Indirekte<sup>(5)</sup> Übergänge in unbesetzte  $Co-d$ -Zustände nahe  $E_F$  erfolgen also nur im Minoritätskanal. Im IPE-Spektrum in Abb. 3.5 a) sind beinahe ausschließlich  $Co-d$ -Übergänge zu beobachten, die eine nahezu 100%ige Spinasymmetrie in den Spinkanälen aufweisen. D. h. der bei der Präparation gewählte Magnetisierungspuls gewährleistet eine vollständige Magnetisierung des Co-Films.

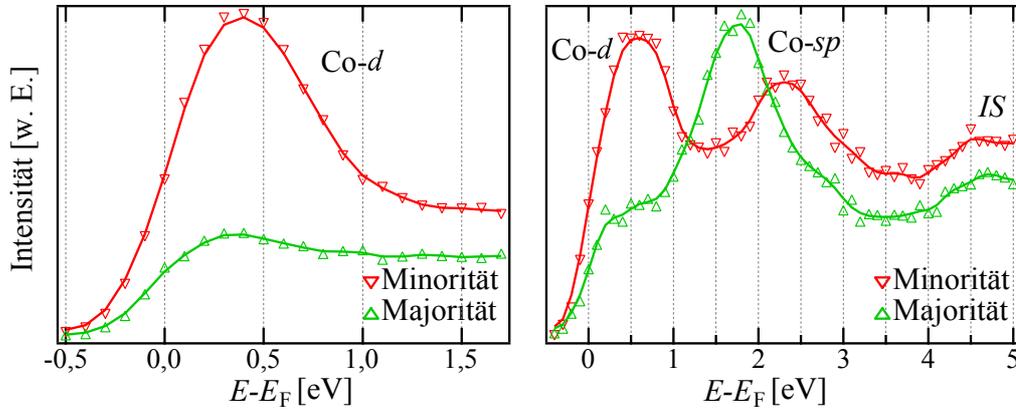
Anhand eines IPE-Spektrums aufgenommen unter  $\Theta = 0^\circ$  soll noch die Schichtdicke des Co-Films bei den gewählten Präparationsparametern abgeschätzt werden, da die VLEED-Messungen an volumenähnlichen Co-Filmen durchgeführt werden sollen. Für defektfreies lagenweises Wachstum - wie beim  $Co/Cu(001)$  gegeben - ist aus der Literatur bekannt, dass sich für Schichtdicken  $< 12$  Monolagen sogenannte Quantentrogzustände bzw. Quantentrogresonanzen ( $QWS$  bzw.  $QWR$ ) zwischen den Vakuum-Film und Film-Substrat Grenzflächen ausbilden [Yu et al. 2003]. Deren Einfluss auf die elastisch reflektierte Streuintensität wurde von [Scheunemann et al. 1997] gezeigt. Für größere Schichtdicken geht die Intensität der  $QWS$  zurück, während sich eine volumenartige dreidimensionale Bandstruktur ausbildet. Die im IPE-Spektrum in Abb. 3.5 b) in beiden Spinkanälen auftretende Struktur bei etwa  $E = 2$  eV kann einem  $Co-sp$ -Übergang zugeordnet werden [Yu et al. 2003]. Auch dessen Spinaufspaltung von  $\Delta E = 0,4$  eV ist in guter Übereinstimmung mit den Daten von [Yu et al. 2003]. Es ist daher davon auszugehen, dass bei den gewählten Präparationsparametern ein volumenartiger Co-Film von  $\geq 12$  ML mit ausgebildeter dreidimensionaler Bandstruktur vorliegt. Ein weiteres Indiz für eine ausreichende Schichtdicke des Co-Films ist, dass für  $\Theta = 0^\circ$  im Majoritätskanal der  $Co-d$ -Übergänge nahe  $E_F$  weiterhin keine Intensität zu beobachten ist, obwohl unter diesem Elektroneneinfallswinkel dort auch der spinunabhängige  $Cu-sp$ -Übergang auftritt. Das bedeutet, die Elektronen erreichen das Kupfersubstrat nicht mehr, da

---

<sup>(4)</sup>Bei ferromagnetischen Volumenkristallen können aufgrund der magnetokristallinen Anisotropie auch in Remanenz komplizierte Domänenstrukturen auftreten, während beim Wachstum dünner Schichten vieler ferromagnetischer Materialien Einzeldomänenstrukturen beobachtet werden [Donath 1994]. Diese verursachen außerdem deutlich kleinere magnetische Streufelder, die ansonsten die Bahn der niederenergetischen Elektronen im Experiment stören.

<sup>(5)</sup>Direkte Übergänge in unbesetzte  $Co-d$ -Zustände an der  $(001)$ -Oberfläche sind aufgrund von Energieerhaltung und Auswahlregeln unterdrückt.

ihre mittlere freie Weglänge  $\lambda_m$  im Kobaltfilm geringer ist als dessen Schichtdicke. Für die gegebenen kinetischen Energien der Elektronen von etwa 5 – 10 eV ist  $\lambda_m \leq 20 \text{ \AA}$  [Seah und Dench 1979].



**Abbildung 3.5:** Spinaufgelöstes IPE-Spektrum an Co/Cu(001) aufgenommen bei a) Elektreneinfall unter  $\Theta = 45^\circ$  entlang der  $\bar{\Gamma}\bar{X}$ -Richtung und b)  $\Theta = 0^\circ$ .

Der bildpotentialinduzierte Oberflächenzustand (*IS*) bei  $E = 4,6 \text{ eV}$  schließlich tritt bei der Präparation des „dicken“ Co-Films mit geringerer Intensität auf als bei der reinen Cu(001)-Oberfläche. Dies beobachten auch [Renken 2007] und [Yu et al. 2003] für Schichtdicken  $\geq 10 \text{ ML}$  in IPE-Messungen an Co/Cu(001). Es muss sich hierbei aber nicht um einen Hinweis auf eine schlecht präparierte Oberfläche handeln. Vielmehr ist bekannt, dass der Bildpotentialzustand an Cu(001) mit  $\tau = 40 \text{ fs}$  [Höfer et al. 1997] eine etwa doppelt so große Lebensdauer im Vergleich zu Co/Cu(001) mit  $\tau_1^\uparrow = 19 \text{ fs}$  bzw.  $\tau_1^\downarrow = 16 \text{ fs}$  [Schmidt 2007] besitzt. Ein weiterer Aspekt, der bei der Bewertung vom Auftreten des Bildpotentialzustands an Co/Cu(001) berücksichtigt werden muss, ist daher, dass die kürzere Lebensdauer zu einer energetischen Verbreiterung des Bildpotentialzustands an Co/Cu(001) führt. Auch daraus folgt eine geringere Intensität des Zustands in der IPE-Messung im Vergleich zum Bildpotentialzustand an Cu(001).

### 3.4 Charakterisierung des VLEED-Experiments

Die experimentellen Parameter des VLEED-Experiments sind keine scharf definierten Größen. Sie sind vielmehr durch gaußförmige Wahrscheinlichkeitsverteilungen gegeben, mit einer Halbwertsbreite, die als Auflösung des jeweiligen Parameters bezeichnet wird. Als Funktion dieser Verteilungen ergibt sich die ebenfalls gaußförmige Apparatfunktion des Experiments, aus der sich die Verbreiterung von Strukturen in gemessenen Spektren gegenüber einer Messung mit scharf definierten Parametern ergibt. Der VLEED-Streuprozess führt dazu, dass die Halbwertsbreite der Apparatfunktion nicht konstant, sondern eine Funktion der experimentellen Parameter ist,

so dass die Äquivalente Auflösung  $\Delta E_T$  eingeführt wird (s. Abschnitt 3.2.1). Die Auflösung der experimentellen Parameter muss daher bekannt sein, um die Äquivalente Auflösung zu berechnen. Erst mit dieser kann dann aus Messungen z. B. die Emergenzenergie eines Beugungsstrahls bestimmt werden [Hitchen und Thurgate 1988b]. Außerdem wird sie bei der Berechnung von VLEED-Spektren aus Gründen der Vergleichbarkeit verwendet [Gaubert et al. 1984]. Zusätzlich müssen natürlich auch die absoluten Werte der experimentellen Parameter bekannt sein. Im folgenden Kapitel werden daher Messungen zur Bestimmung der Auflösung der experimentellen Parameter und auch der Transmission der Elektronenquelle vorgestellt und mit deren Auswertung erfolgt eine Charakterisierung des Messaufbaus.

### 3.4.1 Kinetische Energie der Elektronen und Energieauflösung des Experiments

#### Das VLEED-Messsystem

Als Energieauflösung des VLEED-Messsystems  $\Delta E_{\text{VLD}}$  wird im Folgenden die Halbwertsbreite der gaußförmigen Apparatefunktion des Systems angegeben, die durch die Energieverteilungen des Gegenfeldanalysators  $\Delta E_{\text{RFA}}$  und der Elektronenquelle  $\Delta E_Q$  bestimmt wird, zunächst noch ohne Berücksichtigung der Äquivalenten Auflösung. Es gilt

$$\Delta E_{\text{VLD}}^2 = \Delta E_{\text{RFA}}^2 + \Delta E_Q^2. \quad (3.12)$$

Während die Energieauflösung des Analysators  $\Delta E_{\text{RFA}}$  proportional zur kinetischen Energie der Elektronen  $E_{\text{kin}}$  ist [Yates Jr. 1998], ist die der Quelle  $\Delta E_Q$  näherungsweise konstant [Donath 2010].

Trägt man  $\Delta E_{\text{VLD}}$  als Funktion von  $E_{\text{kin}}$  auf, kann für entsprechend kleine Energien daher der Anteil des Analysators vernachlässigt werden, so dass dann bei Extrapolation zu  $E_{\text{kin}} \rightarrow 0$  der y-Achsenabschnitt der Energieauflösung der Quelle  $\Delta E_Q$  entspricht<sup>(6)</sup>. Bei größeren kinetischen Energien, für die die Energieauflösung des Analysators  $\Delta E_{\text{RFA}}$  die Gesamtauflösung  $\Delta E_{\text{VLD}}$  dominiert, kann die relative Auflösung des Analysators  $\Delta E_{\text{RFA}}/E_{\text{kin}}$  [Yates Jr. 1998] als Steigung der Geraden  $\Delta E_{\text{VLD}}/E_{\text{kin}}$  angegeben werden.

Zur Bestimmung der Energieauflösung  $\Delta E_{\text{VLD}}$  werden sogenannte Gegenfeldmessungen durchgeführt. Dabei wird der Analysator direkt vor der Transferoptik der Quelle positioniert, so dass Elektronen konstanter Energie  $eU_C$  möglichst senkrecht auf dessen Gitter treffen (s. Abb. 3.6). An den verzögernden Gittern wird eine Gegenspannung  $U_{gg}$  durchgeföhrt, so dass erst bei einer bestimmten Einsatzspannung  $U_0$  ein Strom im Faradaybecher gemessen wird. Bei unendlich guter Auflösung von Analysator und Quelle wäre diese Einsatzschwelle stufenförmig. Unter realen experimentellen Bedingungen mit endlicher Auflösung ist sie dagegen verbreitert. Durch

<sup>(6)</sup>Der Zusammenhang zwischen  $\Delta E$  und der Standardabweichung  $\sigma$  ist gegeben durch  $\Delta E = 2\sqrt{2\ln 2}\sigma$ .

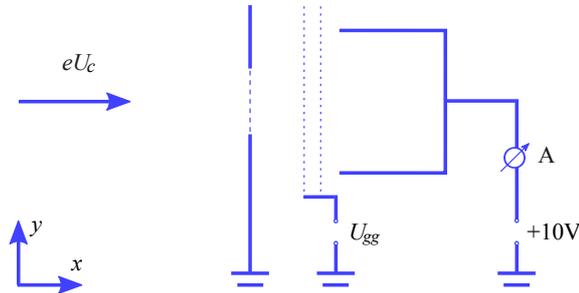
numerisches Ableiten dieser Schwelle und anfitzen der gaußförmigen Apparatefunktion ergibt sich  $\Delta E_{\text{VLD}}$  als Halbwertsbreite (FWHM). Deren Maximum entspricht der Einsatzspannung  $U_0$ . Dabei unterscheidet sich die Energie  $eU_0$ , bei der das Spektrum einsetzt, von der Elektronenenergie  $eU_C$  um die sogenannte Kontaktpotentialdifferenz, die der Differenz der Austrittsarbeiten von Quelle  $\Phi_{A,\text{GaAs}}$  und Analysator  $\Phi_{A,\text{RFA}}$  entspricht:

$$E_{\text{CPD}} = eU_C - eU_0 = \Phi_{A,\text{RFA}} - \Phi_{A,\text{GaAs}}. \quad (3.13)$$

$U_0$  ist die kinetische Energie der im Analysator gemessenen Elektronen  $E_{\text{kin},e^-}$  im VLEED-Experiment:

$$E_{\text{kin},e^-} = eU_C - E_{\text{CPD}}. \quad (3.14)$$

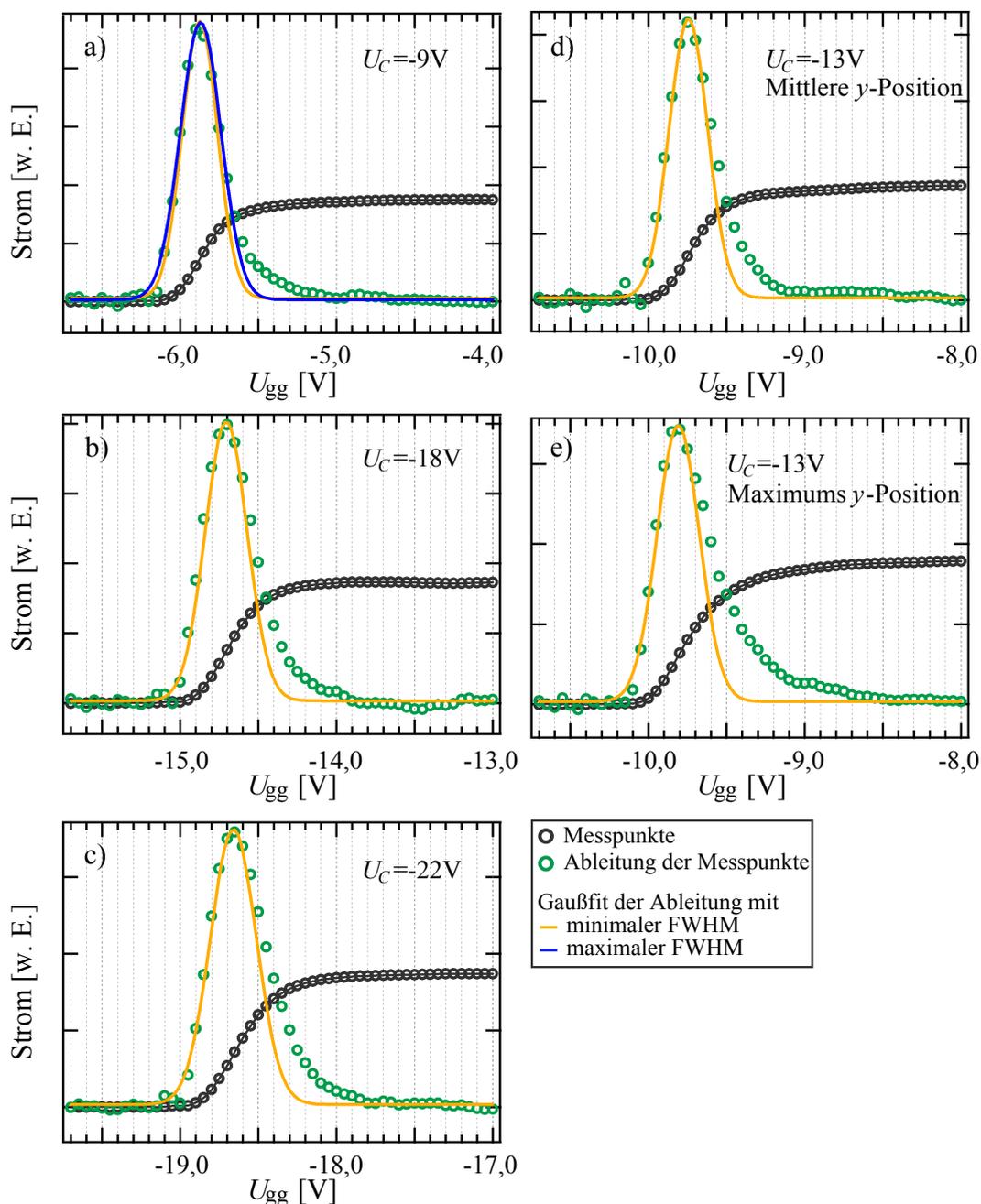
Die Auflösung des Analysators wird im Allgemeinen beschränkt durch Feldinhomogenitäten der verzögernden Gitter [Liebl 2006]. Zusätzlich können im Zusammenhang mit der Ausrichtung der Maschen der beiden verzögernden Gitter zueinander unterschiedlich starke Linseneffekte auftreten, die dazu führen, dass die Einsatzschwelle nicht vollständig symmetrisch ist [Hammer 2010]. Unter diesen Umständen würde auch die Apparatefunktion keine symmetrische Gaußfunktion darstellen. Beim Test verschiedener Gegenfeldanalysatoren mit möglichst deckungsgleich ausgerichteten Gittern wurden sogar Überschwinger an der Einsatzschwelle beobachtet [Burgbacher 2010].



**Abbildung 3.6:** Schematische Darstellung der Messanordnung zur Aufnahme von Gegenfeldmessungen bei verschiedenen Elektronenenergien  $eU_C$  zur Bestimmung der Energieauflösung.

Während einer VLEED-Messung, d. h. bei Variation der Elektronenenergie  $eU_C$ , kann ein weiterer Effekt auftreten, der die Einsatzschwelle beeinflusst. Aus Strahlprofilmessungen ist bekannt, dass sich der Elektronenstrahl in der Größenordnung von 1mm verschiebt, wenn die Elektronenenergie durchgeföhren wird. Damit verschiebt sich zum einen die Position, in der der Strahl auf den Analysator trifft, zum anderen ändert sich möglicherweise auch der Winkel, unter dem er auftrifft. Der Analysator ist aber durch die Anordnung der Gitter nur empfindlich auf die senkrechte Komponente der Elektronenenergie, die wiederum winkelabhängig ist. Die Auswirkung dieses experimentellen Effekts auf die Einsatzschwelle ist zu überprüfen.

In Abb. 3.7 sind Gegenfeldmessungen aufgenommen bei  $I_{\text{Em}} = 0,5 \mu\text{A}$  zu verschiedenen Elektronenenergien  $eU_C$  dargestellt. Abb. 3.7 a) zeigt beispielhaft für  $U_C = -9\text{V}$  das angewendete Verfahren zur Bestimmung von  $\Delta E_{\text{VLD}}$ .



**Abbildung 3.7:** Gegenfeldmessungen bei verschiedenen Beschleunigungsspannungen  $U_C$  der Elektronen zur Bestimmung der Energieauflösung  $\Delta E_{\text{VLD}}$  und der Kontaktpotentialdifferenz  $E_{\text{CPD}}$ : a)  $U_C = -9\text{V}$ , b)  $U_C = -18\text{V}$ , c)  $U_C = -22\text{V}$ , d) und e)  $U_C = -13\text{V}$  aufgenommen bei unterschiedlichen Analysatorpositionen (siehe Text). Der Emissionsstrom beträgt  $0,5 \mu\text{A}$ .

Dort ist zu sehen, dass es die rechte Flanke der numerischen Ableitung ist, die von der Form einer Gaußkurve abweicht. In welchem Teil der Flanke diese Abweichung beginnt ist abhängig von der Energie der Elektronen (s. Abb. 3.7 a) - c)). Um zunächst eine untere Grenze für die Energieauflösung  $\Delta E_{\text{VLD}}$  abzuschätzen, wird die linke Flanke maximal steil angefitet. Dieser Fit repräsentiert die Datenpunkte im oberen Drittel der rechten Flanke. Dann wird die linke Flanke maximal flach angefitet, so dass nun die oberen zwei Drittel der Datenpunkte der rechten Flanke repräsentiert werden. Damit lässt sich eine obere Grenze für  $\Delta E_{\text{VLD}}$  angeben. Als absoluter Wert wird der Mittelwert aus der oberen und unteren Grenze angegeben, die Grenzen stellen den Fehlerbereich dar. In Abb. 3.7 b) - e) ist aus Gründen der Übersichtlichkeit nur die schmalere Apparatefunktion abgebildet.

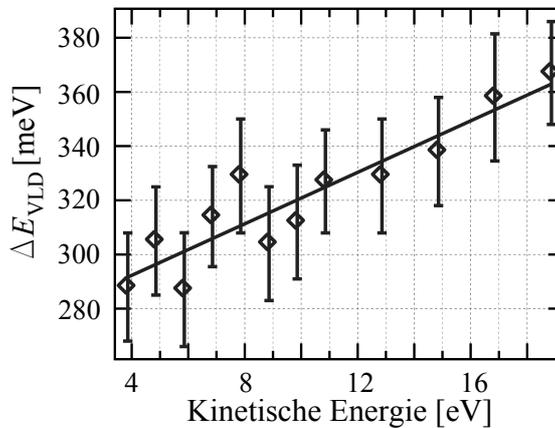
Die so erhaltenen Werte  $\Delta E_{\text{VLD}}$  werden in Abb. 3.8 als Funktion der kinetischen Energie der Elektronen aufgetragen und es wird eine lineare Ausgleichsgerade bestimmt. Durch Extrapolation zu  $E_{\text{kin}} \rightarrow 0$  ergibt sich

$$\Delta E_Q = (273 \pm 14) \text{ meV}.$$

Der Fehler wird aus zwei weiteren Geraden mit minimaler bzw. maximaler Steigung innerhalb der Fehlerbalken ermittelt.

Für die relative Auflösung des Detektors ergibt sich aus der Geradensteigung

$$\frac{\Delta E_{\text{RFA}}}{E_{\text{kin}}} = (0,83 \pm 0,28)\%.$$



**Abbildung 3.8:** Energieauflösung des VLEED-Messsystems  $\Delta E_{\text{VLD}}$  als Funktion der kinetischen Energie der Elektronen bestimmt mittels Gegenfeldmessungen. Der Emissionsstrom beträgt  $0,5 \mu\text{A}$ .

Beim Ablesen der Einsatzspannung  $U_0$  aus den Gegenfeldmessungen in Abb. 3.7 fällt auf, dass die Differenz  $E_{\text{CPD}} = eU_C - eU_0$ , die formal der Differenz der Austrittsarbeiten von Quelle und Analysator entspricht, nicht konstant ist. Der Einsatz  $U_0$  verschiebt sich über den gesamten Energiebereich von  $eU_C$  um bis zu  $0,2 \text{ eV}$ , so dass  $E_{\text{CPD,min}} = 3,14 \text{ eV}$  bei  $U_C = -9 \text{ V}$  und  $E_{\text{CPD,max}} = 3,34 \text{ eV}$  z. B. bei  $U_C = -22 \text{ V}$  beträgt.

In Abb. 3.7 d) und e) sind Gegenfeldmessungen für jeweils  $eU_C = 13 \text{ eV}$  gezeigt, die bei unterschiedlichen Analysatorpositionen aufgenommen wurden. e) wurde mittels Verschieben in  $y$ -Richtung (s. Abb. 3.6) in einer Position aufgenommen, in der der im Faradaybecher gemessene Strom maximal ist. Diese Position wandert wie der Elektronenstrahl und ist für alle Elektronenenergien  $eU_C$  unterschiedlich. Abb. 3.7 d) wurde, wie alle anderen Gegenfeldmessungen und auch die VLEED-Messungen, in einer gemittelten Position aufgenommen. Im Vergleich fällt auf, dass die Einsatzschwelle bei e) bei betragsmäßig größerem Gegenfeld liegt. Eine mögliche Erklärung ist, dass der Elektronenstrahl hier mit größerer senkrechter Energiekomponente auf den Analysator trifft, während er in d) „schief“ einfällt, so dass die senkrechte Energiekomponente kleiner ist und die Schwelle dementsprechend zu betragsmäßig kleineren Energien wandert.

Der ebenfalls auffallende leichte Unterschied der energetischen Breite der Schwelle kann durch Raumladungseffekte bei positionsabhängigen Strömen im Analysator, aber auch durch konstruktionsbedingte positionsabhängige Unterschiede der Gitterqualität hervorgerufen werden. Hier kann keine reproduzierbare Systematik ermittelt werden. Die Halbwertsbreiten, die jeweils für  $eU_C = 13 \text{ eV}$  in den zwei verschiedenen Positionen gemessen werden, stimmen aber innerhalb ihres Fehlers überein und werden deshalb nicht im Einzelnen berücksichtigt.

Die Unterschiede zwischen den Einsatzspannungen  $U_0$  von 0, 2 eV liegen dagegen eine Größenordnung über dem ermittelten Fehler. Zur Bestimmung der Kontaktpotentialdifferenz  $E_{\text{CPD}}$  wird Messung a) herangezogen, da bei dieser Elektronenenergie die Quelle justiert wird, so dass der Effekt der Strahlwanderung beim Einstellen der Energie als minimal angesehen werden kann und die Elektronen hier maximal senkrecht auf den Analysator treffen. Dementsprechend liegt der Einsatz hier bei maximalem Gegenfeld, während die Differenz  $eU_C - eU_0$  ein Minimum annimmt, das der Kontaktpotentialdifferenz entspricht. Es ergibt sich

$$E_{\text{CPD}} = (3,14 \pm 0,01) \text{ eV}.$$

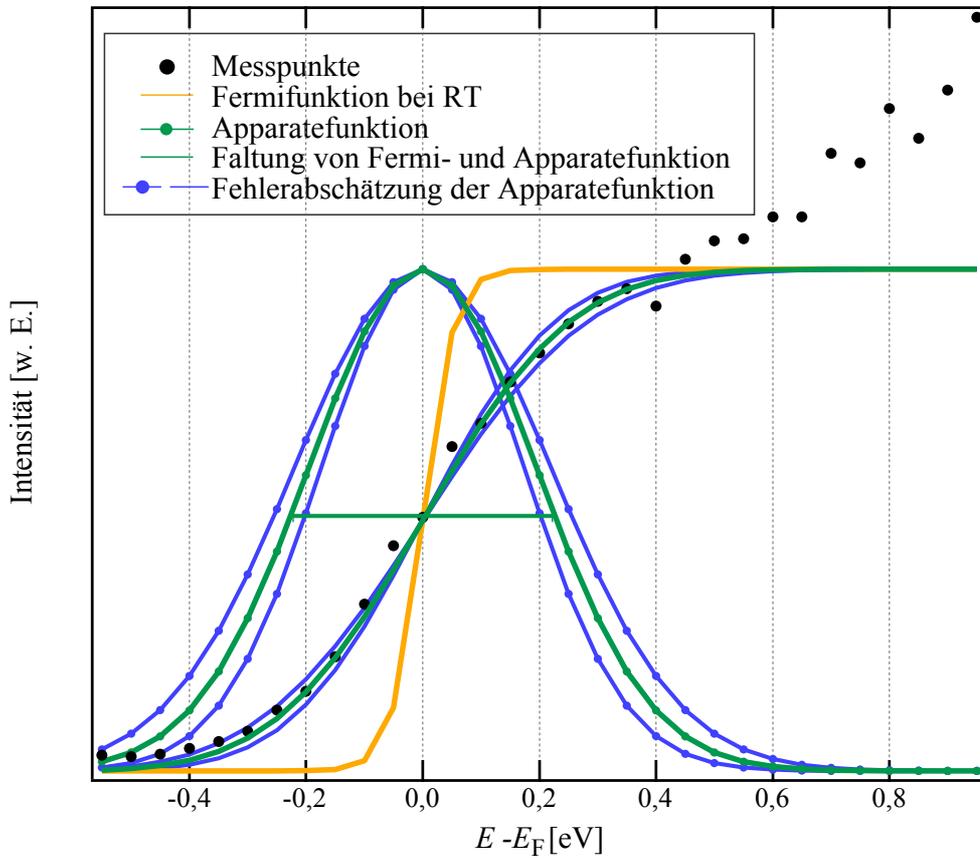
Die maximale Abweichung von  $+0,2 \text{ eV}$  von diesem Wert bei Variation der Elektronenenergie im hier diskutierten Bereich ist als systematischer Fehler  $u_S = 0,2 \text{ eV}$  in der Energieskala des VLEED-Messsystems zu berücksichtigen.

Bei der Auswertung von VLEED-Messungen bei ausgewählten kinetischen Energien der Elektronen von z. B. 10 eV bzw. 20 eV müssten zwei verschiedene Energieauflösungen  $\Delta E_{\text{VLD}}(E_{\text{kin}} = 10 \text{ eV}) = 315 \text{ meV}$  und  $\Delta E_{\text{VLD}}(E_{\text{kin}} = 20 \text{ eV}) = 370 \text{ meV}$  berücksichtigt werden. Das gilt bei einem Emissionsstrom von  $0,5 \mu\text{A}$ . Für die Auswertung von VLEED-Messungen, die mit einem höheren Emissionsstrom durchgeführt werden, wird überprüft, ob sich die Energieauflösung des VLEED-Messsystems signifikant ändert, wenn  $I_{\text{Em}}$  erhöht wird. Für  $I_{\text{Em}} = 1,0 \mu\text{A}$  ergibt sich nach Auswertung der Gegenfeldmessungen  $\Delta E_{\text{VLD}}(E_{\text{kin}} = 10 \text{ eV}) = 320 \text{ meV}$ , ähnlich wie für den geringeren Strom. Die Auflösung der Quelle wird zu  $\Delta E_Q = (286 \pm 38) \text{ meV}$  bestimmt. Die Gegenfeldmessungen mit  $I_{\text{Em}} = 2,0 \mu\text{A}$  werden dazu herangezogen, den daraus erhaltenen Wert von  $\Delta E_Q = (351 \pm 26) \text{ meV}$  mit dem in der IPE ermittelten Wert zu vergleichen.

### Das IPE-Messsystem

Anders als VLEED wird die IPE mit vergleichsweise hohen Emissionsströmen betrieben, da die Effizienz des IPE-Prozesses deutlich geringer ist. Die Energieauflösung  $\Delta E_{\text{IPE}}$  entspricht der energetischen Verbreiterung der Fermikante. An Cu(001) wird diese anhand eines Spektrums, aufgenommen unter einem Elektroneneinfallswinkel von  $\Theta = 30^\circ$ , bestimmt, das in Abb. 3.9 dargestellt ist. Zwischen der Energieauflösung des IPE-Systems  $\Delta E_{\text{IPE}}$  und der Energieauflösung der Elektronenquelle  $\Delta E_Q$  und des Photonendetektors  $\Delta E_{\text{op}}$  besteht wieder folgender Zusammenhang:

$$\Delta E_{\text{IPE}}^2 = \Delta E_Q^2 + \Delta E_{\text{op}}^2. \quad (3.15)$$



**Abbildung 3.9:** IPE-Messung der Fermikante an Cu(001) unter  $\Theta = 30^\circ$  entlang der  $\bar{\Gamma}\bar{X}$ -Richtung zur Bestimmung der Energieauflösung des IPE-Systems. Der Emissionsstrom beträgt  $2,0 \mu\text{A}$ . Die Energie der Elektronen wird relativ zur Fermienergie  $E_F$  angegeben.

Die Auflösungen der Quelle und des Detektors können nicht unabhängig voneinander aus einer IPE-Messung ermittelt werden. Für den Detektor werden deshalb Literaturwerte herangezogen. Da sich jedoch die Zählrohre vor allem in der Qualität der Fenster unterscheiden [Thiede 2010] und für das verwendete keine Werte vorliegen,

ist die hieraus hervorgehende Energieauflösung der Quelle  $\Delta E_{Q,\text{IPE}}$  entsprechend unsicher. Sie wird daher zusätzlich im Vergleich zum aus der Gegenfeldmessung ermittelten Wert  $\Delta E_Q$  diskutiert.

Um die Verbreiterung der Fermikante zu bestimmen, wird eine Fermifunktion bei Raumtemperatur mit Gaußfunktionen verschiedener Halbwertsbreiten gefaltet, die jeweils der Apparatefunktion des IPE-Systems entsprechen. Dies wird solange wiederholt, bis die Gaußfunktion gefunden ist, mit der die so berechnete Fermikante optimale Übereinstimmung mit der experimentellen Kurve zeigt (s. Abb. 3.9). Zusätzlich wird je eine Apparatefunktion maximaler und minimaler Halbwertsbreite zur Fehlerabschätzung angegeben. Für die Energieauflösung des IPE-Systems ergibt sich so

$$\Delta E_{\text{IPE}} = (458 \pm 50) \text{ meV}.$$

Mit einem optischen Bandpass von  $\Delta E_{\text{op}} = 400 \text{ meV}$  [Funnemann und Merz 1986] ergibt sich nach Gleichung 3.15 für die Quelle

$$\Delta E_{Q,\text{IPE}} = (226 \pm 101) \text{ meV}$$

Geht man dagegen von  $\Delta E_{\text{op}} = 330 \text{ meV}$  aus [Budke et al. 2007], dann ist

$$\Delta E_{Q,\text{IPE}} = (320 \pm 71) \text{ meV}.$$

Beide Werte liegen unterhalb des aus den Gegenfeldmessungen im VLEED-System ermittelten Werts von  $\Delta E_Q = (351 \pm 26) \text{ meV}$ . Der von [Budke et al. 2007] angegebene optische Bandpass führt zu einer Übereinstimmung im Rahmen des Fehlers. Aufgrund der Unsicherheit bezüglich des Zählrohrs ist der im VLEED-System ermittelte Wert  $\Delta E_Q$  der vertrauenswürdigere. Dafür ergibt sich für den optischen Bandpass im verwendeten IPE-System eine energetische Breite von

$$\Delta E_{\text{op}} = (296 \pm 37) \text{ meV}.$$

### 3.4.2 Bestimmung des Elektroneneinfallswinkels und der Winkelauflösung

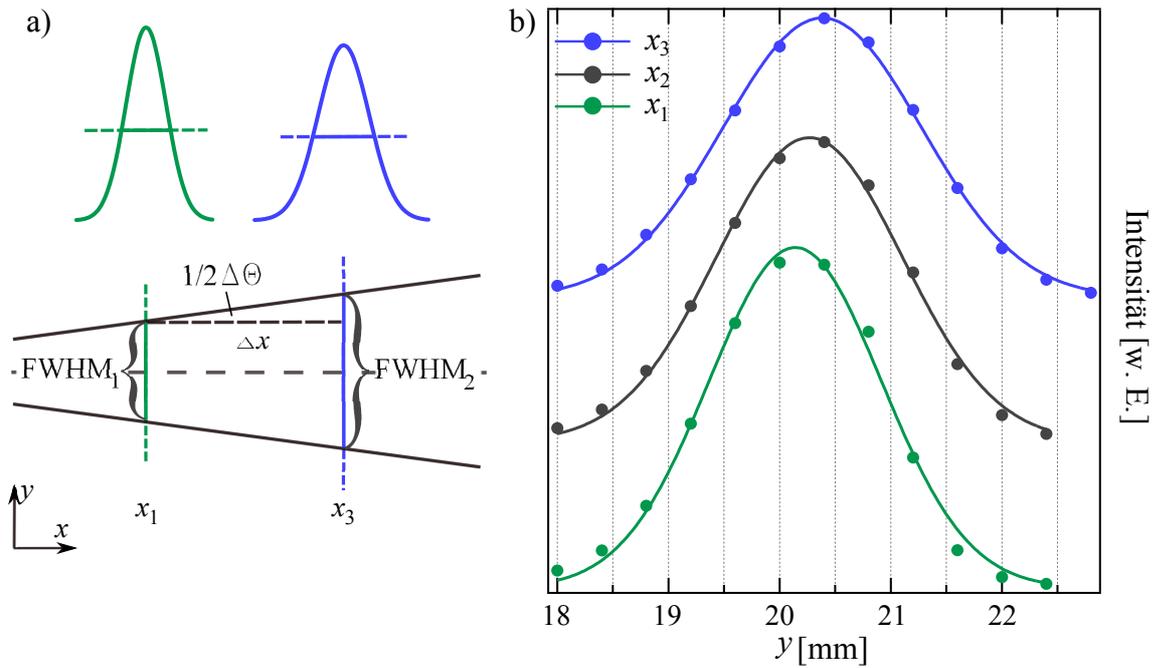
#### Die Winkelauflösung

Die Winkelauflösung des VLEED-Messsystems wird durch die Winkeldivergenz des Elektronenstrahls bestimmt. Der Gegenfeldanalysator deckt durch die 7 mm Öffnung im Abstand von 20 mm zur Probenoberfläche einen Raumwinkel von etwa  $20^\circ$  ab. Das ist klein genug, um ausschließen zu können, dass neben dem spekularen Strahl ein evtl. austretender Beugungsstrahl mitgemessen wird. Gleichzeitig ist der Öffnungswinkel aber so groß, dass er die Winkelauflösung nicht durch das Abschneiden von Randstrahlen des eintreffenden Elektronenstrahls verbessern kann.

Eine Möglichkeit, die Winkelauflösung experimentell zu bestimmen, ist die Aufnahme von Strahlprofilen in verschiedenen Abständen  $x$  zur Transferoptik. Dafür wird der Justier-Analysator senkrecht zur Ausbreitungsrichtung der Elektronen verfahren und dabei in regelmäßigen Abständen der Strom im Faradaybecher gemessen. Die

verzögernden Gitter liegen dabei auf Erdpotential. Bei einer gaußförmigen Winkelverteilung ist auch ein gaußförmiges Strahlprofil zu erwarten. Aus den Halbwertsbreiten von zwei im Abstand  $\Delta x$  voneinander aufgenommenen Profilen ergibt sich der halbe Öffnungswinkel des Elektronenstrahls nach der in Abb. 3.10 a) skizzierten Geometrie zu

$$\frac{\Delta\Theta}{2} = \arctan \left\{ \frac{\text{FWHM}_2 - \text{FWHM}_1}{2 \cdot \Delta x} \right\}. \quad (3.16)$$



**Abbildung 3.10:** Winkelaufösung der Elektronenquelle:  
a) Skizze zur Berechnung der Winkelaufösung aus den Halbwertsbreiten der  
b) Strahlprofile in der dispersiven Ebene (entlang  $y$ ).

In der dispersiven Ebene des Elektronenstrahls ( $y$ -Richtung) werden drei Profile in möglichst großen Abständen aufgenommen (Abb. 3.10 b)). Neben der Erhöhung der Genauigkeit soll so eine Fokussierung des Elektronenstrahls zwischen Transferoptik und Probe ausgeschlossen werden. Aus dem Mittelwert der drei halben Öffnungswinkel wird hier die Winkelaufösung als voller Öffnungswinkel zu

$$\Delta\Theta_y = (1,77 \pm 0,14)^\circ$$

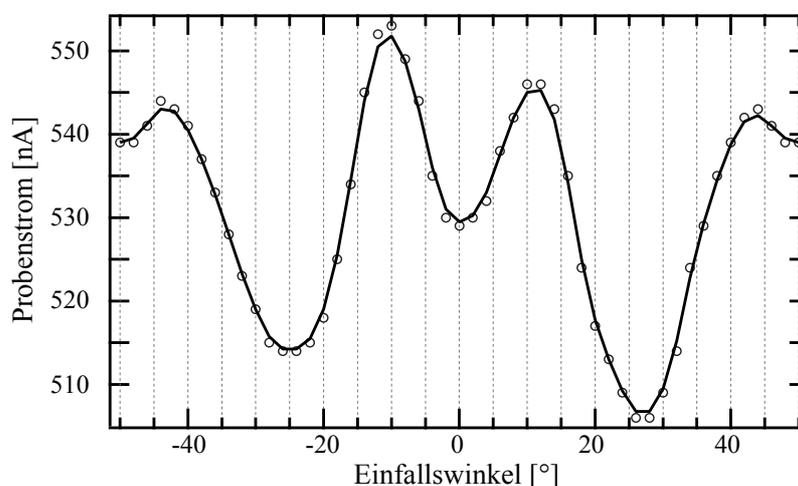
bestimmt. In der dazu senkrechten Ebene (in  $z$ -Richtung) ergibt sich nach gleichem Verfahren  $\Delta\Theta_z = (1,58 \pm 0,14)^\circ$ .

### Der Elektroneneinfallswinkel

Anders als z. B. die Justierung des Elektronenstrahls oder die Bestimmung von dessen Energieaufösung erfolgt die Bestimmung des Elektroneneinfallswinkels mit in

den Elektronenstrahl eingefahrener Probe.

Aus der Literatur ist bekannt, dass sich bei konstanter kinetischer Energie der Elektronen der Probenstrom als Funktion des Einfallswinkels symmetrisch um den senkrechten Einfall ändert, wenn die Elektronen entlang einer Hochsymmetrierichtung des Kristalls einfallen [Schneider et al. 1990]. In Abb. 3.11 ist diese Messung an Cu(001) bei einer Beschleunigungsspannung der Elektronen von 31 eV entlang der  $(\bar{\Gamma}\bar{X})$ -Richtung gezeigt. Die Einstellung der  $(\bar{\Gamma}\bar{X})$ -Richtung erfolgt mittels LEED-Bildern und VLEED-Spektren. Anhand der vier Maxima und drei Minima wird der senkrechte Elektroneneinfall ( $\Theta = 0^\circ$ ) mit einer Genauigkeit von  $0,5^\circ$  bestimmt. Diese Prozedur wird nach jeder Präparation der Quelle und anschließender Justierung des Elektronenstrahls wiederholt. Allerdings ist anzumerken, dass die Bedingungen während der Justierung vorgegeben durch das VLEED-Messsystem vollständig reproduzierbar sind, da der Nullpunkt der Winkelskala immer reproduziert wird.



**Abbildung 3.11:** Probenstrom als Funktion des Einfallswinkels  $\Theta$  zur Winkeleicheung bei  $\Phi = 0^\circ$ .  $\Theta = 0^\circ$  entspricht senkrechtem Elektroneneinfall. Der Emissionsstrom beträgt  $0,65 \mu\text{A}$ .

### 3.4.3 Bestimmung der Transmission

In der Darstellung von VLEED-Spektren in der Literatur ist in der Regel die an der Probe elastisch reflektierte Elektronenintensität auf den auf die Probe treffenden Gesamtstrom normiert. Dies wird nötig, wenn sich dieser Strom während eines einzelnen Messdurchlaufs als Funktion der Energie oder der Zeit signifikant ändert. Deshalb soll die Transmission durch die Transferoptik unter Messbedingungen getestet werden, d. h. bei einem Emissionsstrom von  $0,5 \mu\text{A}$  über einen Bereich der kinetischen Energie der Elektronen von  $E_{\text{kin}} = 3 - 27 \text{ eV}$  mit Messpunkten im Abstand von  $0,1 \text{ eV}$ . Dafür wird der Analysator senkrecht vor der Transferoptik positioniert und bei einer Abzugsspannung von  $+10 \text{ V}$  im Faradaybecher der gesamte transmittierte Strom gemessen, während die verzögernden Gitter auf Erdpotential liegen.

Im in Abb. 3.12 dargestellten Messdurchlauf ist zu erkennen, dass der Strom für  $8 \text{ eV} \leq E_{\text{kin}} \leq 27 \text{ eV}$  nur noch um etwa 3% des Maximums bei  $E_C = 27 \text{ eV}$  steigt. Es

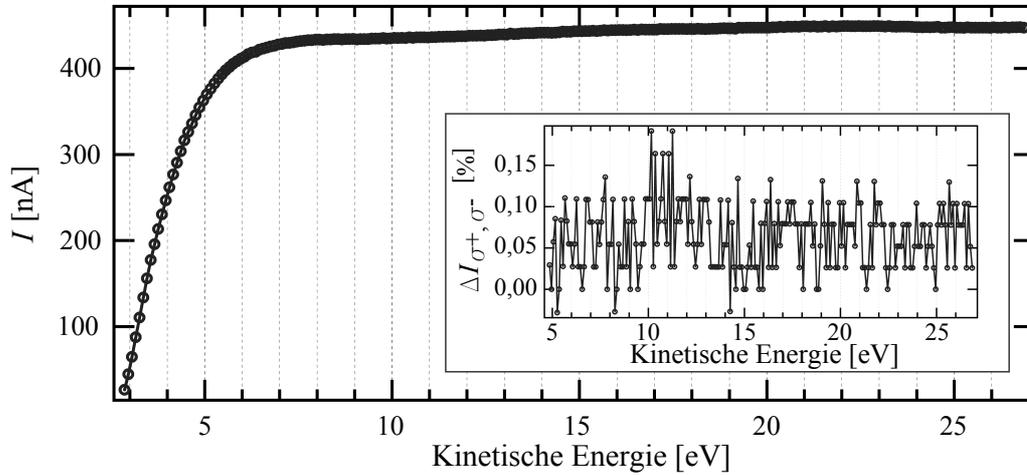
treten keine Strukturen auf, die eine Normierung der VLEED-Messungen erforderlich machen. Die Transmission liegt hier bei 87% – 90% des Emissionsstroms.

Für  $3 \text{ eV} \leq E_{\text{kin}} < 8 \text{ eV}$  dagegen ist die Transmission stark energieabhängig. Messungen in diesem Energiebereich müssten normiert werden.

Für spinaufgelöste Messungen soll überprüft werden, ob Geräteasymmetrien auftreten, die während einer Messung zu unechten Spinasymmetrien führen. Dafür wird  $I_{\sigma^+}$  bzw.  $I_{\sigma^-}$  als Funktion der Elektronenenergie  $E_{\text{kin}}$  aufgenommen. In Abb. 3.12 ist

$$\Delta I_{\sigma^+, \sigma^-} = \frac{I_{\sigma^+} - I_{\sigma^-}}{I_{\sigma^+} + I_{\sigma^-}} \quad (3.17)$$

als Funktion der Energie dargestellt.  $\Delta I_{\sigma^+, \sigma^-}$  beträgt weniger als 0,2% und wird daher bei der Auswertung spinaufgelöster Messungen nicht berücksichtigt.



**Abbildung 3.12:** Spinintegrierte Messung des durch die Transferoptik transmittierten Stroms  $I$  bei einem Emissionsstrom von  $0,5 \mu\text{A}$ . Die Abzugsspannung im Analysator beträgt  $+10 \text{ V}$ . Eingelegt ist  $\Delta I_{\sigma^+, \sigma^-}$ , berechnet nach Glg. 3.17 aus einer spinaufgelösten Transmissionsmessung.

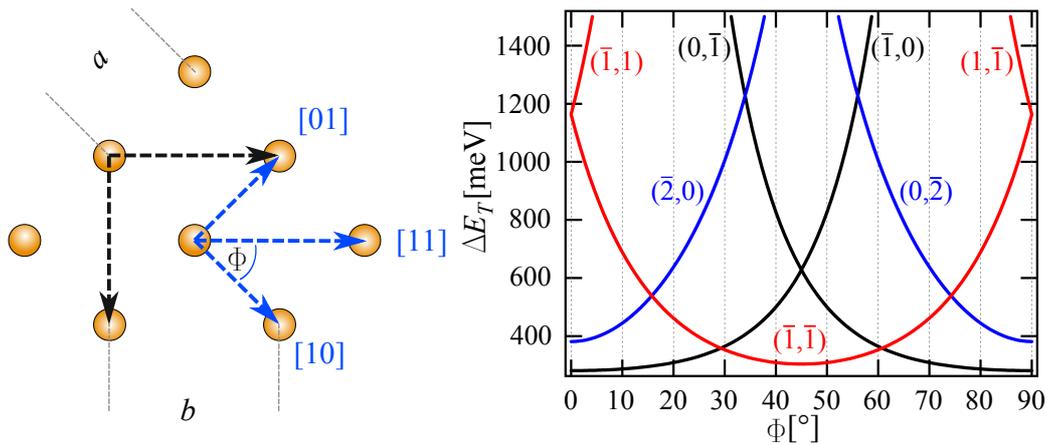
### 3.4.4 Äquivalente Auflösung

Mit der in Abschnitt 3.4 bestimmten Energie- und Winkelauflösung der Quelle soll nun die Äquivalente Auflösung  $\Delta E_T$  für die Cu(001)-Oberfläche bei einem Einfallswinkel von  $\Theta = 70^\circ$  als Funktion von  $\Phi$  für verschiedene Feinstrukturen angegeben werden. Es gilt

$$\Delta E_T = \frac{\sqrt{(\alpha_e \Delta E)^2 + (\alpha_\Theta \Delta \Theta)^2 + (\alpha_\Phi \Delta \Phi)^2}}{\alpha_e}. \quad (3.18)$$

Die Größen  $\alpha_{E, \Theta, \Phi}$  (s. Glg. 3.9, 3.10, 3.11) werden dafür für jede Feinstruktur jeweils als Funktion der Emergenzenergie  $E_T(\Theta, \Phi)$  (s. Glg. 2.33), des Winkels  $\Theta = 70^\circ$  und  $\Phi = [0^\circ, 90^\circ]$  berechnet. Dabei gilt  $\Delta E = \Delta E_Q = 273 \text{ meV}$ ,  $\Delta \Theta = 1,77^\circ$  und  $\Delta \Phi = 1,58^\circ$ .

$\Phi$  ist der gegen den Uhrzeigersinn gemessene Winkel zwischen der  $[10]$ -Richtung des zweidimensionalen Gitters der Oberfläche und  $\mathbf{k}_{\parallel}$ , d. h. der Richtung, in der die Elektronen einfallen.  $\Phi = 0^\circ$  entspricht somit Elektroneneinfall entlang der  $[10]$ -Richtung. Die Gitterkonstante des zweidimensionalen Gitters  $a$  ergibt sich aus der des dreidimensionalen Gitters  $b$  zu  $a = b/\sqrt{2}$  mit  $b_{\text{Cu}(001)} = 3,61 \text{ \AA}$  [Ashcroft 1976]. Das Ergebnis  $E_T(\Phi)$  ist zusammen mit einer schematischen Darstellung der Cu(001)-Oberfläche zur Erläuterung der Einstellung des Azimutwinkels  $\Phi$  in Abb. 3.13 gezeigt.



**Abbildung 3.13:** Äquivalente Auflösung als Funktion von  $\Phi$  bei  $\Theta = 70^\circ$ , dargestellt für verschiedene Feinstrukturen der Cu(001)-Oberfläche. Zur Berechnung werden die experimentell bestimmten Werte  $\Delta E_Q$ ,  $\Delta\Theta$  und  $\Delta\Phi$  verwendet (s. Text). Außerdem ist die Oberfläche des fcc-Gitters des Cu(001)-Kristalls bei einer Einstellung des Azimutwinkels von  $\Phi = 45^\circ$ , gemessen gegen den Uhrzeigersinn relativ zur  $[10]$ -Richtung, schematisch abgebildet. Angegeben sind die Richtungen im zweidimensionalen Gitter und die Gitterkonstanten im zweidimensionalen bzw. im dreidimensionalen Gitter  $a$  bzw.  $b$ .

Am besten aufgelöst wird die  $(\bar{1}\bar{1})$ -Feinstruktur bei  $\Phi = 45^\circ$ . Hier ist  $\Delta E_{T,\bar{1}\bar{1}}(\Theta = 70^\circ, \Phi = 45^\circ) = 304 \text{ meV}$ . Misst man diese Feinstruktur dagegen bei kleineren bzw. größeren  $\Phi$ , so wird die Äquivalente Auflösung deutlich schlechter. Es ist z. B.  $\Delta E_{T,\bar{1}\bar{1}}(\Theta = 70^\circ, \Phi = 10^\circ) = 689 \text{ meV}$ . Daher ist zu erwarten, dass die  $(\bar{1}\bar{1})$ -Feinstruktur in diesem Azimutwinkelbereich in diesem Experiment nicht mehr aufgelöst werden kann. Die  $(\bar{2}0)$ - bzw.  $(0\bar{2})$ -Feinstruktur wird dagegen gerade für kleine bzw. große  $\Phi$  mit bestmöglicher Auflösung gemessen, wobei diese mit  $\Delta E_{T,\bar{2}0}(\Theta = 70^\circ, \Phi = 0^\circ) = 480 \text{ meV}$  schlechter ist als  $\Delta E_{T,\bar{1}\bar{1}}(\Theta = 70^\circ, \Phi = 45^\circ)$ . Die dritte der Feinstrukturen zum  $(\bar{1}0)$ - bzw.  $(0\bar{1})$ -Beugungsstrahl sollte bei  $\Phi = 45^\circ$  mit der  $(\bar{1}\bar{1})$ -Feinstruktur zusammen zu beobachten sein, wenn man die in Abb. 2.11 aufgetragenen Emergenzenenergien betrachtet. Aufgrund der hier ermittelten Äquivalenten Auflösung für diese dritte Feinstruktur ist dies nicht mehr zu erwarten.

Wenn man jetzt eine berechnete Feinstruktur mit der Apparatefunktion faltet, deren Halbwertsbreite der wie oben berechneten Äquivalenten Auflösung  $\Delta E_T$  zum entsprechenden Beugungstrahl und Winkel  $\Theta$  bzw.  $\Phi$  entspricht, dann erhält man ein Spektrum, das bei vernachlässigbarer Auflösung des Analysators gemessen würde. Die totale Energieauflösung  $\Delta E_{\text{tot}}$  einer VLEED-Messung ergibt sich unter Berücksichtigung sowohl der Energie- und Winkelauflösung der Quelle und der daraus folgenden Äquivalenten Auflösung als auch der Energieauflösung des Analysators zu

$$\Delta E_{\text{tot}}^2 = \Delta E_T^2 + \Delta E_{\text{RFA}}^2. \quad (3.19)$$

Im Fall der  $(\bar{1}\bar{1})$ -Feinstruktur bei z. B.  $\Theta = 70^\circ$ ,  $\Phi = 45^\circ$  und  $E_T = 12,2 \text{ eV}$  ergibt sich mit  $\Delta E_{\text{RFA}}(E_{\text{kin}} \cong 12 \text{ eV}) = 185 \text{ meV}$

$$\Delta E_{\text{tot}}(E_{\text{kin}} \cong 12 \text{ eV}) = 356 \text{ meV}. \quad (3.20)$$

## 4 Ergebnisse

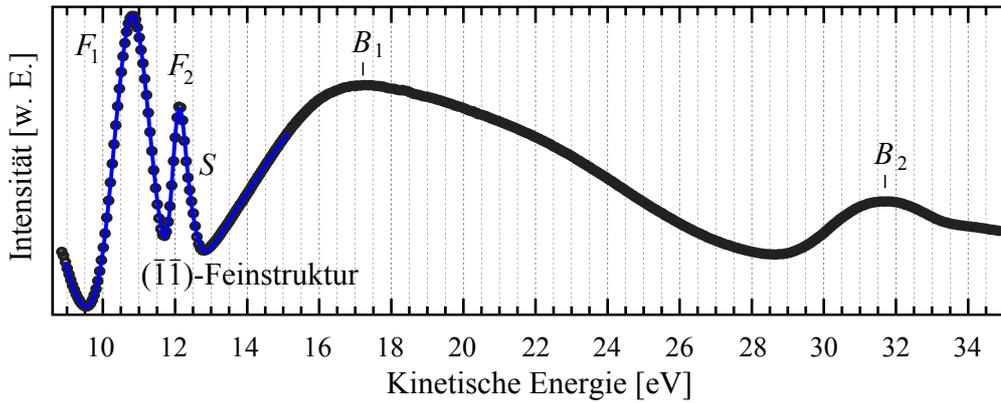
In diesem Kapitel werden die Ergebnisse des in dieser Arbeit entstandenen spinpolarisierten VLEED-Experiments vorgestellt und diskutiert. Die Messungen wurden an einer unmagnetischen Cu(001)- sowie an einer ferromagnetischen Co/Cu(001)-Oberfläche durchgeführt.

### 4.1 VLEED-Feinstruktur von Cu(001)

Ziel der VLEED-Messungen an Cu(001) ist die Darstellung der auftretenden Feinstrukturen als Funktion von  $E$ ,  $\Theta$  und  $\Phi$ , um den berechneten Verlauf der Emergenzennergien von gebeugten Elektronenstrahlen als Funktion von  $\Theta$  und  $\Phi$  zu bestätigen. Weiterhin soll damit die Genauigkeit des Experiments bei der Bestimmung von Größen wie der Emergenzennergie oder der energetischen Positionen von Feinstrukturzuständen überprüft werden. Durch Vergleiche von gemessenen VLEED-Spektren mit Rechnungen nach der in Abschnitt 2.5 vorgestellten Methode wird dann die Oberflächenbarriere von Cu(001) modelliert. Zuletzt werden außerdem spinaufgelöste VLEED-Messungen an der Cu(001)-Oberfläche vorgestellt, um zu überprüfen, ob eine Spinabhängigkeit auftritt. Im Rahmen dieser Messung wird die in Abschnitt 3.2.1 eingeführte Effizienz des VLEED-Experiments für die spinabhängige Streuung an dieser unmagnetischen Oberfläche bestimmt, die mit der an der ferromagnetischen Co/Cu(001)-Oberfläche erhaltenen Effizienz verglichen werden soll.

#### 4.1.1 Einzelspektren unter $\Theta = 70^\circ$ und $\Phi = 45^\circ$ bzw. $\Phi = 12,5^\circ$

In Abb. 4.1 ist ein VLEED-Spektrum für  $\Theta = 70^\circ$  und  $\Phi = 45^\circ$  abgebildet, in dem eine Feinstruktur zu beobachten ist. Diese besteht aus einer Folge von zwei Feinstrukturzuständen  $F_1$  und  $F_2$  sowie einer Schulter  $S$  an der hochenergetischen Seite des zweiten Feinstrukturzustands  $F_2$ . Der energetisch am niedrigsten gelegene Feinstrukturzustand ( $F_1$ ) entspricht dem ( $n = 1$ )-Zustand der Rydberg-Serie, der folgende ( $F_2$ ) dem ( $n = 2$ )-Zustand. Aufgrund der endlichen experimentellen Auflösung werden die Zustände der Ordnung ( $n \geq 3$ ) nicht mehr einzeln aufgelöst. Die Schulter  $S$  entspricht daher einer Faltung aller Feinstrukturzustände der Ordnungen ( $n \geq 3$ ) mit der Apparatefunktion des Experiments. Die gesamte Feinstruktur sitzt auf der ansteigenden Flanke eines primären Braggzustands  $B_1$ . Auch auf der niederenergetischen Seite der Feinstruktur steigt die gemessene reflektierte Intensität wieder an. Bei  $E_{\text{kin}} > 30 \text{ eV}$  tritt außerdem ein weiterer primärer Braggzustand  $B_2$  auf. Während  $B_1$  eine Halbwertsbreite (FWHM) von mehreren Elektronenvolt besitzt, ist  $B_2$  deutlich schmaler.



**Abbildung 4.1:** VLEED-Spektrum, gemessen an Cu(001) unter  $\Theta = 70^\circ$  und  $\Phi = 45^\circ$  bei einem Emissionsstrom von  $I_{Em} = 0,5 \mu A$ . Aufgetragen ist die reflektierte Intensität als Funktion der kinetischen Energie der Elektronen ( $I(V)$ -Kurve). Unterhalb von  $E_{kin} \cong 13 \text{ eV}$  tritt die  $(\bar{1}\bar{1})$ -Feinstruktur auf. Die blaue Linie repräsentiert eine Fitkurve der Feinstruktur.

Um die Energieposition und die FWHM der Feinstrukturzustände zu bestimmen, wird die Struktur gefittet. Für die Fitfunktion wird eine Summe aus zwei Gaußfunktionen als Untergrund gewählt, die energetisch unterhalb bzw. oberhalb der Feinstruktur liegen und die dort ansteigende Intensität bzw. den primären Braggzustand  $B_1$  repräsentieren. Auf diesen Untergrund werden drei weitere Gaußfunktionen für die drei Feinstrukturzustände addiert. Fitparameter für den Untergrund sind dabei ein konstanter Offset sowie die Amplitude, die energetische Position und die FWHM der Gaußfunktionen. Fitparameter der Feinstrukturzustände sind deren Amplitude, energetische Position und FWHM. Dabei werden mindestens fünf verschiedene Fitkurven durch Variation der Parameter des Untergrunds ermittelt. Die energetische Position und FWHM der Feinstrukturzustände wird dann jeweils als Mittelwert der einzelnen Ergebnisse mit zugehöriger Standardabweichung angegeben. Die so angepasste Fitkurve ist in Abb. 4.1 mit eingezeichnet. Die sich jeweils ergebende Energieposition bzw. FWHM der einzelnen Zustände ist in Tabelle 4.1 bzw. 4.2 angegeben.

FS	$\Theta [^\circ]$	$\Phi [^\circ]$	$E_1$ [eV]	$E_2$ [eV]	$E_3$ [eV]	$E_T$ [eV]
(11)	70	45	$10,80 \pm 0,02$	$12,08 \pm 0,05$	$12,31 \pm 0,10$	12,21
(20)	70	45	-	-	-	46,09
(11)	70	12,5	$14,63 \pm 0,01$	$16,36 \pm 0,05$	-	16,76
(20)	70	12,5	$23,99 \pm 0,02$	$25,51 \pm 0,05$	-	25,54

**Tabelle 4.1:** Energetische Positionen  $E_n$  der Feinstrukturzustände von Cu(001) bei den angegebenen Winkeln  $\Theta$  und  $\Phi$ . Zusätzlich ist die als Funktion von  $\Theta$  und  $\Phi$  berechnete Emergenzenergie  $E_T$  der  $(\bar{1}\bar{1})$ - und  $(\bar{2}0)$ -Feinstruktur angegeben.

FS	$\Theta [^\circ]$	$\Phi [^\circ]$	$FWHM_1 [eV]$	$FWHM_2 [eV]$	$FWHM_3 [eV]$	$\Delta E_T [eV]$
( $\bar{1}\bar{1}$ )	70	45	$1,18 \pm 0,10$	$0,43 \pm 0,07$	$0,36 \pm 0,01$	0,30
(20)	70	45	-	-	-	2,28
( $\bar{1}\bar{1}$ )	70	12,5	$0,94 \pm 0,02$	$0,53 \pm 0,02$	-	0,62
(20)	70	12,5	$1,03 \pm 0,10$	$0,40 \pm 0,05$	-	0,48

**Tabelle 4.2:** Halbwertsbreiten ( $FWHM_n$ ) der Feinstrukturzustände der ( $\bar{1}\bar{1}$ )- und (20)-Feinstruktur von Cu(001) bei den angegebenen Winkeln  $\Theta$  und  $\Phi$ . Zusätzlich ist die berechnete Äquivalente Auflösung  $\Delta E_T$  der beiden Feinstrukturen als Funktion von  $\Theta$  und  $\Phi$  angegeben.

Aufgrund des Energiebereiches  $E \leq 13,3$  eV, in dem diese Feinstruktur bei den gewählten Winkeln  $\Theta$  und  $\Phi$  auftritt, wird sie als ( $\bar{1}\bar{1}$ )-Feinstruktur<sup>(1)</sup> mit einer nach Glg. 2.33 berechneten Emergenzenergie von  $E_{T,(\bar{1}\bar{1})}(\Theta = 70^\circ, \Phi = 45^\circ) = 12,21$  eV identifiziert. Damit ergibt sich, dass der ( $n = 1$ )-Feinstrukturzustand 1,4 eV unterhalb der Emergenzenergie liegt und nicht der Rydberg-Serie nach Glg. 2.26 folgt, wonach dieser maximal 0,85 eV unterhalb von  $E_T$  liegen dürfte. Der ( $n = 2$ )-Zustand, für den nach der Rydberg-Serie

$$E_{2,(\bar{1}\bar{1})}^{\text{Ryd},a=0}(\Theta = 70^\circ, \Phi = 45^\circ) = 12,00 \text{ eV}$$

erwartet wird, fügt sich besser in diese Serie mit einer Abweichung von  $E^{\text{Ryd}} - E^{\text{Exp}} = -0,08$  eV. Die für die Schulter ermittelte Energieposition liegt oberhalb der berechneten Emergenzenergie. Diese Diskrepanz sowie die Einordnung der Feinstrukturzustände in die Rydberg-Serie wird im folgenden Abschnitt 4.1.2 wieder aufgegriffen und diskutiert.

Der Zustand erster Ordnung tritt mit größerer Intensität auf als der zweiter Ordnung, was im Gegensatz zur in Abschnitt 2.4 formulierten Erwartung konstanter Intensität der Feinstrukturzustände steht. Diese Dämpfung ist zum einen das Resultat inelastischer Streuung im Bereich der Oberflächenbarriere. Sie nimmt zusammen mit der zurückgelegten Weglänge des gebeugten Elektronenstrahls im Bereich der Barriere als Funktion der Primärenergie der einfallenden Elektronen zu. Daher treten Feinstrukturzustände zweiter oder höherer Ordnung mit abnehmender Intensität auf<sup>(2)</sup> [Thurgate und Jennings 1982].

Ein weiterer Grund für die Intensitätsabnahme des ( $n = 2$ )-Zustands liegt in der experimentellen Auflösung des Experiments. Faltet man den energetisch schmalen ( $n = 2$ )-Zustand mit der Apparatfunktion, nimmt dieser dadurch stärker in der Intensität ab als der energetisch breitere ( $n = 1$ )-Zustand.

Das erste diskutierte VLEED-Spektrum, das mit dem in dieser Arbeit vorgestellten

<sup>(1)</sup>Das ist die Feinstruktur, die durch Austausch des reziproken Gittervektors  $\vec{g} = (-1, -1)$  (in Einheiten der Basisvektoren  $\vec{a}_1^*$  und  $\vec{a}_2^*$ ) während des VLEED-Prozesses hervorgeht.

<sup>(2)</sup>Im Fall einer schlecht präparierten Probenoberfläche nimmt die Intensität aller Zustände gleichermaßen ab.

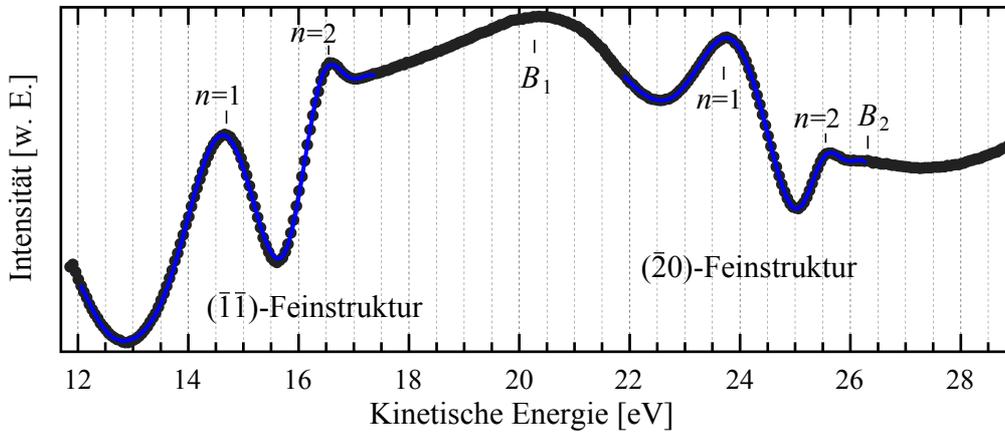
VLEED-Messsystem aufgenommen wurde, ist somit insgesamt in guter Übereinstimmung mit dem von [Hitchen und Thurgate 1988a] für ähnliche Winkel  $\Theta$  und  $\Phi$  gemessenen (vergleiche dazu Abb. 2.1 b)). Das gilt sowohl für die Form der Feinstruktur und für deren Auftreten auf der ansteigenden Flanke des Braggzustands als auch für den Verlauf des Untergrunds. Auch die energetische Position der Feinstruktur stimmt in beiden Messungen überein. Dabei muss berücksichtigt werden, dass die Energieskala in Abb. 2.1 b) fehlerhaft ist und von den Autoren um etwa +1,5 eV korrigiert wird [Hitchen et al. 1991].

Ein Unterschied besteht in der in dieser Arbeit geringeren Intensität des ( $n = 2$ )-Zustands. Außerdem tritt statt der Schulter für die ( $n \geq 3$ )-Zustände bei [Hitchen und Thurgate 1988a] ein dritter separierter Zustand auf. Dies ist auf eine bessere Energieauflösung der nicht spinpolarisierten Elektronenquelle im VLEED-Experiment von [Thurgate und Hitchen 1985] zurückzuführen.

An dieser Stelle soll daran erinnert werden, dass die Energieskala des Experiments (Kinetische Energie z. B. in Abb. 4.1) aus der Kontaktpotentialdifferenz von Quelle und Analysator hervorgeht (s. Abschnitt 3.4.1). D. h. die angegebene kinetische Energie ist die, die die Elektronen im Analysator besitzen. Die Energie der Elektronen an der Probenoberfläche, die sie während des VLEED-Prozesses besitzen, ergibt sich nach Glg. 3.14 aus der Austrittsarbeitdifferenz von Quelle  $\Phi_{A,\text{GaAs}} = 1,5 \text{ eV}$  und Probe  $\Phi_{A,\text{Cu}(001)} = 4,68 \text{ eV}$  [Allmers 2009]. Es ist  $E_{\text{CPD,Cu}(001)} = (3,18 \pm 0,05) \text{ eV}$ . D. h. die hier verwendete Energieskala gibt im Rahmen des Fehlers auch die Elektronenenergie an der Kupferoberfläche wieder.

Für das in Abb. 4.2 gezeigte VLEED-Spektrum wurde der Azimutwinkel  $\Phi$  variiert und beträgt nun  $\Phi = 12,5^\circ$ , während  $\Theta = 70^\circ$  konstant gehalten wurde. Wie zu erwarten ist die  $(\bar{1}\bar{1})$ -Feinstruktur zu größeren Energien gewandert. Die Emergenzenergie beträgt in diesem Fall  $E_{T,(\bar{1}\bar{1})}(\Theta = 70^\circ, \Phi = 12,5^\circ) = 16,76 \text{ eV}$ . Aufgrund der hier deutlich schlechteren Äquivalenten Auflösung (vergleiche Abschnitt 3.4.4) hat die gemessene Intensität der Feinstruktur deutlich abgenommen, wie im Vergleich zur Intensität des primären Braggzustands  $B_1$  zu erkennen ist. Durch den Einfluss des Braggzustands tritt nun der Zustand zweiter Ordnung mit größerer Intensität als der erster Ordnung auf. Als weiterer Effekt der Äquivalenten Auflösung werden die Zustände mit ( $n \geq 3$ ) nicht mehr als Schulter am ( $n = 2$ )-Zustand aufgelöst. In diesem Fall wurden für die Fitkurve der  $(\bar{1}\bar{1})$ -Feinstruktur nur zwei Gaußfunktionen berücksichtigt. Die Ergebnisse der Fitprozedur sind in Tab. 4.1 und 4.2 eingetragen. Im weiteren Verlauf des VLEED-Spektrums tritt zunächst der primäre Braggzustand  $B_1$  bei etwa 20,5 eV und dann noch eine zweite Feinstruktur auf. Aufgrund ihrer energetischen Position bei den gewählten Winkeln  $\Theta$  und  $\Phi$  wird sie als  $(\bar{2}0)$ -Feinstruktur identifiziert, da sie unmittelbar unterhalb der berechneten Emergenzenergie von  $E_{T,(\bar{2}0)}(\Theta = 70^\circ, \Phi = 12,5^\circ) = 25,54 \text{ eV}$  liegt. Unter  $\Phi = 45^\circ$  war sie dagegen zunächst aufgrund der Äquivalenten Auflösung nicht zu beobachten. Diese ist nun zwar deutlich besser (s. Tab. 4.2), reicht aber nur aus, zwei Zustände der Feinstruktur ohne eine Schulter für ( $n \geq 3$ ) aufzulösen, wie auch für die  $(\bar{1}\bar{1})$ -Feinstruktur des gleichen Spektrums. Für die Fitkurve werden daher ebenfalls zwei Gaußfunktionen als Feinstrukturzustände berücksichtigt, die wiederum auf einem

Untergrund bestehend aus den zwei primären Braggzuständen  $B_1$  und  $B_2$  sitzen. In Tab. 4.1 und 4.2 sind die daraus erhaltenen energetischen Positionen des  $(n = 1)_{(\bar{2}0)}$ - und  $(n = 2)_{(\bar{2}0)}$ -Feinstrukturzustands und deren FWHM angegeben.



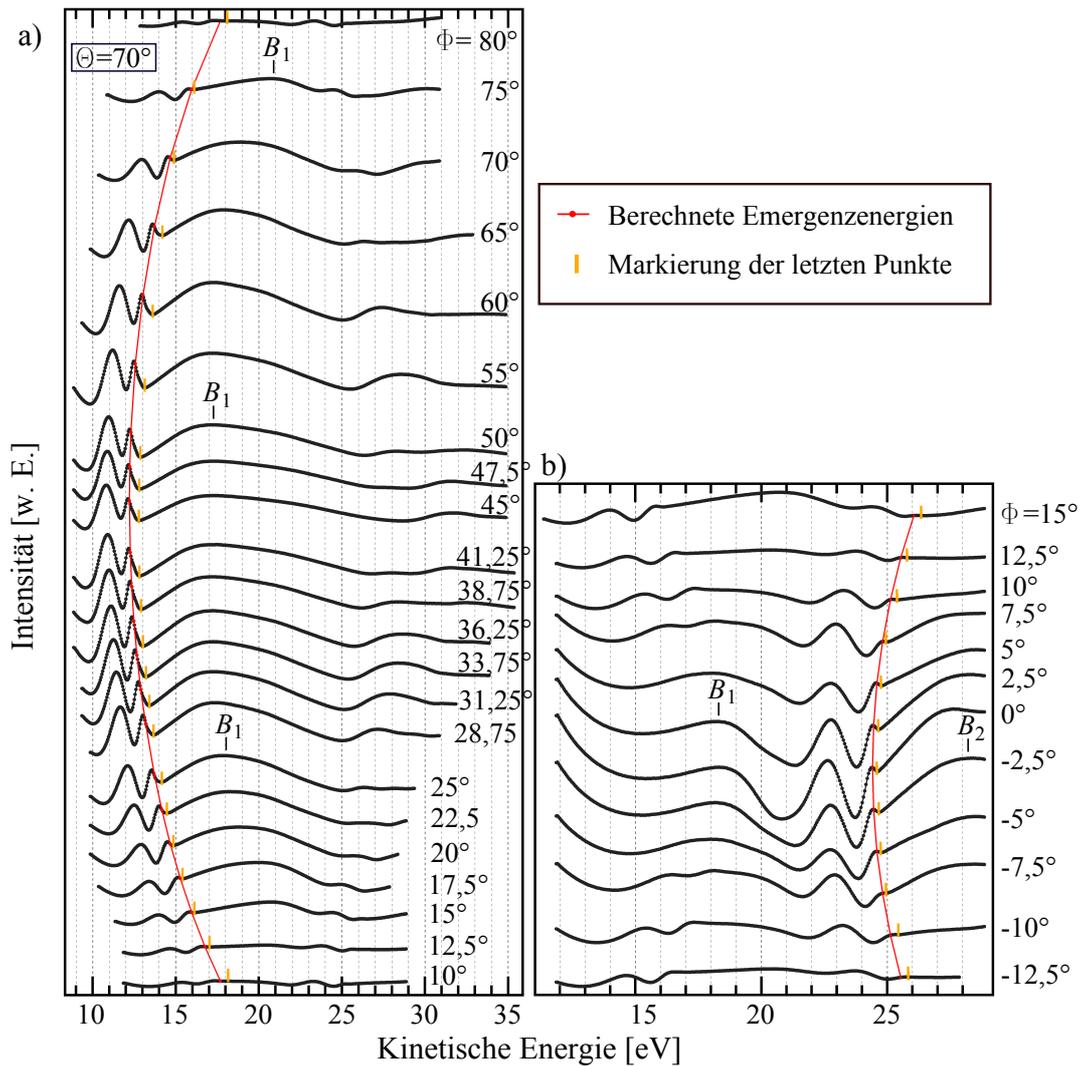
**Abbildung 4.2:** VLEED-Spektrum, gemessen an Cu(001) unter  $\Theta = 70^\circ$  und  $\Phi = 12,5^\circ$  bei  $I_{Em} = 0,5 \mu A$ . Unterhalb von  $E_{kin} \cong 17$  eV tritt die  $(\bar{1}\bar{1})$ - und unterhalb von  $E_{kin} \cong 26$  eV die  $(\bar{2}0)$ -Feinstruktur auf. In beiden Fällen werden aufgrund der Äquivalenten Auflösung zwei Feinstrukturzustände ( $n = 1$ ) und ( $n = 2$ ) der Rydberg-Serie beobachtet.

#### 4.1.2 Winkelserie in $\Phi$ für $\Theta = 70^\circ$

Um die in Abschnitt 2.4 eingeführte parabelförmige Dispersion der Emergenzenergie als Funktion des Azimutwinkels  $\Phi$  (s. Abb. 2.11) zu überprüfen, werden Winkelserien in  $\Phi$  sowohl für die  $(\bar{1}\bar{1})$ -Feinstruktur in Abb. 4.3 a) als auch für die  $(\bar{2}0)$ -Feinstruktur in Abb. 4.3 b) aufgenommen.  $\Theta = 70^\circ$  wird in jedem Fall beibehalten. Zur Orientierung ist jeweils zusätzlich in rot in jedes VLEED-Spektrum die berechnete Emergenzenergie für das entsprechende  $\Phi$  eingezeichnet. Der Offset in der Intensität zwischen den einzelnen Spektren entspricht jeweils deren Winkeldifferenz, so dass deshalb die eingezeichneten Punkte auf der berechneten Parabel der Emergenzenergie liegen.

##### $(\bar{1}\bar{1})$ -Feinstruktur

Die VLEED-Spektren der  $(\bar{1}\bar{1})$ -Feinstruktur in Abb. 4.3 a) sind jeweils auf das Minimum auf der niederenergetischen Seite des ersten Feinstrukturzustands normiert, um die Intensitäten der unter verschiedenen Winkeln  $\Phi$  aufgenommenen Feinstrukturen vergleichen zu können. Es zeigt sich, dass die bereits in Abb. 4.1 gezeigte Feinstruktur für  $\Phi = 45^\circ$  die niedrigste energetische Position einnimmt. Ausgehend davon dispergiert sie symmetrisch zu größeren Energien. Hier besteht qualitative Übereinstimmung mit dem Verhalten der als Funktion von  $\Phi$  berechneten Emergenzenergie.

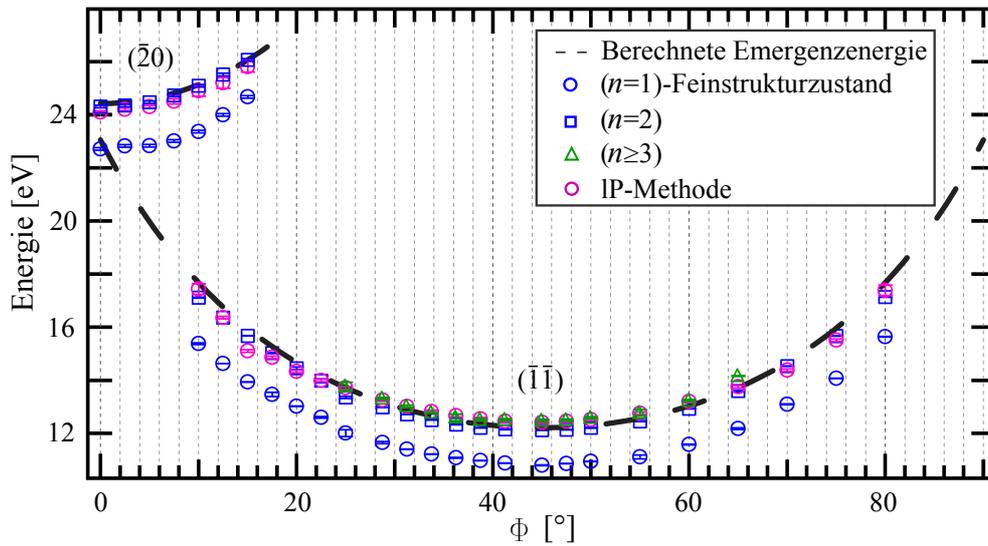


**Abbildung 4.3:** Winkelserie in  $\Phi$  von VLEED-Spektren an Cu(001) unter  $\Theta = 70^\circ$  bei  $I_{Em} = 0,5 \mu A$ , gemessen  
 a) um  $\Phi = 45^\circ$  zur Abbildung der  $(\bar{1}\bar{1})$ -Feinstruktur und  
 b) symmetrisch um  $\Phi = 0^\circ$  zur Abbildung der  $(\bar{2}0)$ -Feinstruktur.  
 Die untersten Spektren in a) entsprechen den obersten Spektren in b). In rot ist die berechnete Emergenzenergie eingezeichnet, in gelb sind die letzten Punkte, an denen die Feinstruktur das VLEED-Spektrum beeinflusst, markiert.

Die Intensität der  $(\bar{1}\bar{1})$ -Feinstruktur nimmt als Funktion von  $\Phi$  ausgehend von  $45^\circ$  ab. Wie schon beim Betrachten der Einzelspektren diskutiert, ist dies auf die Äquivalente Auflösung zurückzuführen. Damit einhergehend werden im Verlauf der Winkelserie für  $\Phi < 45^\circ$  bzw.  $\Phi > 45^\circ$  zunächst nur noch zwei Zustände ohne die Schulter aufgelöst und schließlich kaum noch der zweite Zustand. Für  $\Phi \geq 75^\circ$  und  $\Phi \leq 15^\circ$  wird die schon in Abb. 4.2 unter  $\Phi = 12,5^\circ$  neben der  $(\bar{1}\bar{1})$ -Feinstruktur be-

obachtete  $(\bar{2}0)$ -Feinstruktur sichtbar. Sie wird im Anschluss an die  $(\bar{1}\bar{1})$ -Feinstruktur untersucht.

Als nächstes soll die Emergenzenergie der  $(\bar{1}\bar{1})$ -Feinstruktur aus den experimentellen Daten bestimmt und in Abb. 4.4 mit der berechneten verglichen werden.



**Abbildung 4.4:** Bestimmung der Emergenzenergie aus VLEED-Spektren. Aufgetragen sind die nach der IP-Methode ermittelten Werte für die Emergenzenergie sowie die energetische Position der  $(n = 1)$ -,  $(n = 2)$ - und (soweit vorhanden) der  $(n \geq 3)$ -Zustände für die  $(\bar{1}\bar{1})$ - und die  $(\bar{2}0)$ -Feinstruktur als Funktion von  $\Phi$  unter  $\Theta = 70^\circ$ . Die gestrichelte Linie repräsentiert die berechnete Emergenzenergie.

Eine Methode, die Emergenzenergie aus den VLEED-Spektren zu bestimmen, ist, den letzten Punkt, in dem die Feinstruktur das Spektrum „beeinflusst“, zu ermitteln [Hitchen und Thurgate 1988b]. Da die Feinstruktur auf der ansteigenden Flanke des primären Braggzustands  $B_1$  sitzt, wird für diese Messung als letzter Punkt das Minimum in der Intensität zwischen der Feinstruktur und dem primären Braggzustand  $B_1$  gewählt. Er ist in Abb. 4.3 a) in den Einzelspektren jeweils mit einem Strich markiert. Als Fehler der so bestimmten Energieposition wird in eindeutigen Fällen die Schrittweite der Messung von  $E_{sw} = 0,05$  eV angegeben. Ansonsten wird der Fehler entsprechend größer gewählt: Im Extremfall für  $\Phi = 10^\circ$  bzw.  $\Phi = 80^\circ$  fällt das Maximum des  $(n = 2)_{(\bar{1}\bar{1})}$ -Zustands etwa mit dem Maximum des Braggzustands  $B_1$  zusammen, so dass kein Minimum auftritt. Dort wird der Fehler zu 0,2 eV angegeben.

Vom letzten Punkt ist nach [Hitchen und Thurgate 1988b] eine FWHM der Apparatfunktion des Systems  $\Delta E_{tot}$  abzuziehen. Diese wird je nach Winkel  $\Phi$  (und  $\Theta$ ) bzw.

Energie jeweils nach Glg. 3.19 bestimmt. Der letzte Punkt, von dem diese FWHM bereits abgezogen wurde, wird im Folgenden als „IP“ bezeichnet:

$$\text{IP} = \text{letzter Punkt} - \Delta E_{\text{tot}}$$

Zum Vergleich mit der berechneten Emergenzenergie werden zusätzlich die energetischen Positionen der Zustände erster und zweiter Ordnung und, soweit im Rahmen der Äquivalenten Auflösung möglich, der Schulter, bestehend aus Zuständen höherer Ordnung, angegeben. Dafür werden alle Spektren der Winkelserie analog zum Vorgehen bei den Einzelspektren gefittet.

Für die  $(\bar{1}\bar{1})$ -Feinstruktur kann im Rahmen der Äquivalenten Auflösung zwischen  $\Phi = [25^\circ, 65^\circ]$  ein Zustand der Ordnung ( $n \geq 3$ ) ermittelt werden. Dessen energetische Position stimmt im gesamten Winkelbereich mit dem aus der IP-Methode bestimmten Wert für die Emergenzenergie überein. Die einzige Ausnahme besteht bei  $\Phi = 65^\circ$ . Alle Werte des IP und des ( $n \geq 3$ )-Zustands für  $\Phi = [25^\circ, 65^\circ]$  entsprechen qualitativ dem parabelförmigen Verlauf der berechneten Kurve. Allerdings liegen sie um  $\Delta E \leq 0,2 \text{ eV}$  oberhalb der berechneten Emergenzenergien wie im letzten Abschnitt bereits für  $(n \geq 3)_{(\bar{1}\bar{1}), \Phi=45^\circ}$  beobachtet.

Im weiteren Verlauf der  $(\bar{1}\bar{1})$ -Winkelserie, d. h. für  $\Phi < 25^\circ$  bzw.  $\Phi > 65^\circ$ , liegt die energetische Position des IP dagegen unterhalb der berechneten Kurve.

Die Zustände erster und zweiter Ordnung entsprechen über den gesamten Winkelbereich dem parabelförmigen Verlauf der Emergenzenergie. Für  $\Phi < 25^\circ$  bzw.  $\Phi > 65^\circ$  ist nun die energetische Position des  $(n = 2)_{(\bar{1}\bar{1})}$ -Zustands mit der des IP vergleichbar.

## Diskussion

Zur Bestimmung der Emergenzenergie der  $(\bar{1}\bar{1})$ -Feinstruktur aus experimentellen VLEED-Spektren eignen sich diejenigen, die mit einer Auflösung aufgenommen werden, die gut genug ist, die ( $n \geq 3$ )-Schulter beobachten zu können. Das entspricht hier dem Winkelbereich von  $\Phi = [25^\circ, 65^\circ]$ . Die Überschätzung um  $\Delta E \leq 0,2 \text{ eV}$  sowohl in der energetischen Position der Schulter als auch des IP lässt sich anhand des in Abschnitt 3.4.1 angegebenen Fehlers  $u_S$  der Kontaktpotentialdifferenz  $E_{\text{CPD}}$  erklären. Das Minimum von  $E_{\text{CPD}} = 3,14 \text{ eV}$  wird bei  $E_{\text{kin}} \cong 6 \text{ eV}$  angenommen. In den Gegenfeldmessungen ergab sich, dass bei Variation der kinetischen Energie der Elektronen  $E_{\text{CPD}}$  um bis zu  $+0,2 \text{ eV}$  größer sein kann. Für alle Energien  $E_{\text{kin}} \geq 6 \text{ eV}$  muss daher ein systematischer Fehler von  $u_S \leq +0,2 \text{ eV}$  berücksichtigt werden, der einer Verschiebung der Energieskala  $\Delta E_S$  von maximal  $\Delta E_S = -0,2 \text{ eV}$  entspricht. Das führt hier zu einer Übereinstimmung der experimentell bestimmten Emergenzenergie mit der berechneten im Rahmen des angegebenen Fehlers  $u_S$  für  $\Phi = [25^\circ, 65^\circ]$ .

Umgekehrt ließe sich anhand des Vergleichs der Positionen des ( $n \geq 3$ ) und der IP mit der berechneten Emergenzenergie jetzt auch die mit der Unsicherheit  $u_S$  behaftete Energieskala des Experiments genau festlegen, indem die experimentellen und berechneten Werte aufeinander gelegt werden. Das entspricht der von Hitchen und Thurgate vorgestellten Methode zur Bestimmung von experimentellen Parametern aus VLEED-Messungen [Hitchen und Thurgate 1988b].

Außerhalb des Bereiches, in dem die ( $n \geq 3$ )-Schulter nicht mehr beobachtet wird

und die Energieposition des IP mit der des  $(n = 2)$ -Zustands zusammenfällt, ist die Angabe des IP als Emergenzenergie nicht mehr zuverlässig.

Im Rahmen des systematischen Fehlers  $u_s$  stimmt die in Abschnitt 4.1.1 aus dem Gesetz der Rydberg-Serie für  $\Phi = 45^\circ$  berechnete energetische Position des  $(n = 2)_{(\bar{1}\bar{1})}$ -Zustands  $E_{2,(\bar{1}\bar{1})}^{\text{Ryd},a=0}$  mit dem experimentellen Wert bei  $\Phi = 45^\circ$  überein.

Das Gesetz der Rydberg-Serie bietet daher die Möglichkeit, anhand der im Experiment bestimmten energetische Position des  $(n = 2)$ -Zustands auf die Emergenzenergie zu schließen, unabhängig von der  $(n \leq 3)$ -Schulter und dem IP. Dies kann allerdings nur dann zu verlässlichen Ergebnissen führen, wenn der Quantendefekt  $a$  bekannt ist.

### $(\bar{2}0)$ -Feinstruktur

Die  $(\bar{2}0)$ -Winkelserie in Abb. 4.3 b) ist ebenfalls auf das Minimum auf der niederenergetischen Seite des ersten Feinstrukturzustands normiert. Die  $(\bar{2}0)$ -Feinstruktur dispergiert symmetrisch zu  $\Phi = 0^\circ$  und besitzt dort die minimale Emergenzenergie von  $E_{T,(\bar{2}0)}(\Theta = 70^\circ, \Phi = 0^\circ) = 24,42 \text{ eV}$ . Wie die  $(\bar{1}\bar{1})$ -Feinstruktur wird sie in diesem Minimum mit der besten Äquivalenten Auflösung von  $\Delta E_{T,(\bar{2}0)}(\Theta = 70^\circ, \Phi = 0^\circ) = 0,48 \text{ eV}$  abgebildet, während die Auflösung symmetrisch um  $\Phi = 0^\circ$  schlechter wird. Wie zu erwarten ist die Äquivalente Auflösung für die  $(\bar{2}0)$ -Feinstruktur insgesamt schlechter als die der  $(\bar{1}\bar{1})$ -Feinstruktur, so dass für keinen Winkel  $\Phi$  eine  $(n \geq 3)$ -Schulter beobachtet wird. Zum Vergleich mit der für die  $(\bar{2}0)$ -Feinstruktur berechneten Emergenzenergie werden analog zum Fall der  $(\bar{1}\bar{1})$ -Winkelserie die IP und die energetische Position der Feinstrukturzustände  $(n = 1)$  und  $(n = 2)$  bestimmt. Die ermittelten Werte sind auch in Abb. 4.4 eingetragen.

Der  $(n = 1)_{(\bar{2}0)}$ - und der  $(n = 2)_{(\bar{2}0)}$ -Zustand folgen der parabelförmigen Dispersion mit Energien unterhalb der berechneten Emergenzenergie. Die IP entsprechen den Energiepositionen des  $(n = 2)$ . Dies ist in Übereinstimmung mit dem Verlauf für die  $(\bar{1}\bar{1})$ -Feinstruktur in den Winkelbereichen, in denen ebenfalls keine  $(n \geq 3)$ -Schulter aufgelöst wurde. Daraus ergibt sich die Schlussfolgerung, dass der IP in diesem Fall nicht zur experimentellen Bestimmung der Emergenzenergie herangezogen werden kann.

In Anlehnung an den Fall der  $(\bar{1}\bar{1})$ -Feinstruktur wird deshalb die aus dem Gesetz der Rydberg-Serie ermittelte energetische Position des  $(n = 2)$ -Zustands

$$E_{2,(\bar{2}0)}^{\text{Ryd},a=0}(\Theta = 70^\circ, \Phi = 0^\circ) = 24,21 \text{ eV}$$

mit dem experimentell bestimmten Wert von

$$E_{2,(\bar{2}0)}^{\text{Exp}}(\Theta = 70^\circ, \Phi = 0^\circ) = 24,31 \text{ eV}$$

verglichen. Wie im Fall der  $(\bar{1}\bar{1})$ -Feinstruktur beträgt die Differenz  $E^{\text{Ryd}} - E^{\text{Exp}} = -0,1 \text{ eV}$ , was im Rahmen des systematischen Fehlers  $u_s$  übereinstimmt.

Der  $(n = 1)$ -Zustand liegt für die  $(\bar{2}0)$ -Feinstruktur sogar  $1,71 \text{ eV}$  unterhalb der Emergenzenergie. Er folgt damit wie der  $(n = 1)_{(\bar{1}\bar{1})}$  nicht dem Gesetz der Rydberg-Serie, wonach er immer maximal  $0,85 \text{ eV}$  unterhalb der Emergenzenergie liegt<sup>(3)</sup>.

<sup>(3)</sup>Auch [Hitchen und Thurgate 1988a] bestimmen experimentell einen energetischen Abstand des  $(n = 1)$ -Zustands zur Emergenzenergie von  $\Delta E > 1 \text{ eV}$ .

### Zusammenfassung

Die mit dem hier vorgestellten VLEED-Experiment aufgenommene Winkelserie in  $\Phi$  für die  $(\bar{1}\bar{1})$ - und  $(\bar{2}0)$ -Feinstruktur bei  $\Theta = 70^\circ$  bestätigt das in Abschnitt 2.4 vorgestellte Modell zur Berechnung der Emergenzenergie von gebeugten Elektronenstrahlen als Funktion von Einfallswinkel und Azimutwinkel von sehr niedrigerenergetischen Elektronen. Zur Bestimmung der Emergenzenergie aus dem VLEED-Experiment eignen sich dabei vor allem solche Spektren, in denen die Äquivalente Auflösung ein Beobachten der  $(n \geq 3)$ -Schulter zulässt. Deren Energieposition stimmt jeweils mit der nach der IP-Methode bestimmten Emergenzenergie überein.

Ein Vergleich zwischen dem Modell und den experimentellen Werten für die Emergenzenergie als Funktion von  $\Theta$  und  $\Phi$  bietet die Möglichkeit, die Energieskala des Experiments trotz Unsicherheit  $u_S$  festzulegen [Hitchen und Thurgate 1988b].

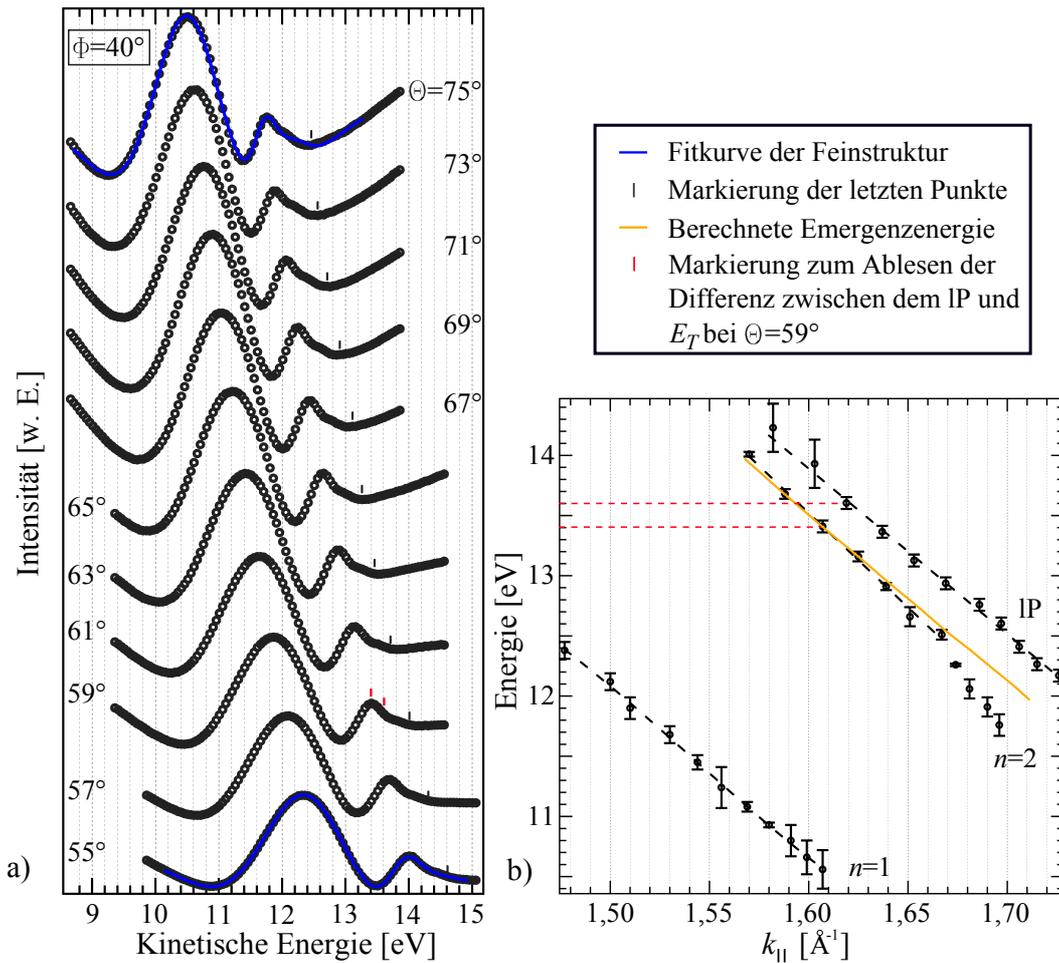
Bei Äquivalenten Auflösungen, die das Beobachten des  $(n \geq 3)$  nicht ermöglichen, bietet ein Vergleich der Energieposition des  $(n = 2)$ -Zustands mit der nach dem Gesetz der Rydberg-Serie ermittelten eine Möglichkeit, die Emergenzenergie experimentell zu bestimmen. Voraussetzung dafür ist, dass der Quantendefekt  $a$  bekannt ist. Im hier vorliegenden Experiment wird eine Übereinstimmung von  $E_2^{\text{Ryd}}$  mit  $E_2^{\text{Exp}}$  für  $a = 0$  erzielt<sup>(4)</sup>.

#### 4.1.3 Winkelserie in $\Theta$ für $\Phi = 40^\circ$

In Abb. 4.5 a) ist eine VLEED-Winkelserie dargestellt, die an Cu(001) unter Variation des Einfallswinkels im Bereich von  $\Theta = [55^\circ, 75^\circ]$  bei einem konstanten Azimutwinkel  $\Phi = 40^\circ$  aufgenommen wurde. Alle Spektren sind erneut auf das Minimum auf der niederenergetischen Seite des  $(n = 1)$ -Zustands normiert. Die  $(\bar{2}0)$ -Feinstruktur ist unter diesem Azimutwinkel nicht zu beobachten. Es ist zu erkennen, dass die  $(\bar{1}\bar{1})$ -Feinstruktur auch als Funktion des Einfallswinkels dispergiert und zwar ausgehend von  $\Theta = 55^\circ$  zu einer um etwa 2 eV kleineren Energie bei  $\Theta = 75^\circ$ . Weiterhin fällt auf, dass für  $\Theta = 55^\circ$  kaum eine  $(n \geq 3)$ -Schulter zu erkennen ist, während diese für  $\Theta \geq 65^\circ$  relativ deutlich hervortritt. Dies ist in Übereinstimmung mit der Äquivalenten Auflösung, die von  $\Delta E_{T,(\bar{1}\bar{1})}(\Theta = 55^\circ, \Phi = 40^\circ) = 0,39$  eV auf  $\Delta E_{T,(\bar{1}\bar{1})}(\Theta = 75^\circ, \Phi = 40^\circ) = 0,29$  eV steigt.

Die Feinstrukturen werden analog zum Verfahren der Winkelserien in  $\Phi$  jeweils mit drei Feinstrukturzuständen gefittet. Das Ergebnis ist für  $\Theta = 55^\circ$  und  $\Theta = 75^\circ$  eingezeichnet. Außerdem wird zur Bestimmung der Emergenzenergie der IP ermittelt. In die Winkelserie eingezeichnet ist wieder der letzte Punkt, an dem die Feinstruktur das Spektrum beeinflusst. Dies ist für kleine  $\Theta$  mit einem größeren Fehler behaftet, da hier kein Minimum zwischen Feinstruktur und folgendem primären Braggzustand auftritt.

<sup>(4)</sup>[Fauster 2002] gibt für die Rydberg-Serie der Oberflächenzustände an Cu(001) im oberen Bereich der oberflächenprojizierten Bandlücke  $a = 0$  und im unteren Bereich  $a = 0,5$  an, was mit dem hier verwendeten Wert für den  $(n = 2)$ -Zustand vergleichbar ist.



**Abbildung 4.5:** a) Winkelserie der  $(\bar{1}\bar{1})$ -Feinstruktur von Cu(001) in  $\Theta$  unter  $\Phi = 40^\circ$  mit  $I_{\text{Em}} = 0,5 \mu\text{A}$ . Eingezeichnet sind die letzten Punkte, an denen die Feinstruktur das Spektrum beeinflusst, sowie jeweils eine Fitfunktion der Feinstruktur für  $\Theta = 55^\circ$  und  $\Theta = 75^\circ$ . Die daraus bestimmten Energiepositionen des ( $n = 1$ )- und ( $n = 2$ )-Zustands und des IP sind in b) in ein  $E(k_{||})$ -Diagramm eingezeichnet. Dort ist in gelb zusätzlich die berechnete Emergenzenergie angegeben.

Die IP und die energetischen Positionen des ( $n = 1$ )- und ( $n = 2$ )-Zustands werden in ein  $E(k_{||})$ -Diagramm eingetragen.  $k_{||}$  ergibt sich nach

$$k_{||}(\Theta, E) = \frac{\sqrt{2m_e}}{\hbar} \sqrt{E} \cdot \sin\Theta \quad (4.1)$$

[Baribeau und Carette 1981]. In Abb. 4.5 b) ist zusätzlich die berechnete Emergenzenergie als Funktion von  $k_{||}$  eingetragen.

Der ( $n = 1$ )-Zustand sowie die IP zeigen eine lineare Dispersion, die parallel zur Emergenzenergie verläuft. Das bedeutet, dass der energetische Abstand zur Emergenzenergie jeweils konstant ist.

Für die IP beträgt er  $\Delta E = +0,2 \text{ eV}$ . Um das im  $E(k_{\parallel})$ -Diagramm abzulesen, muss berücksichtigt werden, dass bei einer Korrektur der Energie des IP auch  $k_{\parallel}$  entsprechend kleiner wird. In Abb. 4.5 b) ist beispielhaft eingezeichnet wie die energetische Differenz abzulesen ist. In dem Fall beträgt unter  $\Theta = 59^\circ$  die energetische Differenz zwischen dem IP und dem ( $n = 2$ )-Zustand gerade  $0,2 \text{ eV}$ , wie in Abb. 4.5 a) auch markiert.

Die energetische Position des ( $n = 2$ )-Zustands wird vom hier vorliegenden Fit der Feinstruktur nicht so zufriedenstellend wiedergegeben wie es für den ( $n = 1$ )-Zustand oder wie es beim Fit der Winkelserie in  $\Phi$  der Fall ist. Für  $\Theta = [55^\circ, 67^\circ]$  kann die Dispersion im Rahmen des Fehlers noch als parallel zur berechneten Geraden der Emergenzenergie bezeichnet werden. Für hohe Winkel weichen die Werte stärker ab. In Abb. 4.5 a) ist direkt zu erkennen, dass der Fit für  $\Theta = 55^\circ$  vor allem für die ( $n \geq 3$ )-Zustände schon nicht optimal ist. Für  $\Theta = 75^\circ$  werden diese Zustände noch schlechter reproduziert, was auch die Qualität des Fits für den ( $n = 2$ ) beeinflusst. Dies führt im  $E(k_{\parallel})$ -Diagramm dann zu deutlichen Abweichungen vom linearen Verlauf für den ( $n = 2$ )-Zustand.

Dass es nicht möglich ist, die Feinstruktur besser zu fitten, kann daran liegen, dass der gewählte Messbereich zu klein ist, um den Untergrund korrekt berücksichtigen zu können.

### Diskussion

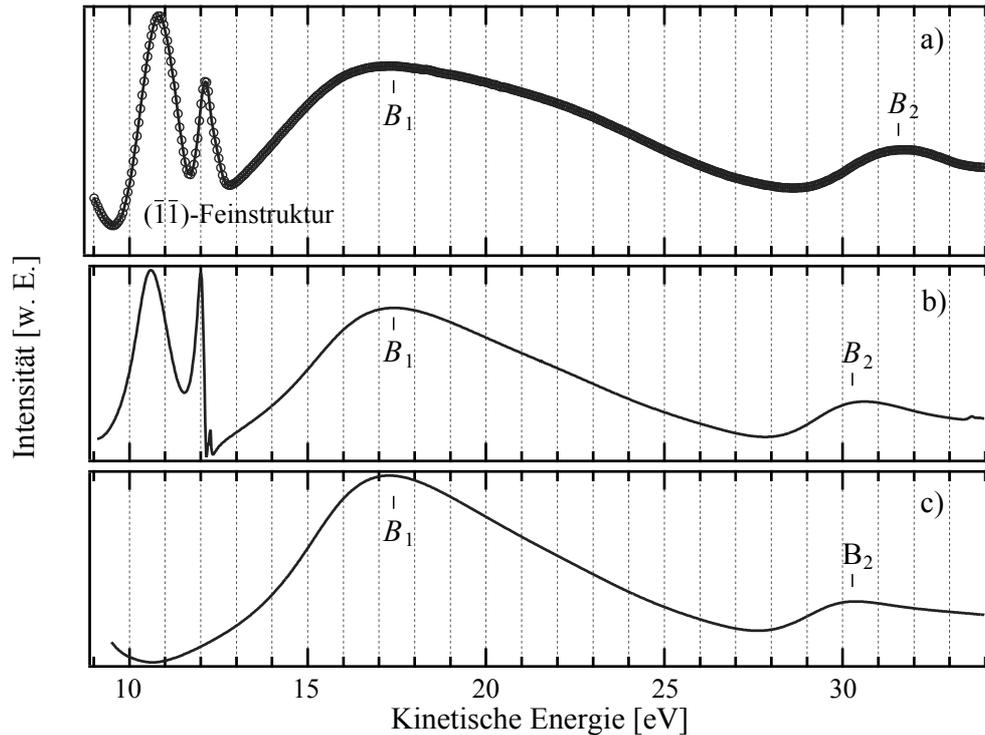
Beim Betrachten der linearen Dispersion  $E(k_{\parallel})$  der Feinstrukturzustände und der IP zeigt sich, dass der Messbereich ausreichend groß gewählt werden muss, um die Feinstruktur korrekt anfitten zu können. Die IP-Methode ist unabhängig davon. Die lineare Dispersion des IP über einen Winkelbereich von  $\Delta\Theta = 20^\circ$  erlaubt einen genaueren Vergleich mit den berechneten Werten der Emergenzenergie als im Fall der parabelförmigen Dispersion  $E(\Phi)$ . Es wird eine konstante Differenz von  $\Delta E = +0,2 \text{ eV}$  bestimmt, um die die Energieskala der hier vorgestellten Messungen an Cu(001) korrigiert werden muss.

Somit handelt es sich hier um ein sehr vielversprechendes Verfahren, die Emergenzenergie im Experiment zu bestimmen. Dabei sollten Winkelserien in  $\Theta$  mit  $\Theta \geq 55^\circ$  unter den Winkeln  $\Phi$  aufgenommen werden, unter denen dann zwei Feinstrukturzustände plus Schulter beobachtet werden. Am linearen Fit der IP im  $E(k_{\parallel})$ -Diagramm lässt sich dann jeweils die Emergenzenergie  $E_T(\Theta, \Phi)$  ablesen oder ein Vergleich mit berechneten Werten anstellen.

Insgesamt zeigt sich in Abschnitt 4.1.1, 4.1.2 und 4.1.3, dass die im Rahmen der Äquivalenten Auflösung in diesem Experiment zu beobachtenden Feinstrukturen bzw. deren ( $n = 1$ )-, ( $n = 2$ )- und ( $n \geq 3$ )-Feinstrukturzustände und die als IP bestimmte Emergenzenergie die Erwartungen bzgl. der  $E(\Phi)$ - und  $E(k_{\parallel})$ -Dispersion erfüllen. Damit ist das Auftreten der einzelnen Feinstrukturen sowie deren Verhalten als Funktion von  $E_{\text{kin}}$ ,  $\Theta$  und  $\Phi$  in guter Übereinstimmung mit bereits veröffentlichten experimentellen Daten z. B. von [Hitchen und Thurgate 1988a, Hitchen und Thurgate 1988b, Hitchen et al. 1991].

#### 4.1.4 Bestimmung der Oberflächenbarriere für Cu(001)

Nach der Auswertung der experimentellen VLEED-Spektren sollen diese jetzt mit gerechneten Spektren verglichen werden. Für diese Rechnungen verwendet [Braun 2011] das in Abschnitt 2.5 vorgestellte Programm zur Berechnung von VLEED-Spektren. In Abb. 4.6 a) und b) ist exemplarisch ein Vergleich zwischen Messung und Rechnung für ein Spektrum, aufgenommen unter  $\Theta = 70^\circ$  und  $\Phi = 45^\circ$  gezeigt, wo die  $(\bar{1}\bar{1})$ -Feinstruktur mit bester Auflösung beobachtet wird.



**Abbildung 4.6:** VLEED-Spektren an Cu(001) unter  $\Theta = 70^\circ$  und  $\Phi = 45^\circ$ , in einem Energiebereich, in dem die  $(\bar{1}\bar{1})$ -Feinstruktur beobachtet wird  
a) gemessen mit  $I_{Em} = 0,5 \mu A$  bei einer Energieauflösung  $\Delta E_{tot} = 356 \text{ meV}$  und  
b) berechnet mit dem RM-Barrierenmodell ohne Berücksichtigung einer experimentellen Auflösung. Für Barrierenparameter siehe Text, die Parameter der Dämpfung nach Glg. 2.34 sind  $a = 0,35$ ,  $b = 0,15$  und  $c = 0,90$  [Braun 2011].  
c) Berechnung des gleichen Spektrums mit transparenter Barriere.

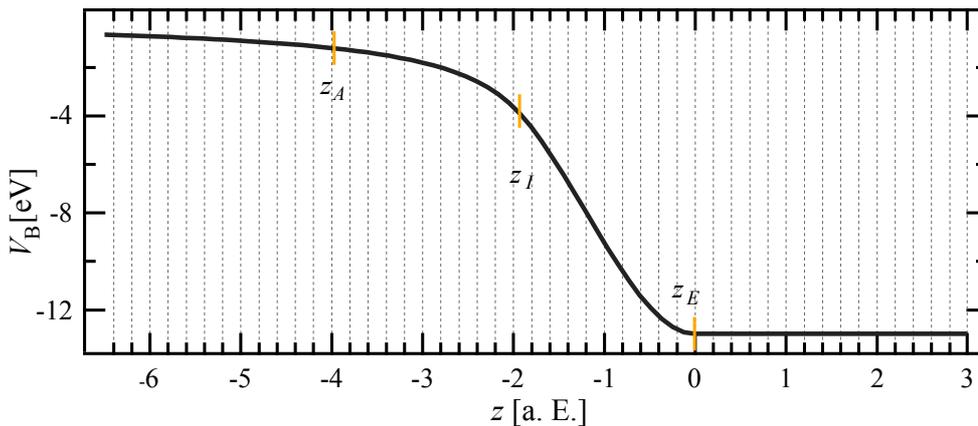
Für die Rechnung wird eine Barriere vom Typ Rundgren und Malmström (RM) mit den Parametern  $z_I, z_A$  und  $z_E$  verwendet (s. Abschnitt 2.1.1). Es zeigt sich, dass damit die  $(\bar{1}\bar{1})$ -Feinstruktur ebenso reproduziert werden kann wie der primäre Braggzustand  $B_1$  mit seiner leicht asymmetrischen Form, auf dessen ansteigender Flanke die Feinstruktur sitzt. Außerdem tritt auch im berechneten Spektrum der zweite primäre Braggzustand  $B_2$  bei etwa  $E = 30 \text{ eV}$  auf.

Wird dagegen bei der Rechnung in Abb. 4.6 c) die Oberflächenbarriere „ausgeschal-

tet“, d. h. Reflexion  $\mathbf{R} = 0$  und Transmission  $\mathbf{T} = \mathbf{E}$  gesetzt, verschwindet die Feinstruktur vollständig, was letztendlich die Verbindung vom Auftreten der Feinstruktur zur Oberflächenbarriere unter Beweis stellt. Form und Intensität (im Vergleich zum Untergrund bei  $E \approx 28$  eV) von  $B_1$  verbleiben davon relativ unbeeinträchtigt. Lediglich die Intensität am unteren Ende der niederenergetischen Flanke scheint zunächst langsamer anzusteigen.

$B_2$  tritt bei abgeschalteter Oberflächenbarriere mit kleinerer Intensität im Vergleich zum Untergrund auf. Die Emergenzenergie der  $(\bar{2}0)$ -Feinstruktur liegt hier bei  $E_{T,(\bar{2}0)}(\Theta = 70^\circ, \Phi = 45^\circ) = 46$  eV bei einer Äquivalenten Auflösung von  $\Delta E_{T,(\bar{2}0)}(\Theta = 70^\circ, \Phi = 45^\circ) = 2,3$  eV und sollte keinen Einfluss auf die Intensitätsänderung des  $B_2$  haben. Somit nimmt die Oberflächenbarriere hier in geringem Maße auch Einfluss auf die Intensität primärer Braggzustände, allerdings nicht auf deren energetische Position, die erhalten bleibt (vgl. Abb. 4.6).

Wie im Fall des in Abb. 4.6 b) dargestellten berechneten VLEED-Spektrums werden Rechnungen für alle Winkel  $\Phi$  der experimentellen Winkelserie aus Abb. 4.3 a) durchgeführt. Mit den dabei verwendeten Barrierenparameter  $z_I = -1,932$  a. E. als Position der Spiegelebene,  $z_A = -3,974$  a. E. und  $z_E = -0,008$  a. E. wird die in Abb. 4.7 dargestellte Oberflächenbarriere modelliert [Braun 2011].



**Abbildung 4.7:** RM-Oberflächenbarriere für Cu(001), bestimmt aus Vergleichen von experimentellen VLEED-Spektren dieser Arbeit mit der hier vorgestellten theoretischen Rechnung. Als Parameter ergeben sich  $z_I = -1,932$  a. E.,  $z_A = -3,974$  a. E. und  $z_E = -0,008$  a. E. [Braun 2011].

Aufgetragen ist das Barrierenpotential, wobei  $V_B = 0$  eV dem Vakuumniveau entspricht, gegen den Abstand zum Mittelpunkt der ersten Atomlage  $z$  in atomaren Einheiten. Bei einer Gitterkonstanten von Cu(001) von  $b = 3,61$  Å endet die letzte Atomlage bei  $z \approx -1,7$  a. E. Die Barrierenparameter entsprechen denen, die [Grass et al. 1993] innerhalb eines Inversen Photoemissionsexperiments an Cu(001) bestimmt haben. Die fehlende Fehlerangabe wird am Ende des Abschnitts diskutiert.

In Abb. 4.8 a) ist nocheinmal das einzelne gemessene VLEED-Spektrum für  $\Theta = 70^\circ$  und  $\Phi = 12,5^\circ$  abgebildet, in dem die  $(\bar{1}\bar{1})$ - und die  $(\bar{2}0)$ -Feinstruktur nebeneinander zu beobachten sind. Es soll mit zwei von [Braun 2011] berechneten VLEED-Spektren verglichen werden, die in Abb. 4.8 b) und c) dargestellt sind.

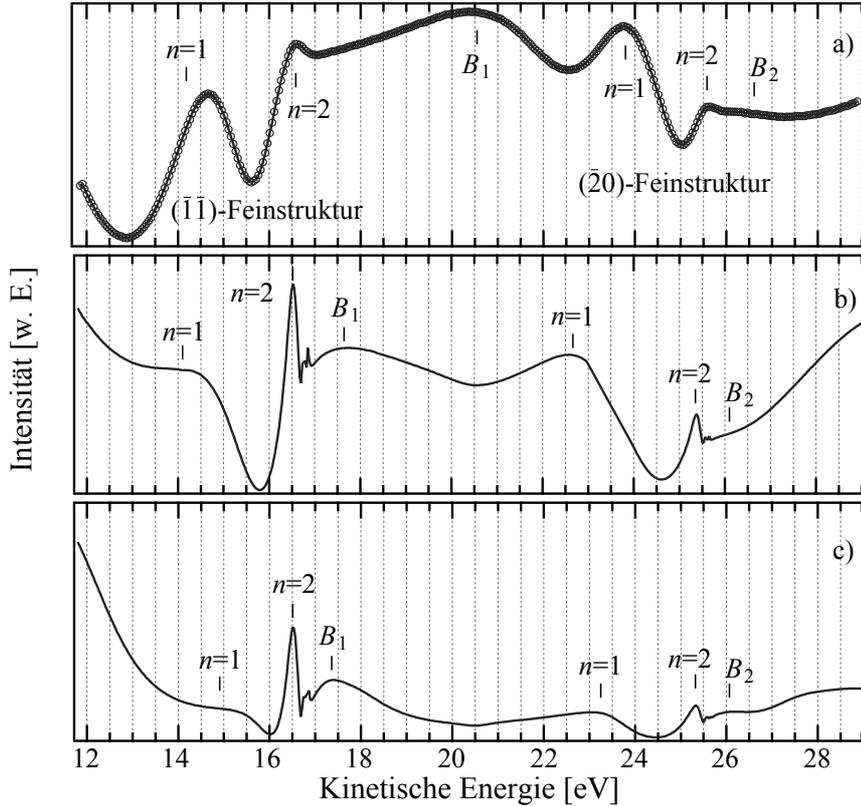
b) entstammt der gleichen Serie wie das bereits gezeigte gerechnete VLEED-Spektrum unter  $\Phi = 45^\circ$  in Abb. 4.6 b). Hier, für  $\Phi = 12,5^\circ$  in Abb. 4.8 b), ist jetzt vergleichsweise wenig Übereinstimmung zwischen gemessenem und gerechnetem Spektrum zu beobachten. In der Rechnung liegt der  $(n = 1)$ -Zustand der  $(\bar{1}\bar{1})$ -Feinstruktur auf einem zu kleinen Energien ansteigenden Untergrund und unterscheidet sich signifikant vom  $(n = 1)$  des gemessenen Spektrums. Während der gerechnete  $(n = 1)$ -Zustand quasi nicht mehr vorhanden ist, tritt der  $(n = 2)$ -Zustand nach wie vor mit einer Intensität auf, die größer ist als die des Braggzustands  $B_1$ . Die energetische Position des  $(n = 2)$ -Zustands stimmt etwa mit der im gemessenen Spektrum überein.

Bei der gerechneten  $(\bar{2}0)$ -Feinstruktur stimmt das Intensitätsverhältnis zwischen  $(n = 1)$ - und  $(n = 2)$ -Zustand besser mit dem gemessenen überein. Allerdings ist bei der gerechneten  $(\bar{2}0)$ -Feinstruktur der  $(n = 1)$ - um etwa 1 eV und der  $(n = 2)$ -Zustand um 0,5 eV zu kleineren Energien verschoben. Für beide Feinstrukturen gibt die Rechnung die Position des Minimums zwischen den beiden Feinstrukturzuständen nicht richtig wieder.

Der Braggzustand  $B_1$  schließlich ist in der Rechnung um etwa 3 eV zu kleineren Energien verschoben. Außerdem findet sich der auf der energetisch höher gelegenen Seite des Braggzustands  $B_2$  stark ansteigende Untergrund nicht in der Messung wieder.

Insgesamt ist zu bemerken, dass zum einen die Intensitäten bzw. die Form der Feinstrukturzustände und deren energetische Position und zum anderen auch der gesamte Untergrund hier durch die Rechnung zu  $\Phi = 12,5^\circ$  deutlich schlechter wiedergegeben werden als es für  $\Phi = 45^\circ$  der Fall ist. Da sich der Imaginärteil des Kristallpotentials, der u. a. die inelastische Dämpfung der Feinstrukturzustände während der Streuung am Kristall bestimmt, als Funktion von  $\Phi$  verändern kann, berechnet [Braun 2011] das VLEED-Spektrum unter  $\Phi = 12,5^\circ$  nocheinmal. Dabei werden jetzt andere Parameter für den Imaginärteil des Potentials gewählt, während die Barrierenparameter unverändert bleiben. Das Ergebnis ist in Abb. 4.8 c) dargestellt. Es ist zu erkennen, dass der  $(n = 1)$ -Zustand beider Feinstrukturen dadurch noch weiter an Intensität im Vergleich zum Untergrund abnimmt und im Zuge dieser Intensitätsabnahme zu größeren Energien wandert. Beide  $(n = 1)$ -Zustände stimmen auch jetzt in ihrer energetischen Position und in ihrer Intensität nicht mit der Messung überein. Auch das Minimum zwischen  $(n = 1)$ - und  $(n = 2)$ -Zustand beider gerechneter Feinstrukturen stimmt weiterhin nicht mit der Messung überein. Für die  $(\bar{1}\bar{1})$ -Feinstruktur wird die Abweichung sogar größer.

Der Einfluss der veränderten Dämpfung auf den  $(n = 2)$ -Zustand ist für beide Feinstrukturen gering. Der Braggzustand  $B_1$  liegt weiterhin bei einer um etwa 3 eV zu geringen Energie.



**Abbildung 4.8:** VLEED-Spektren an Cu(001) unter  $\Theta = 70^\circ$  und  $\Phi = 12,5^\circ$ , in einem Energiebereich, in dem die  $(\bar{1}\bar{1})$ - und die  $(\bar{2}0)$ -Feinstruktur beobachtet werden  
a) gemessen mit  $I_{Em} = 0,5 \mu A$   
b) berechnet wie Abb. 4.6 b) [Braun 2011] und  
c) berechnet unter Beibehaltung der Barrierenparameter aus Abb. 4.6 b), jetzt mit Dämpfungsparametern  $a = 0,10$ ,  $b = 0,05$  und  $c = 1,00$  nach Glg. 2.34 [Braun 2011].

Bislang liegen keine Rechnungen mit dem in Abschnitt 2.5 vorgestellten Programm vor, die unter Variation der Barrierenparameter, ohne Veränderungen des Kristallbeitrags zum VLEED-Prozess, durchgeführt wurden.

## Diskussion

Mit den verwendeten Barrieren- und Dämpfungsparametern lässt sich offensichtlich die  $(\bar{1}\bar{1})$ -Feinstruktur sowie der Untergrund im VLEED-Spektrum im Bereich von  $\Phi = 45^\circ$  zufriedenstellend berechnen. Dort zeigen die Rechnung und die experimentellen Daten gute Übereinstimmung in der energetischen Position und in der Intensität der Feinstrukturzustände und im Auftreten der Braggzustände im Untergrund.

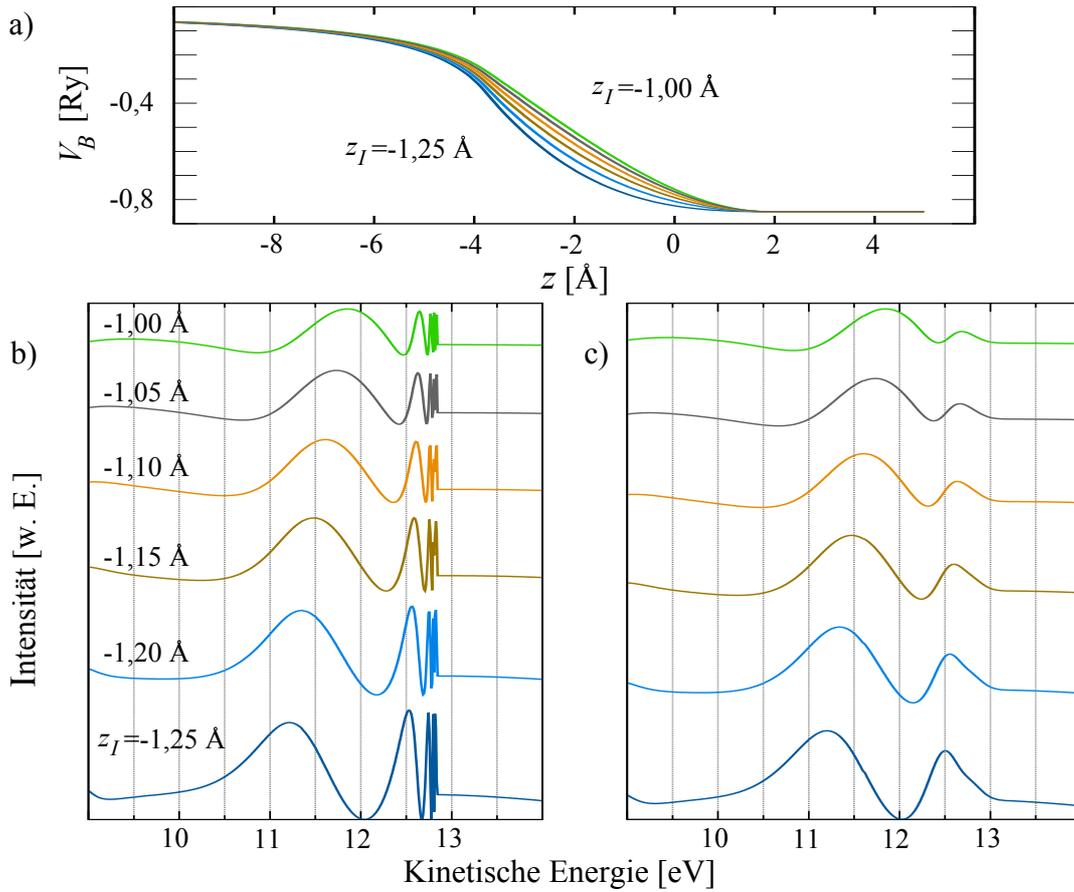
Für andere Azimutwinkel wie  $\Phi = 12,5^\circ$ , unter denen die  $(\bar{1}\bar{1})$ - und  $(\bar{2}0)$ -Feinstruktur nebeneinander auftreten, wird dagegen das gemessene VLEED-Spektrum

durch die bislang vorliegenden Rechnungen nicht zufriedenstellend reproduziert. Die Unterschiede zwischen der Messung und der Rechnung liegen sowohl in der Form und der Position der Feinstruktur als auch im durch die Streuung am Kristall modulierten Untergrund. Das lässt darauf schließen, dass u. U. der Barrieren- und auch der Kristallbeitrag zur Elektronenstreuung noch nicht richtig berechnet wird. Nach [Gaubert et al. 1983] ist es möglich, dass unter solchen fehlerhaften Annahmen VLEED-Spektren nur zu einzelnen Winkeln  $\Theta$  und  $\Phi$  in guter Übereinstimmung mit dem Experiment berechnet werden können. Gerade deshalb wird der Bedarf an einem vollständigen Satz an experimentellen VLEED-Daten zu verschiedenen Einfallswinkeln und Azimutwinkeln formuliert.

Aus experimenteller Sicht bedarf es daher im Rahmen der theoretischen Rechnungen zunächst einer Überprüfung des Kristallbeitrags zur Elektronenstreuung, mit dem Ziel, den Untergrund der VLEED-Spektren für alle  $\Theta$  und  $\Phi$  korrekt zu modellieren. Dabei ist insbesondere der Imaginärteil des Kristallpotentials zu überprüfen, der die inelastische Dämpfung bestimmt und wahrscheinlich für die geringe Intensität des ( $n = 1$ )-Zustands in der Rechnung verantwortlich ist. Unter Ausnutzung des umfangreichen zur Verfügung stehenden experimentellen Datensatzes von VLEED-Spektren unter verschiedenen Einfallswinkeln  $\Theta$  und Azimutwinkeln  $\Phi$  ist dann die Abhängigkeit der verschiedenen Feinstrukturen von den einzelnen Parametern der Oberflächenbarriere zu überprüfen. Weiterhin sollte darauf aufbauend eine Analyse der Genauigkeit erfolgen, mit der die Barriere anhand dieses vorgestellten VLEED-Experiments bestimmt werden kann. Im Rahmen dieser Analyse müsste für die Barrieren- und auch Dämpfungsparameter der Bereich ermittelt werden, in dem das Ergebnis der Theorie Übereinstimmung mit dem gesamten Datensatz des Experiments erzielt. Dabei müsste auch der in Abschnitt 4.1.2 diskutierte Fehler der Energieskala  $\Delta E_S = -0,2 \text{ eV}$  berücksichtigt werden. Der so ermittelte Wertebereich müsste jeweils als Fehler des entsprechenden Parameters angegeben werden. Das in Abb. 4.6 b) dargestellte berechnete Spektrum kann hier als Beispiel für Übereinstimmung mit dem Experiment herangezogen werden. Im Allgemeinen erfolgt eine Bewertung der Übereinstimmung von gerechneten mit gemessenen LEED- $I(V)$ -Kurven mittels des Pendry-R-Faktors.

Die bisher vorliegenden berechneten VLEED-Spektren eignen sich noch nicht dazu, Angaben über die Genauigkeit zu machen, mit der die Bestimmung der Barriere innerhalb dieses Experiments erfolgen kann. Die Genauigkeit, mit der die Barrierenparameter hier von [Braun 2011] angegeben werden, beruht vermutlich eher auf den von [Grass et al. 1993] vorgestellten Daten. Eine für dieses Experiment geltende Fehlerangabe liegt bislang nicht vor.

Zur Abschätzung der Genauigkeit, mit der die Barrierenparameter anhand dieses VLEED-Experiments bestimmt werden können, ist in Abb. 4.9 b) eine für unterschiedliche Oberflächenbarrieren berechnete Kupfer-( $\bar{1}\bar{1}$ )-Feinstruktur dargestellt [Burgbacher 2010]. In Abb. 4.9 a) ist die bei den Rechnungen verwendete RM-Oberflächenbarriere abgebildet. Die unterschiedlichen Formen der Barriere ergeben sich jeweils durch Variation der Position der Spiegelebene von  $z_I = -1,25 \text{ \AA}$  bis  $z_I = -1,00 \text{ \AA}$  in Schritten von  $0,05 \text{ \AA}$ . Dabei gilt  $0,05 \text{ \AA} \cong 0,1 \text{ a. E.}$



**Abbildung 4.9:** Bestimmung vom Einfluss der Position der Spiegelebene  $z_I$  auf die VLEED-Feinstruktur von Cu(001) nach [Burgbacher 2010] zur Abschätzung der Genauigkeit, mit der im VLEED-Experiment die Barrierenparameter bestimmt werden können.

- a) RM-Barrieren für verschiedene  $z_I$ , mit denen in  
 b) die  $(\bar{1}\bar{1})$ -Feinstruktur von Cu(001) berechnet wird. In  
 c) ist der Einfluss der experimentellen Auflösung auf die berechnete Feinstruktur dargestellt. Die berechneten Spektren werden dafür mit der Apparatfunktion mit einer FWHM von etwa  $\Delta E = 300$  meV gefaltet.

Es ist anzumerken, dass diese Rechnungen sich nicht zur Bestimmung der Oberflächenbarriere von Kupfer eignen. Sie sollen ausschließlich die Auswirkung der Form der Oberflächenbarriere auf die  $(\bar{1}\bar{1})$ -Feinstruktur zeigen.

In Abb. 4.9 b) zeigt sich, dass der  $(n = 1)$ -Zustand und das Minimum zwischen  $(n = 1)$ - und  $(n = 2)$ -Zustand am stärksten als Funktion von  $z_I$  variieren (s. dazu auch Abschnitt 2.4). Die Position des  $(n = 1)$ -Zustands ändert sich für  $\Delta z_I = 0,05$  Å um  $\Delta E \approx 200$  meV. Der  $(n = 2)$ -Zustand verschiebt sich dagegen über den gesamten dargestellten Bereich von  $z_I$  nur um etwa 200 meV. Die Intensität der Feinstruktur nimmt ab, wenn die Spiegelebene zum Kristall hin verschoben wird.

Die berechneten Spektren werden in Abb. 4.9 c) mit einer gaußförmigen Apparatfunktion mit einer Halbwertsbreite von etwa 300 meV gefaltet, um den Einfluss der

Auflösung des Experiments auf die Feinstruktur zu demonstrieren. Wie zu erwarten war, werden die Zustände der Ordnung  $n \geq 3$  nicht mehr aufgelöst, sondern erscheinen als Schulter am ( $n = 2$ )-Zustand. Der Einfluss der Auflösung auf die Position des ( $n = 1$ )-Zustands und des ersten Minimums ist dagegen gering. Insbesondere bleibt deren energetische Position für die verschiedenen  $z_I$  erhalten. Hier lässt sich abschätzen, dass in diesem Experiment, anhand des ersten Zustands und des ersten Minimums einer einzelnen Feinstruktur, die Position der Spiegelebene mindestens auf  $\Delta z_I = 0,05 \text{ \AA}$  genau bestimmt werden kann, da die Unterschiede in deren energetischer Position durch das Experiment aufgelöst werden. Da die Bestimmung der Barrierenparameter nicht an einer einzelnen Feinstruktur, sondern an mehreren Feinstrukturen, gemessen unter verschiedenen Einfalls- und Azimutwinkeln, erfolgt, stellt diese Angabe der Genauigkeit von  $\Delta z_I = 0,05 \text{ \AA}$  eine Abschätzung nach oben dar.

#### 4.1.5 Spinaufgelöste VLEED-Messungen an Cu(001)

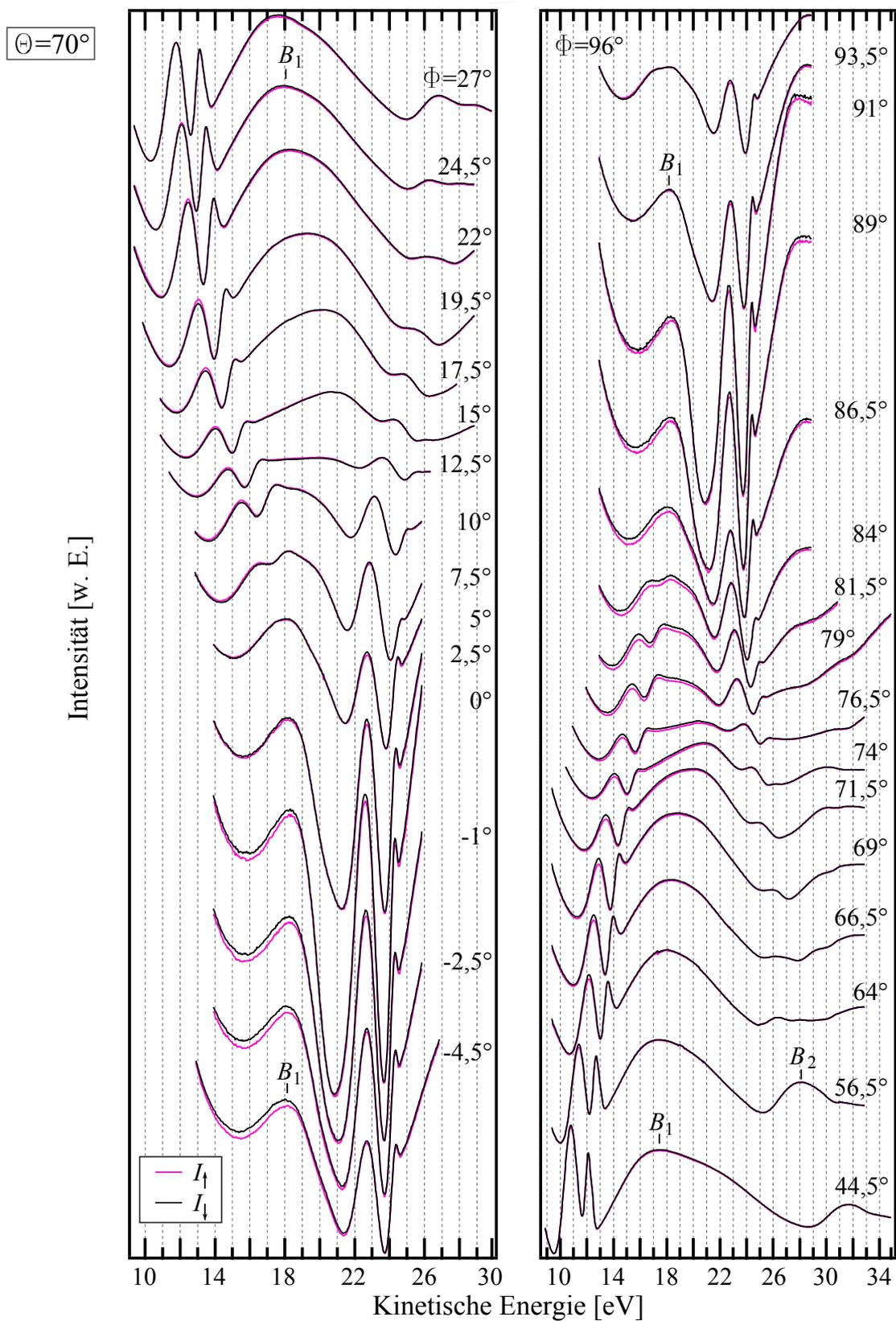
Das hier bis jetzt nicht spinpolarisiert vorgestellte Prinzip des VLEED-Messsystems findet spinpolarisiert bereits Anwendung in der Detektion von spinpolarisierten Elektronen als sogenannter VLEED-Spindetektor. Dafür wird i. A. die spinabhängige Streuung an ferromagnetischen Oberflächen ausgenutzt, die in dieser Arbeit in Abschnitt 4.2 an der Co/Cu(001)-Oberfläche untersucht wird.

In Bezug auf diese Anwendung als Spindetektor ist die in Glg. 3.1 definierte Effizienz  $\epsilon$  von Bedeutung. Diese soll daher zunächst für die Cu(001)-Oberfläche bestimmt und in Abschnitt 4.2.4 mit dem für Co/Cu(001) ermittelten Wert verglichen werden. In Abb. 4.10 ist daher eine VLEED-Winkelserie in  $\Phi$ , spinaufgelöst gemessen an Cu(001) unter  $\Theta = 70^\circ$ , dargestellt. Kupfer ist nicht ferromagnetisch. Deshalb liegt keine Magnetisierungsrichtung der Probe vor, aus deren Orientierung relativ zur Polarisation der Elektronen  $\vec{P}$  eine nach Glg. 3.2 gegebene effektive Polarisation der Elektronen folgt. Die Asymmetriefunktion  $A$  aus Glg. 3.3 vereinfacht sich daher zu

$$A = \frac{I_{\uparrow, \text{Msg}} - I_{\downarrow, \text{Msg}}}{I_{\uparrow, \text{Msg}} + I_{\downarrow, \text{Msg}}} \cdot \frac{1}{P}. \quad (4.2)$$

Die gemessenen Spinströme werden so auf 100% Spinpolarisation der Quelle normiert. ( $\uparrow$ ,  $\downarrow$ ) bezeichnet nach wie vor die Zirkularpolarisation ( $\sigma^+$ ,  $\sigma^-$ ) des anregenden Laserlichts der Elektronenquelle und  $I_{\uparrow}$  bzw.  $I_{\downarrow}$  den Elektronenstrom mit der dadurch vorgegebenen Spinpolarisation in der Streuebene. Allerdings werden  $I_{\uparrow}$  und  $I_{\downarrow}$  hier nicht mehr im Sinne von Strömen von Majoritäts- und Minoritätselektronen definiert.

In den aufgenommenen VLEED-Spektren in Abb. 4.10 tritt eine Spinabhängigkeit des reflektierten Elektronenstroms auf. Um diese besser verfolgen zu können, sind die Messpunkte diesmal nicht eingezeichnet, sondern mit einer durchgezogenen Linie miteinander verbunden dargestellt.



**Abbildung 4.10:** Spinaufgelöst gemessene Winkelserie in  $\Phi$  an Cu(001) unter  $\Theta = 70^\circ$  bei  $I_{Em} = 0,5 \mu A$ . Für Definitionen der Bezeichnungen  $\uparrow$  und  $\downarrow$  siehe Text.

Bei der symmetrisch zu  $\Phi = 0^\circ$  dispergierenden  $(\bar{2}0)$ -Feinstruktur besteht die Spinabhängigkeit des VLEED-Spektrums in einem Intensitätsunterschied der Ströme  $I_\uparrow$  und  $I_\downarrow$ , einer sogenannten Asymmetrie, sowohl im Maximum des  $(n = 1)$ -Zustands als auch im Maximum und darauf folgenden Minimum des  $(n = 2)$ -Zustands. Per Definition der Ströme  $I_{\uparrow,\downarrow}$  ist diese Asymmetrie negativ ( $A < 0$ ). Die Asymmetrie verhält sich symmetrisch zu  $\Phi = 0^\circ$  und verschwindet für  $\Phi \approx \pm 5^\circ$ .

Im weiteren Verlauf der Winkelserie für  $\Phi \geq 7,5^\circ$  zeigt der  $(n = 1)$ -Zustand der  $(\bar{1}\bar{1})$ -Feinstruktur eine Asymmetrie mit umgekehrtem Vorzeichen ( $A > 0$ ), die für  $\Phi \geq 27^\circ$  auf Null zurückgeht. Unter  $\Phi \approx 45^\circ$  wird im gesamten VLEED-Spektrum keine Asymmetrie beobachtet. Für etwa  $\Phi \geq 56^\circ$  tritt erneut eine Asymmetrie in der  $(\bar{1}\bar{1})$ -Feinstruktur auf. Allerdings ist jetzt  $A < 0$ . Es besteht keine Symmetrie bzgl.  $\Phi = 45^\circ$ , weder in Bezug auf das Vorzeichen der Asymmetrie noch auf den Winkel relativ zu  $\Phi = 45^\circ$ , unter dem sie auftritt.

Symmetrisch zu  $\Phi = 90^\circ$  dispergiert die  $(0\bar{2})$ -Feinstruktur, die äquivalent zur  $(\bar{2}0)$ -Feinstruktur unter  $\Phi = 0^\circ$  ist (vergleiche Abb. 2.11 und 3.13). Dementsprechend verhalten sich auch die Asymmetrien dieser Feinstrukturen äquivalent.  $A$  verhält sich symmetrisch zu  $\Phi = 90^\circ$ , ist negativ für  $86,5^\circ \leq \Phi \leq 96^\circ$  für das Maximum des  $(n = 1)$ - bzw. das Maximum und das darauf folgende Minimum des  $(n = 2)$ -Zustands und sonst Null.

Für den Braggzustand  $B_1$  tritt jeweils für  $\Phi \leq 2,5^\circ$  bzw.  $\Phi \leq 91^\circ$  eine negative Asymmetrie auf. Die Asymmetrie des  $B_1$  zeigt dementsprechend keine Symmetrie bzgl.  $\Phi = 0^\circ$ ,  $\Phi = 45^\circ$  oder  $\Phi = 90^\circ$ , sondern verhält sich vielmehr invariant bei Rotation der Probe um Azimutwinkel von  $\Delta\Phi = 90^\circ$ . Die Asymmetrie besteht nicht für den gesamten Zustand  $B_1$ , sondern tritt an dessen linker Flanke bis etwa zum Maximum auf.

## Diskussion

Die hier als Funktion der Energie und des Azimutwinkels untersuchte Asymmetrie verhält sich für die  $(\bar{2}0)$ - und die  $(0\bar{2})$ -Feinstruktur äquivalent. Aufgrund der Symmetrie bzgl.  $\Phi = 0^\circ$  bzw.  $\Phi = 90^\circ$  entspricht dies auch einer Invarianz der Asymmetrie bei Rotation um  $\Delta\Phi = 90^\circ$ . Diese Invarianz der Asymmetrie bzgl. der Rotation der Probe besteht auch für den Braggzustand  $B_1$ . Ein symmetrischer Verlauf der Asymmetrie um  $\Phi = 0^\circ$  bzw.  $\Phi = 90^\circ$  wird nicht beobachtet.

Es ist nicht möglich, dieses Verhalten für die bei der  $(\bar{1}\bar{1})$ -Feinstruktur auftretende Asymmetrie zu überprüfen, da der Probenmanipulator nur Variation des Azimutwinkels in einem Intervall von  $\Delta\Phi = 100^\circ$  zulässt. Bei einem Vergleich der Winkel  $\Phi = 5^\circ$  bzw.  $\Phi = 7,5^\circ$  mit  $\Phi = 96^\circ$  scheint aber neben der negativen Asymmetrie des  $(n = 1)_{(\bar{2}0),(0\bar{2})}$  in beiden Fällen auch der Ansatz einer positiven Asymmetrie an der linken Flanke des Braggzustands  $B_1$  erkennbar zu sein, an der langsam der  $(n = 1)_{(\bar{1}\bar{1})}$  hervortritt. Das spricht alles in allem für eine Invarianz aller auftretenden Asymmetrien unter Variation des Azimutwinkels von  $\Delta\Phi = 90^\circ$ .

Bei der Asymmetrie des  $(n = 1)_{(\bar{1}\bar{1})}$  im Winkelbereich von  $\Phi = [75^\circ, 84^\circ]$  ist im Übrigen nicht eindeutig feststellbar, ob es sich tatsächlich um eine negative Asymmetrie des Feinstrukturzustands handelt oder ob hier die Asymmetrie des Braggzustands  $B_1$  als Untergrund dafür verantwortlich ist. Die dort beim  $(n = 2)_{(\bar{1}\bar{1})}$  auftretende

Asymmetrie ist relativ eindeutig auf den Untergrund zurückzuführen, da ihr Betrag mit der Asymmetrie des Braggzustands übereinstimmt.

Mit der Winkelserie in Abb. 4.10 ist jetzt zusätzlich der experimentelle Nachweis geliefert, dass neben der  $(\bar{2}0)$ -Feinstruktur, die symmetrisch zu  $\Phi = 0^\circ$  dispergiert, und der  $(\bar{1}\bar{1})$ -Feinstruktur, die symmetrisch zu  $\Phi = 45^\circ$  dispergiert, bei  $\Phi = 90^\circ$  die  $(0\bar{2})$ -Feinstruktur auftritt, die äquivalent zur  $(\bar{2}0)$ -Feinstruktur ist. Die Feinstrukturen dispergieren also symmetrisch um Hochsymmetrierichtungen wie  $[10]$  ( $\Phi = 0^\circ$ ),  $[11]$  ( $\Phi = 45^\circ$ ) und  $[01]$  ( $\Phi = 90^\circ$ ). Eine Rotationsinvarianz der VLEED-Spektren besteht aber unter  $\Delta\Phi = 90^\circ$  bzgl. der Form und Energieposition der Feinstrukturen sowie auch der Asymmetrie.

Bisher liegen keine spinaufgelösten theoretischen Rechnungen an Cu(001) vor, mit denen sich die beobachtete Spinasymmetrie in den VLEED-Spektren an Cu(001) interpretieren ließe.

Da Kupfer nicht ferromagnetisch ist, ist die Austauschwechselwirkung als Ursache auszuschließen. Die Geometrie des Experiments ist aber darauf ausgelegt, die Spinabhängigkeit der Reflexion von Elektronen an ferromagnetischen Oberflächen messen zu können, die aufgrund der Austauschwechselwirkung auftritt. Daher liegt die Polarisation der Elektronen in der Streuebene, parallel zur Magnetisierungsrichtung der Probe.

Eine andere mögliche Ursache für die Spinabhängigkeit der Reflexion ist die Spin-Bahn-Wechselwirkung, d. h. die Kopplung zwischen orbitalem Drehimpuls und dem Spin der Elektronen. Die Oberflächenbarriere und das Bildpotential z. B., die einen Potentialgradienten senkrecht zur Oberfläche darstellen, entsprechen einem elektrischen Feld, das im Ruhesystem der Elektronen einem Magnetfeld senkrecht zur Streuebene der Elektronen entspricht. Daraus resultiert der sogenannte Rashba-Beitrag zur Spin-Bahn-Kopplung für Elektronen, deren Polarisation eine Komponente senkrecht zur Oberfläche besitzt. Die Elektronen in diesem Experiment sind dagegen auf einen Potentialgradienten in der Kristalloberfläche empfindlich, der z. B. an geordneten Oberflächenlegierungen auf Ag(111) experimentell und theoretisch nachgewiesen wurde [Premper et al. 2007]. Damit würde sich die hier beobachtete Spinabhängigkeit der Elektronenstreuung an der nicht ferromagnetischen Kupferoberfläche erklären lassen.

[Bauer et al. 1980] messen für einen unpolarisierten primären Elektronenstrahl u. a. die longitudinale Komponente der Spinpolarisation der an einer fcc-Pt(111)-Oberfläche spekulär reflektierten Elektronen als Funktion des Azimutwinkels  $\Phi$  bei einer festen Elektronenenergie von  $E = 60$  eV. Die Komponente der Polarisation  $P_k$  des spekulären Strahls in der Streuebene beträgt hier bis zu 30%, und die  $P_k(\Phi)$ -Rotationsdiagramme spiegeln die dreizählige Symmetrie der Pt-Oberfläche wider. Außerdem wird beobachtet, dass die Polarisation in der Streuebene auf Null zurückgeht, wenn die Streuebene mit einer Spiegelebene des Kristalls zusammenfällt, was im Abstand  $\Delta\Phi = 60^\circ$  der Fall ist.

Die physikalische Ursache für die beobachtete Polarisation des spekulären Elek-

tronenstrahls ist die Vielfachstreuung der Elektronen an den Ionenrümpfen des Kristalls [Feder 1977].

Vergleichbar mit dem Experiment von [Bauer et al. 1980] verhält sich die in diesem Experiment an Cu(001) beobachtete Asymmetrie in den VLEED-Spektren entsprechend einer vierzähligen Rotationssymmetrie invariant unter Drehung um  $\Delta\Phi = 90^\circ$ . Außerdem wird unter  $\Phi = 45^\circ$ , was der [100]-Richtung entspricht, wenn die Streuebene eine Spiegelebene ist, auch im VLEED-Spektrum keine Asymmetrie beobachtet. Allerdings tritt unter  $\Phi = 0^\circ$  bzw.  $\Phi = 90^\circ$  eine von Null verschiedene Asymmetrie sowohl im Braggzustand als auch in der Feinstruktur auf, obwohl auch in diesem Fall die Streuebene eine Spiegelebene ist. Als mögliche Erklärung für diese Diskrepanz ist zu überprüfen, ob die (110)-Ebene auch bei voll relativistischer Betrachtung des Streuproblems ihre Symmetrieeigenschaften in Bezug auf den Polarisationsvektor der Elektronen behält. Eine andere mögliche, apparative Erklärung wäre, dass die Drehachse des Azimutwinkels gerade für  $\Phi \approx 0^\circ$  und  $\Phi \approx 90^\circ$  von der Oberflächennormalen abweicht. Die unter diesen Winkeln gemessene Asymmetrie würde dann von einer Abweichung des apparativen Aufbaus von der idealen Geometrie des Experiments stammen. Allerdings wurde im Vorfeld der Messungen die maximale Verkippung der Probe zu  $< 0,5^\circ$  bestimmt, während die Drehachse durch den Probenmanipulator fixiert ist.

Bezüglich der zwei möglichen Ursachen für die Spinabhängigkeit der spekulär reflektierten Intensität bei der hier vorliegenden Geometrie des experimentellen Aufbaus ist zu sagen, dass ein Potentialgradient in der Oberfläche nur eine minimale Modifikation der beobachteten Asymmetrie im Vergleich zum Effekt der Vielfachstreuung bewirken würde [Feder 2011].

### Asymmetrie und Effizienz

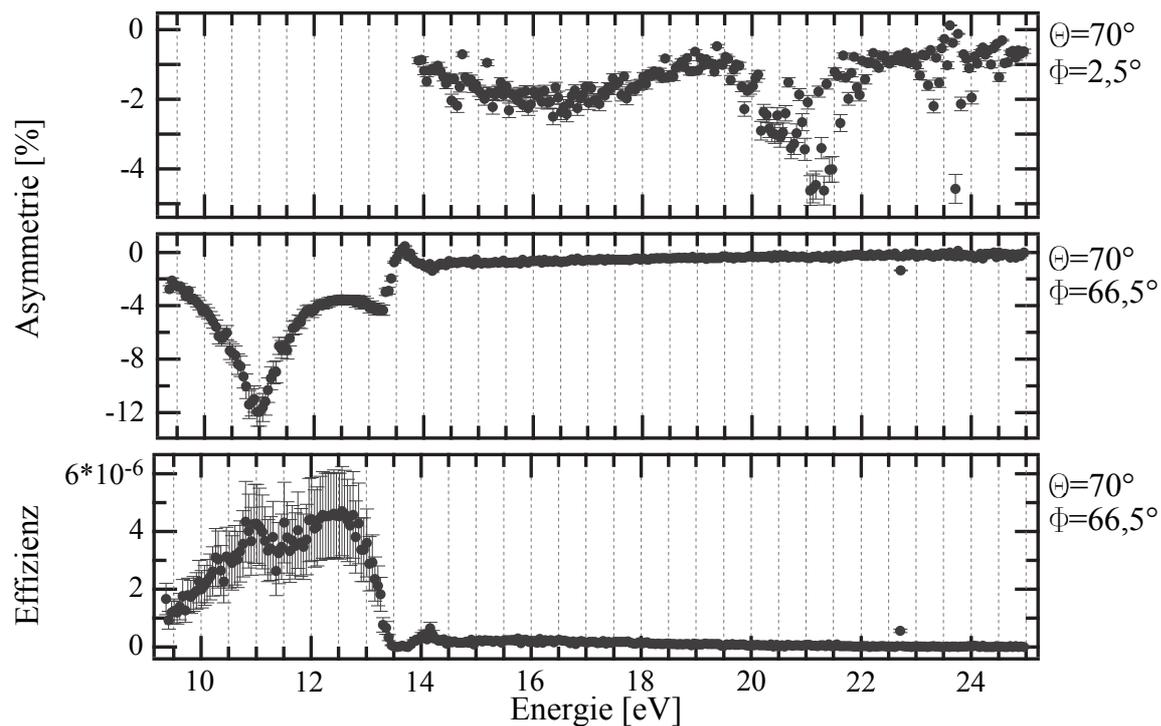
In Abb. 4.11 sind beispielhaft die Asymmetriefunktionen  $A$  unter  $\Phi = -2,5^\circ$  zur genaueren Untersuchung der Asymmetrie des Braggzustands  $B_1$  und der  $(\bar{2}0)$ -Feinstruktur sowie unter  $\Phi = 66,5^\circ$  zur Untersuchung der Asymmetrie der  $(\bar{1}\bar{1})$ -Feinstruktur gezeigt. Die maximale Asymmetrie tritt unter  $\Phi = 66,5^\circ$  bei  $E_{\text{kin}} = 11,0 \text{ eV}$  im Minimum des  $(n = 1)_{(\bar{1}\bar{1})}$ -Zustands auf und beträgt

$$A_{\text{max}}(\Theta = 70^\circ, \Phi = 66,5^\circ, E_{\text{kin}} = 11,0 \text{ eV}) = (12 \pm 1)\%.$$

Die Asymmetrie unter  $\Phi = -2,5^\circ$  ist mit maximal 5% um mehr als die Hälfte geringer.

Die absolut maximale Effizienz wird für  $\Phi = 66,5^\circ$  bestimmt. Dafür spielt nach Glg. 3.1 neben der Asymmetrie auch die an der Kupferoberfläche reflektierte Intensität eine Rolle. Diese ist in dem Winkelbereich  $\Phi$ , in dem die  $(\bar{1}\bar{1})$ -Feinstruktur gut aufgelöst wird, maximal. Bei der in Abb. 4.11 als Funktion der kinetischen Energie aufgetragenen Effizienz  $\epsilon$  wird das Maximum bei  $E_{\text{kin}} = 12,5 \text{ eV}$ , d. h. im Maximum des  $(n = 1)_{(\bar{1}\bar{1})}$ -Zustands angenommen und beträgt

$$\epsilon_{\text{max}}(\Theta = 70^\circ, \Phi = 66,5^\circ, E_{\text{kin}} = 12,5 \text{ eV}) = (4,5 \pm 1,5) \cdot 10^{-6}.$$



**Abbildung 4.11:** Asymmetrie von ausgewählten VLEED-Spektren an der Cu(001)-Oberfläche und die daraus ermittelte Effizienz des VLEED-Experiments bzgl. der spinabhängigen Streuung an dieser Oberfläche.

In Abschnitt 4.2.4 wird die hier erhaltene Effizienz  $\epsilon_{\max}$  mit dem für die Co/Cu(001)-Oberfläche erhaltenen Wert verglichen und im Rahmen der Literatur eingeordnet. Dort werden außerdem nähere Angaben zur Berechnung der Fehler von Asymmetrie und Effizienz gemacht.

## 4.2 VLEED-Feinstruktur von Co/Cu(001)

Ziel der VLEED-Messungen an ferromagnetischem fcc-Co/Cu(001) ist zunächst, auftretende Feinstrukturen zu identifizieren und dann deren Verhalten im Vergleich zur an der Cu(001)-Oberfläche beobachteten Feinstruktur zu diskutieren. Dazu werden zusätzlich erste Berechnungen von VLEED-Spektren an Co/Cu(001) herangezogen. Anhand der spinaufgelösten Messungen soll die Spinabhängigkeit der Feinstruktur, aber auch des Untergrunds im VLEED-Spektrum untersucht werden. Aus den auftretenden Asymmetrien wird die sich für dieses Experiment ergebende Effizienz der Co/Cu(001)-Oberfläche für die spinabhängige Streuung sehr niederenergetischer Elektronen bestimmt.

### 4.2.1 Einzelspektren unter $\Theta = 70^\circ$ , $\Theta = 60^\circ$ und $\Theta = 45^\circ$

In Abb. 4.12 sind spinintegrierte und spinaufgelöste VLEED-Spektren, aufgenommen an Co/Cu(001) unter verschiedenen Einfallswinkeln  $\Theta$  ( $70^\circ$ ,  $60^\circ$  und  $45^\circ$ ) bei vergleichbaren Azimutwinkeln  $\Phi$  ( $37^\circ$ ,  $37^\circ$  und  $36^\circ$ ), abgebildet. In allen drei Fällen tritt eine Struktur auf, die mit steigendem Einfallswinkel  $\Theta$  zu kleineren Energien dispergiert. Da die an der Cu-Oberfläche beobachtete Feinstruktur auch dieses Verhalten in Abhängigkeit von  $\Theta$  zeigt, wird angenommen, dass es sich bei der an der Co-Oberfläche auftretenden Struktur auch um eine Feinstruktur handelt. Ihre Eigenschaften werden daher im Folgenden genauer untersucht.

Die Feinstruktur besteht im spinintegrierten Spektrum jeweils aus einem ersten Zustand, der in Abb. 4.12 mit  $(n = 1)_{\text{int}}$  gekennzeichnet ist, und für  $\Theta = 70^\circ$  und  $45^\circ$  noch aus einem weiteren Zustand  $(n = 2)_{\text{int}}$ . Im Unterschied zur Kupferoberfläche tritt die Co-Feinstruktur mit sehr viel geringerer Intensität relativ zum Untergrund auf. Außerdem liegt sie nicht auf der ansteigenden Flanke eines Braggzustands, sondern auf einem sehr stark abfallenden Untergrund. Auf der energetisch höher gelegenen Seite der Feinstruktur wird unter allen Einfallswinkeln ein Braggzustand von mehreren Elektronenvolt Halbwertsbreite (gekennzeichnet mit  $B_1$ ) beobachtet, der im Vergleich zum  $B_1$  an Cu(001) mit kleinerer Intensität auftritt.

Der  $(n = 1)_{\text{int}}$ -Zustand tritt für  $\Theta = 70^\circ$  und  $45^\circ$  mit kleinerer Intensität auf als für  $\Theta = 60^\circ$ . Dagegen wird bei  $\Theta = 60^\circ$  kein  $(n = 2)_{\text{int}}$  beobachtet, der bei  $70^\circ$  und  $45^\circ$  auf den ersten folgt.

Analog zur Vorgehensweise bei der Auswertung der Cu-Spektren werden die spinintegrierten Spektren gefittet, um zunächst die Positionen der Feinstrukturzustände zu bestimmen. Im Anschluss werden dann die energetischen Abstände der einzelnen Zustände untereinander bzw. zur zugehörigen Emergenzenergie diskutiert.

Für den Fit der VLEED-Spektren wird als Untergrund wieder der auch im Spektrum gekennzeichnete Braggzustand  $B_1$  und der bei niedrigen Energien ansteigende Untergrund als Summe von Gaußfunktionen angenommen und darauf die zwei bzw. der eine Feinstrukturzustand ebenfalls als Gaußfunktion addiert.

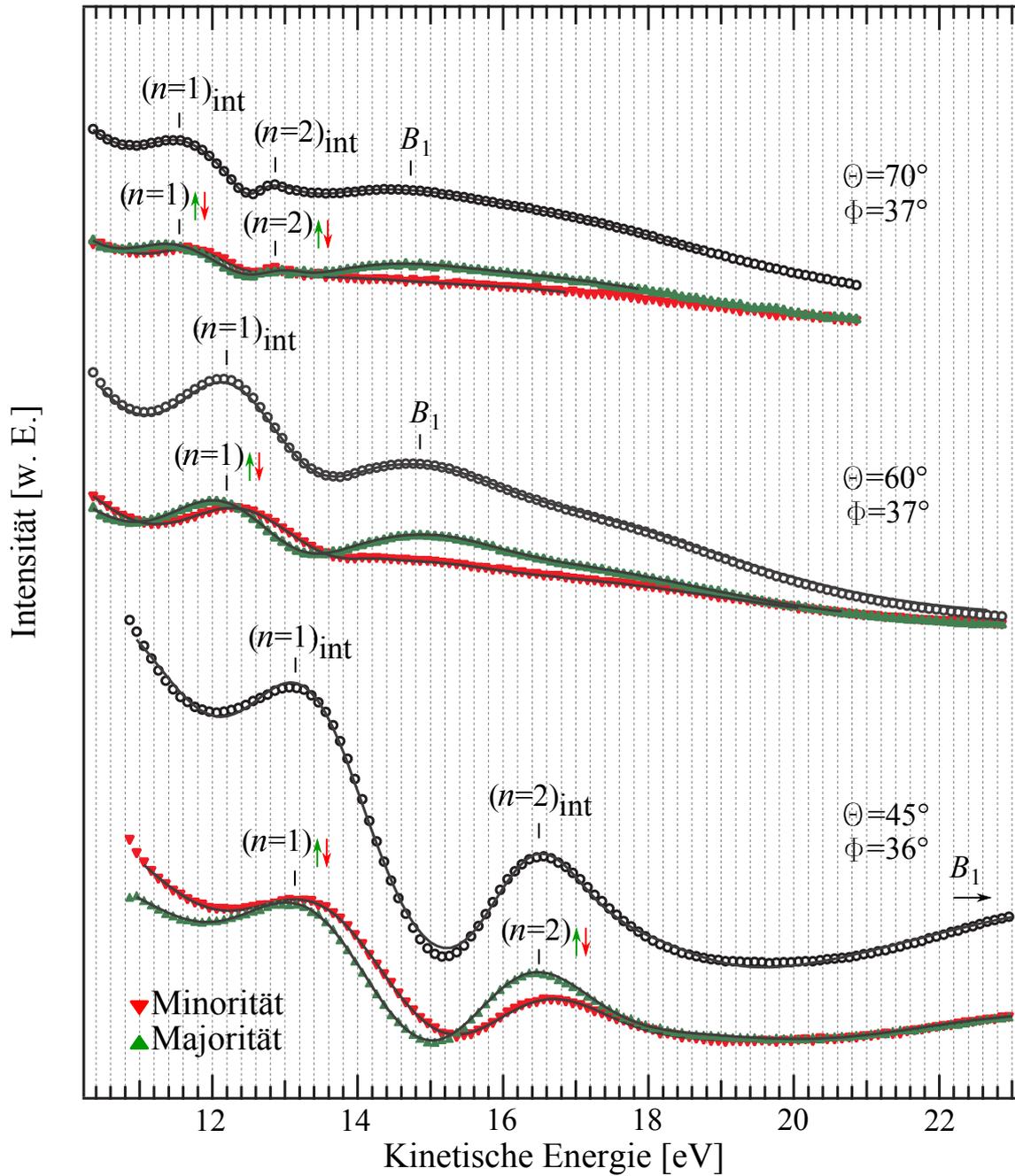


Abbildung 4.12: Ausgewählte VLEED-Spektren an Co/Cu(001) jeweils spinintegriert und spinaufgelöst dargestellt. Für  $\Theta = 70^\circ$  und  $\Theta = 45^\circ$  ist  $I_{Em} = 0,65 \mu A$ , für  $\Theta = 60^\circ$  ist  $I_{Em} = 1,0 \mu A$ . Für Bezeichnungen siehe Text.

Das Ergebnis ist in Abb. 4.12 jeweils als durchgezogene Linie in den spinintegrierten Spektren eingezeichnet und die energetischen Positionen der Feinstrukturzustände sind in Tab. 4.3 aufgelistet. Die angegebenen Fehler sind in diesem Fall etwa eine Größenordnung größer als beim Kupfer. Das liegt zum einen daran, dass die Feinstruktur wegen ihrer geringen Intensität relativ zum Untergrund deutlich schlechter anzufitten ist.

$\Theta [^\circ]$	$E_{(n=1)\text{int}} [\text{eV}]$	$E_{(n=2)\text{int}} [\text{eV}]$	$E_T [\text{eV}]$
70	$11,60 \pm 0,20$	$12,84 \pm 0,20$	12,43
60	$12,26 \pm 0,20$	-	13,39
45	$13,43 \pm 0,20$	$16,51 \pm 0,20$	16,04

**Tabelle 4.3:** Energetische Positionen  $E_{(n=i)\text{int}}$  der Feinstrukturzustände von Co/Cu(001) aus Abb. 4.12 bei den angegebenen Winkeln  $\Theta$ . Zusätzlich ist die als Funktion von  $\Theta$ ,  $\Phi$  und der Gitterkonstante von Cu(001) berechnete Emergenzenergie  $E_T$  der  $(\bar{1}\bar{1})$ -Feinstruktur angegeben.

Ein weiterer Grund dafür zeigt sich beim Betrachten des jeweils zugehörigen spinaufgelösten<sup>(5)</sup> VLEED-Spektrums, das unter dem spinintegrierten in Abb. 4.12 dargestellt ist. Die beiden Spektren für Majoritäts- und Minoritätsspin sind so gegeneinander verschoben, dass die Feinstrukturzustände in den beiden Spinkanälen  $(n=1)_{\uparrow\downarrow}$  bzw.  $(n=2)_{\uparrow\downarrow}$  jeweils bei unterschiedlichen Energien liegen. Dieser energetische Unterschied wird als Spinaufspaltung bezeichnet. Da die Feinstrukturzustände im spinintegrierten Spektrum  $(n=1)_{\text{int}}$  bzw.  $(n=2)_{\text{int}}$  somit eigentlich aus zwei Zuständen bestehen, die bei unterschiedlichen Energien liegen, ist der Fit mit nur einem Zustand per se nicht optimal, was den relativ großen Fehler rechtfertigt.

Die spinaufgelösten Spektren werden wie die spinintegrierten gefittet. Das Ergebnis ist in Abb. 4.12 wieder jeweils als durchgezogene Linie eingezeichnet und die energetischen Positionen der Feinstrukturzustände  $(n=1)_{\uparrow\downarrow}$  bzw.  $(n=2)_{\uparrow\downarrow}$  sind in Tab. 4.4 angegeben. Die Fehler ergeben sich wie beim Kupfer durch Variation der Parameter des Untergrunds. Die Spinaufspaltung der Zustände  $\Delta E_{n=1} = E_{(n=1)\downarrow} - E_{(n=1)\uparrow}$  bzw.  $\Delta E_{n=2} = E_{(n=2)\downarrow} - E_{(n=2)\uparrow}$  ist ebenfalls in Tab. 4.4 angegeben.

Für den  $(n=1)_{\uparrow\downarrow}$ -Zustand beträgt die Aufspaltung für  $\Theta = 70^\circ$  und  $60^\circ$  etwa 200 meV. Für  $\Theta = 45^\circ$  ist die Aufspaltung des  $(n=1)_{\uparrow\downarrow}$  mit 95 meV nur etwa halb so groß.

Der  $(n=2)_{\uparrow\downarrow}$ -Zustand ist für  $\Theta = 70^\circ$  um nur etwa 40 meV aufgespalten. Das entspricht einem Fünftel der Aufspaltung des  $(n=1)_{\uparrow\downarrow}$ . Für  $\Theta = 45^\circ$  dagegen ist die Aufspaltung des  $(n=2)_{\uparrow\downarrow}$  ähnlich groß wie die des  $(n=1)_{\uparrow\downarrow}$ .

<sup>(5)</sup> Alle spinaufgelösten Spektren werden nach Glg. 3.4 auf 100%ige Spinpolarisation des Elektronenstrahls und unter Berücksichtigung der Orientierung des Polarisationsvektors  $\vec{P}$  der Elektronen relativ zur Magnetisierung  $\vec{M}$  der Probe entsprechend  $\Theta$  und  $\Phi$  normiert.

$\Theta [^\circ]$	$E_{(n=1)\uparrow}$ [eV]	$E_{(n=1)\downarrow}$ [eV]	$E_{(n=2)\uparrow}$ [eV]	$E_{(n=2)\downarrow}$ [eV]
70	$11,63 \pm 0,07$	$11,83 \pm 0,01$	$12,78 \pm 0,02$	$12,82 \pm 0,02$
60	$12,15 \pm 0,02$	$12,36 \pm 0,03$	-	-
45	$13,42 \pm 0,07$	$13,52 \pm 0,03$	$16,46 \pm 0,05$	$16,56 \pm 0,05$
$\Theta [^\circ]$	$\Delta E_{n=1}$		$\Delta E_{n=2}$	
70	$0,19 \pm 0,08$		$0,04 \pm 0,04$	
60	$0,21 \pm 0,05$		-	
45	$0,10 \pm 0,10$		$0,10 \pm 0,10$	

**Tabelle 4.4:** Energetische Positionen  $E_{(n=i)\uparrow\downarrow}$  der Feinstrukturzustände von Co/Cu(001) aus Abb. 4.12 bei den angegebenen Winkeln  $\Theta$  sowie deren Spinaufspaltung  $\Delta E_{n=i}$ .

Der markierte Braggzustand  $B_1$  zeigt keine Spinaufspaltung. Es tritt aber ein deutlicher Intensitätsunterschied in den Spinkanälen, die sogenannte Spinasymmetrie, auf. Diese wird in Abschnitt 4.2.4 zusammen mit der Spinasymmetrie der Feinstruktur untersucht.

Vergleicht man jetzt die energetischen Abstände der beiden Feinstrukturzustände einer Serie  $\Delta E_{n=1,2}(\Theta) = E_{(n=2)\text{int},\uparrow\downarrow}(\Theta) - E_{(n=1)\text{int},\uparrow\downarrow}(\Theta)$ , so beträgt

$$\Delta E_{n=1,2}(\Theta = 70^\circ) \cong 1 \text{ eV} \quad \text{und} \quad \Delta E_{n=1,2}(\Theta = 45^\circ) \cong 3 \text{ eV} \quad (4.3)$$

jeweils sowohl für das spinintegrierte als auch das spinaufgelöste Spektrum.

Die Abstände des  $(n = 1)_{\text{int}}$  zur Emergenzenergie  $E_T$  (s. auch Tab. 4.3) betragen

$$\begin{aligned} \Delta E_{(n=1)\text{int},E_T}(\Theta = 70^\circ) &= (0,8 \pm 0,2) \text{ eV} \\ \Delta E_{(n=1)\text{int},E_T}(\Theta = 60^\circ) &= (1,1 \pm 0,2) \text{ eV} \\ \Delta E_{(n=1)\text{int},E_T}(\Theta = 45^\circ) &= (2,6 \pm 0,2) \text{ eV}. \end{aligned} \quad (4.4)$$

Für die spinaufgelösten Spektren liegen die Abstände für den Majoritäts- bzw. den Minoritätszustand je nach Aufspaltung über bzw. unter dem angegebenen Wert. Die angegebene Emergenzenergie ist mit dem schon für die Kupferoberfläche angewandten Verfahren nach Abschnitt 2.4 mit der Gitterkonstante der Cu(001)-Oberfläche  $b_{\text{Cu}(001)} = 3,61 \text{ \AA}$  berechnet worden.

Es zeigt sich, dass die Abstände des  $(n = 1)_{\text{int},\uparrow\downarrow}$  zum  $(n = 2)_{\text{int},\uparrow\downarrow}$  sowie zur Emergenzenergie  $E_T$  zunehmen, wenn  $\Theta$  ausgehend von  $70^\circ$  verringert wird. Dabei stimmen aber die Werte für  $\Theta = 70^\circ$  und  $60^\circ$  im Rahmen ihres Fehlers überein. Die Feinstruktur des  $\Theta = 45^\circ$  Spektrums weicht sowohl im Abstand der Feinstrukturzustände  $(n = 1, 2)$  untereinander als auch im Abstand des  $(n = 1)_{\text{int},\uparrow\downarrow}$  zur Emergenzenergie deutlich vom Verhalten bei  $\Theta = 70^\circ$  und  $60^\circ$  ab.

Im Vergleich zu Cu(001) liegt der Abstand des  $(n = 1)_{\text{int},\uparrow\downarrow}$ -Feinstrukturzustands zur Emergenzenergie für  $\Theta = 70^\circ$  und  $60^\circ$  etwas unter dem Wert von  $\Delta E_{n=1,E_T}^{\text{Cu}}(\Theta = 70^\circ, \Phi = 45^\circ) = (1,40 \pm 0,02) \text{ eV}$  und der für  $\Theta = 45^\circ$  deutlich darüber.

Die  $(n = 2)_{\text{int},\uparrow\downarrow}$ -Feinstrukturzustände liegen für  $\Theta = 70^\circ$  um  $(0,37 \pm 0,02) \text{ eV}$  und

$\Theta = 45^\circ$  um  $(0, 50 \pm 0, 02)$ eV oberhalb der angegebenen Emergenzenergie. Das wird im Rahmen der aufgenommenen Winkelserien diskutiert.

Im Folgenden werden diese Winkelserien in  $\Phi$  unter den hier schon ausgewählten Einfallswinkeln  $\Theta = 70^\circ, 60^\circ, 45^\circ$  betrachtet, um das Verhalten der Feinstrukturzustände weiter zu untersuchen.

### 4.2.2 Winkelserien in $\Phi$ für $\Theta = 70^\circ, 60^\circ, 45^\circ$

Durch Betrachten der aufgenommenen Winkelserien in  $\Phi$  unter verschiedenen Einfallswinkeln  $\Theta$  soll überprüft werden, ob die in den Einzelspektren identifizierte Feinstruktur als Funktion von  $\Phi$  analog zur Kupfer-Serie dispergiert. Außerdem soll festgestellt werden, ob auch beim Co/Cu(001) noch eine zweite Feinstruktur auftritt.

Bei allen folgenden Winkelserien sind die einzelnen Spektren auf das Minimum auf der energetisch höher gelegenen Seite des ersten Feinstrukturzustands normiert, um Intensitäten vergleichen zu können. Außerdem ist in den spinintegrierten Serien jeweils die unter Verwendung der Gitterkonstante von Cu(001) berechnete Emergenzenergie und deren parabelförmiger Verlauf in rot eingezeichnet.

Die aus den Winkelserien ermittelten energetischen Positionen der Feinstrukturzustände werden wieder zusammen mit der Emergenzenergie in  $E(\Phi)$ -Diagramme eingezeichnet. Da die Gitterfehlpassung von Kobalt auf Cu(001) 2% beträgt [Ashcroft 1976], wird in diesen Diagrammen zum Vergleich auch die Emergenzenergie angegeben, die mit der Gitterkonstante  $b_{\text{fcc-Co}} = 3,55 \text{ \AA}$  berechnet wurde.

#### Winkelserie unter $\Theta = 70^\circ$

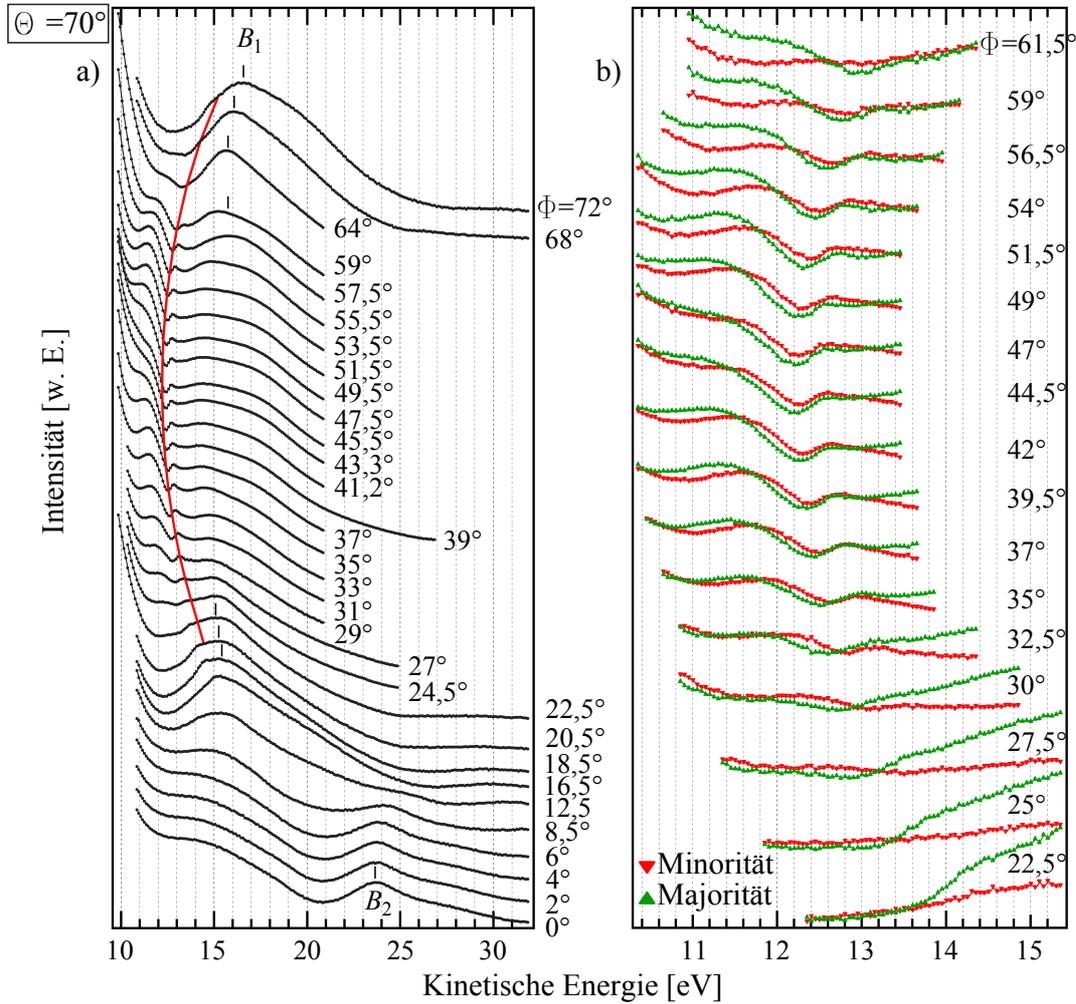
In Abb. 4.13 a) ist eine spinintegrierte Winkelserie, aufgenommen unter  $\Theta = 70^\circ$ , dargestellt. Unter  $\Phi = 37^\circ$  findet sich die zuvor im Einzelspektrum identifizierte Feinstruktur mit dem  $(n = 1)_{\text{int}}$ -Zustand bei  $(11,6 \pm 0,2)$  eV wieder. Es ist zu erkennen, dass diese Feinstruktur als Funktion von  $\Phi$  parabelförmig, symmetrisch zu  $\Phi = 45^\circ$  zu größeren Energien dispergiert. Sie wird daher in Analogie zur der an der Cu(001)-Oberfläche auftretenden als  $(\bar{1}\bar{1})$ -Feinstruktur identifiziert.

Bei  $\Phi = (45 \pm 2)^\circ$  tritt eine Abweichung vom erwarteten Verhalten auf. Hier sollte die Feinstruktur die niedrigste energetische Position einnehmen und aufgrund der Äquivalenten Auflösung sollten beide Feinstrukturzustände mit bester Auflösung und damit höchster Intensität zu beobachten sein. Allerdings tritt der  $(n = 1)_{\text{int}}$ -Zustand kaum mehr als Schulter auf dem abfallenden Untergrund auf. Zusätzlich liegt er bei einer vergleichsweise großen Energie und scheint damit nicht dem parabelförmigen Verlauf zu folgen. Der  $(n = 2)_{\text{int}}$ -Zustand verliert dagegen bei  $\Phi = (45 \pm 2)^\circ$  im Vergleich zu den anderen Spektren nicht an Intensität.

Der parabelförmige Verlauf symmetrisch zu  $\Phi = 45^\circ$  der spinintegrierten Serie findet sich auch in der spinaufgelösten Serie, dargestellt in Abb. 4.13 b) wieder.

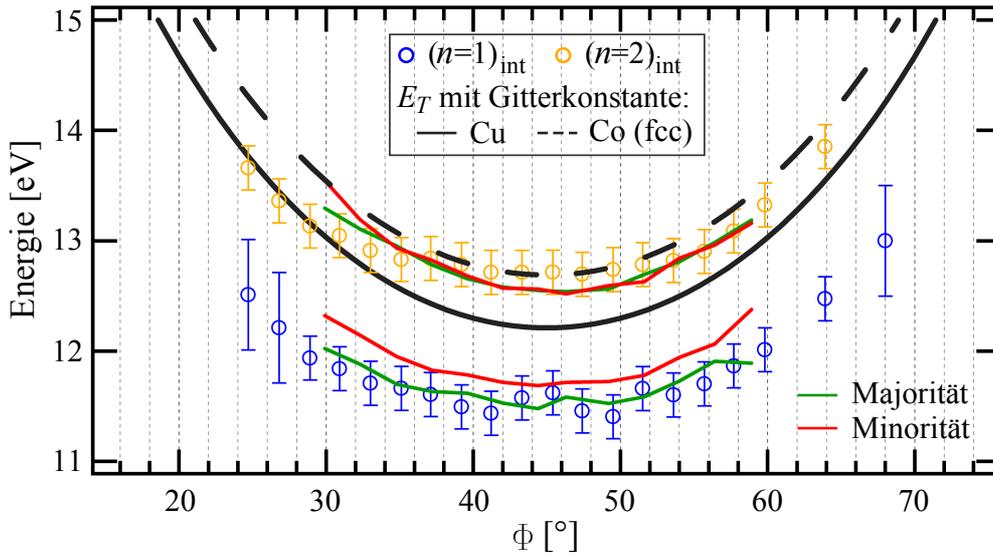
Um die energetische Position der Zustände  $(n = 1)_{\text{int},\uparrow,\downarrow}$  und  $(n = 2)_{\text{int},\uparrow,\downarrow}$ , wie in Abb. 4.14 dargestellt, als Funktion von  $\Phi$  auftragen zu können, werden die Spektren

der spinintegrierten sowie der spinaufgelösten Serie für Majoritäts- und Minoritäts-spin jeweils analog zum Vorgehen bei den Einzelspektren gefittet.



**Abbildung 4.13:** Winkelserie in  $\Phi$  von VLEED-Spektren von Co/Cu(001) unter  $\Theta = 70^\circ$  bei  $I_{Em} = 0,65 \mu\text{A}$ , dargestellt a) spinintegriert und b) spinaufgelöst.

Es ist zu erkennen, dass der  $(n = 1)_{\text{int}}$ -Zustand dem parabelförmigen Verlauf der Emergenzenergie qualitativ folgt. Für große bzw. kleine  $\Phi$  tritt eine stärkere Abweichung vom berechneten Verlauf auf. In diesem Winkelbereich ( $\Phi < 30^\circ$  bzw.  $\Phi > 59^\circ$ ) nimmt allerdings die Intensität der Zustände relativ zum Untergrund in dem Maße ab, dass kaum mehr ein zuverlässiger Fit möglich ist. Dementsprechend ist der angegebene Fehler größer. Bei  $\Phi = (45 \pm 2)^\circ$  ist die für den  $(n = 1)_{\text{int}}$ -Zustand bestimmte Energieposition im Vergleich zu den übrigen etwa 200 meV zu hoch, wie beim Betrachten der Winkelserie bereits angedeutet.



**Abbildung 4.14:** Energie der Feinstrukturzustände von Co/Cu(001) aus den spinintegrierten und spinaufgelösten VLEED-Spektren als Funktion von  $\Phi$  unter  $\Theta = 70^\circ$  im Vergleich zur Emergenzenergieparabel, einmal für die Gitterkonstante von Cu(001) und die Gitterkonstante von fcc-Co/Cu(001). Die Fehlerbalken der spinaufgelöst dargestellten Daten liegen in der Größenordnung der in Tab. 4.4 für  $(n = 1)_{\uparrow,\downarrow}$  und  $(n = 2)_{\uparrow,\downarrow}$  angegebenen Fehler. Sie sind aus Gründen der Übersichtlichkeit nicht abgebildet.

Die Dispersion des  $(n = 2)_{\text{int}}$ -Zustands verläuft flacher als die Emergenzenergie als Funktion von  $\Phi$ . Während die energetische Position des  $(n = 2)_{\text{int}}$  um  $\Phi = 45^\circ$  etwa 0,4 eV oberhalb der Emergenzenergie liegt, stimmen diese für  $\Phi \leq 31^\circ$  quasi überein. Für  $\Phi \geq 54^\circ$  dagegen folgt der  $(n = 2)_{\text{int}}$  dem Verlauf der Emergenzenergie qualitativ.

Aus den energetischen Positionen der Zustände  $(n = 1)_{\uparrow,\downarrow}$  und  $(n = 2)_{\uparrow,\downarrow}$  ergibt sich zunächst für den  $(n = 1)_{\uparrow,\downarrow}$  eine in etwa konstante Spinaufspaltung von  $(233 \pm 40)$  meV. Die spinaufgelöst ermittelten energetischen Positionen entsprechen dem berechneten Verlauf der Emergenzenergie deutlich besser als der  $(n = 1)_{\text{int}}$ . Unter  $\Phi = 45^\circ$  wird keine Abweichung des  $(n = 1)_{\uparrow,\downarrow}$  vom gesamten Verlauf beobachtet. Für einen spinaufgelösten Fit eines spinaufgespaltenen Zustands war eine bessere Übereinstimmung allerdings auch zu erwarten.

Der  $(n = 2)_{\uparrow,\downarrow}$  zeigt dagegen eine vergleichsweise kleine Spinabhängigkeit mit Spinaufspaltungen von  $\leq 40$  meV. Trotzdem entspricht auch hier der Verlauf des  $(n = 2)_{\uparrow,\downarrow}$  dem der Emergenzenergie deutlich besser. Das kann neben der Spinabhängigkeit des Zustands auf den spinabhängigen Untergrund zurückzuführen sein. Die  $(n = 2)_{\uparrow,\downarrow}$  liegen  $\leq (0,37 \pm 0,02)$  eV oberhalb der mit  $b_{\text{Cu}(001)}$  berechneten Emergenzenergie.

## Diskussion

Die Differenz des  $(n = 2)_{\uparrow,\downarrow}$  zur mit  $b_{\text{Cu}(001)}$  berechneten Emergenzenergie ist um  $u_{\text{Co}} = (0,17 \pm 0,02)$  eV größer als es bei den Messungen an Cu(001) der Fall war und dort im Rahmen der  $E_{\text{CPD}}$  zwischen Quelle und Analysator diskutiert worden ist.

Hier ist nun zu bedenken, dass sich die kinetische Energie der Elektronen an der Co/Cu(001)-Oberfläche während des VLEED-Prozesses aus der Kontaktpotentialdifferenz zwischen Quelle und Co-Oberfläche ergibt. In diesem Fall beträgt die Austrittsarbeit von Kobalt  $\Phi_{\text{A,Co/Cu}(001)} = (4,81 \pm 0,05)$  eV [Allmers 2009].  $E_{\text{CPD,Co}} = (3,31 \pm 0,05)$  eV ist somit um  $\Delta E_{\text{CPD,Co}} = (0,13 \pm 0,05)$  eV größer als zwischen Quelle und Analysator. Von der hier verwendeten Energieskala muss daher dieser Wert abgezogen werden, um die kinetische Energie der Elektronen während des VLEED-Prozesses zu erhalten. Dann ist die Differenz des  $(n = 2)_{\uparrow,\downarrow}$  zur Emergenzenergie  $\leq 0,2$  eV und mit dem für Kupfer erhaltenen Wert vergleichbar. Die Gründe für die experimentelle Überschätzung der Emergenzenergie entsprechen somit den bereits für Kupfer angeführten. Auch für die Messungen an Kobalt gilt deshalb, dass die Energieskala des Experiments hier nach [Hitchen und Thurgate 1988b] durch den Vergleich mit der berechneten Emergenzenergie festgelegt werden kann.

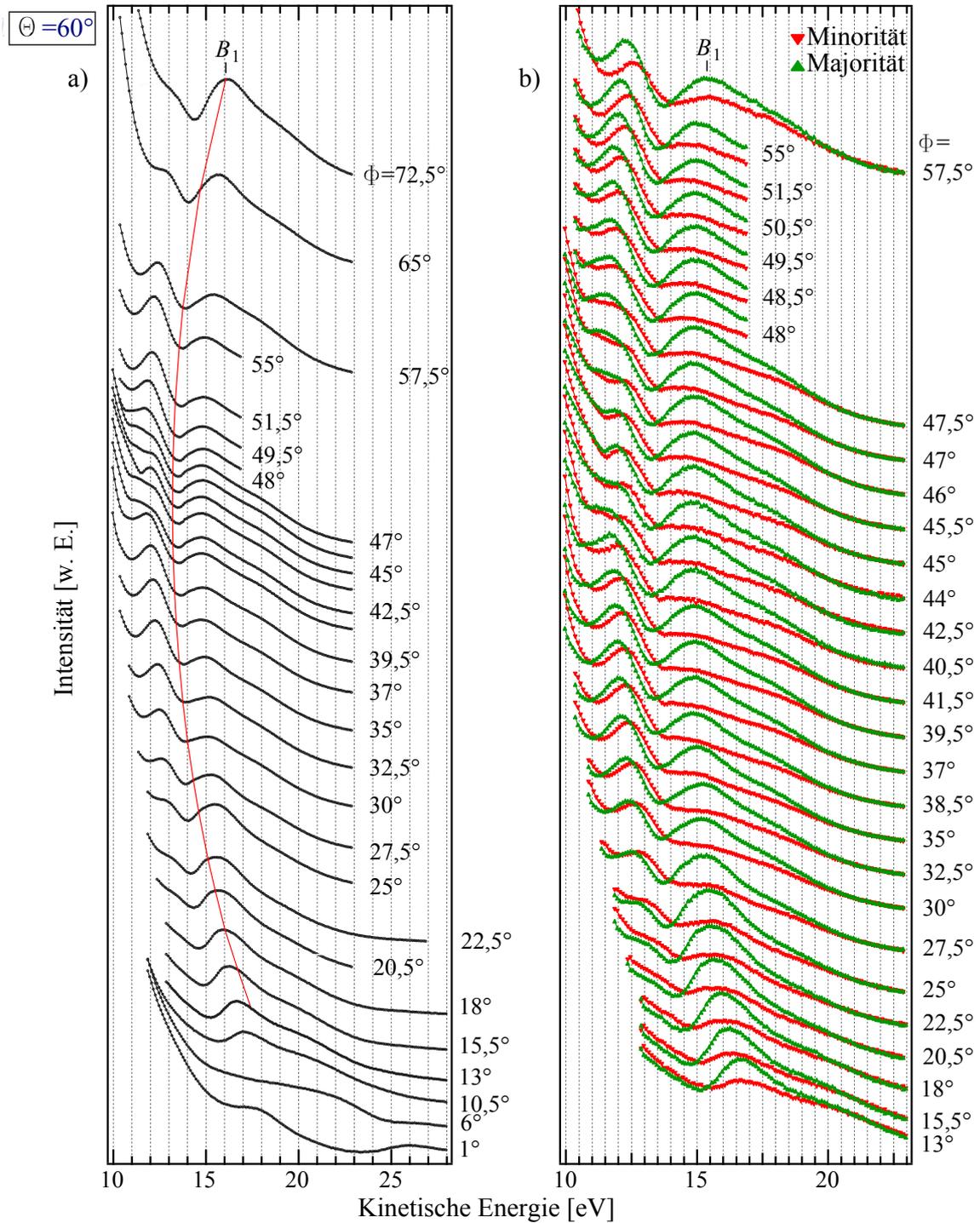
Eine  $(\bar{2}0)$ -Feinstruktur mit einer Emergenzenergie von etwa 24,5 eV bei  $\Phi = 0^\circ$ , die symmetrisch um  $\Phi = 0^\circ$  dispergieren müsste, wird in Abb. 4.13 nicht beobachtet. Für  $\Phi \leq 12,5^\circ$  tritt dort eine nicht dispergierende Struktur  $B_2$  mit einer Halbwertsbreite  $> 1$  eV auf, bei der es sich wahrscheinlich um einen Braggzustand handelt.

### Winkelserie unter $\Theta = 60^\circ$

Auch bei der in Abb. 4.15 a) dargestellten spinintegrierten Winkelserie unter  $\Theta = 60^\circ$  tritt die  $(\bar{1}\bar{1})$ -Feinstruktur auf, die wiederum symmetrisch um  $\Phi = 45^\circ$  unterhalb der Emergenzenergie dispergiert. Wie im Einzelspektrum unter  $\Phi = 37^\circ$  wird im gesamten Verlauf der Serie neben dem  $(n = 1)_{\text{int}}$ - kein  $(n = 2)_{\text{int}}$ -Zustand beobachtet. Bei  $\Phi = 45^\circ$  weicht der  $(n = 1)_{\text{int}}$ -Zustand wie schon bei der Winkelserie unter  $\Theta = 70^\circ$  von der erwarteten energetischen Position ab und liegt bei einer vergleichsweise hohen Energie. Anders als bei  $\Theta = 70^\circ$  tritt er hier als Intensitätsmaximum und nicht nur als Schulter auf. Im Bereich  $\Phi = (45 \pm 2)^\circ$  dagegen wird der  $(n = 1)_{\text{int}}$  nicht als Intensitätsmaximum beobachtet, sondern jetzt als Schulter, die aus zwei Zuständen besteht. Im weiteren Verlauf der Winkelserie dispergiert der  $(n = 1)_{\text{int}}$  wieder als klar erkennbarer einzelner Zustand entlang der Emergenzenergieparabel. In den spinaufgelösten Spektren in Abb. 4.15 b) verhält sich der  $(n = 1)_{\uparrow,\downarrow}$  bzgl. der Dispersion um  $\Phi = 45^\circ$  wie der  $(n = 1)_{\text{int}}$ . Für  $\Phi \leq 27,5^\circ$  ist die am  $(n = 1)_{\uparrow,\downarrow}$  beobachtete Spinasymmetrie zunächst negativ. Für größere  $\Phi$  wechselt die Asymmetrie das Vorzeichen, um bis  $\Phi = 57,5^\circ$  stark zuzunehmen. Ähnliches ist auch beim  $(n = 1)_{\uparrow,\downarrow}$  unter  $\Theta = 70^\circ$  zu beobachten, wobei der  $(n = 1)_{\uparrow,\downarrow}$  dort nur insgesamt weniger ausgeprägt auftritt.

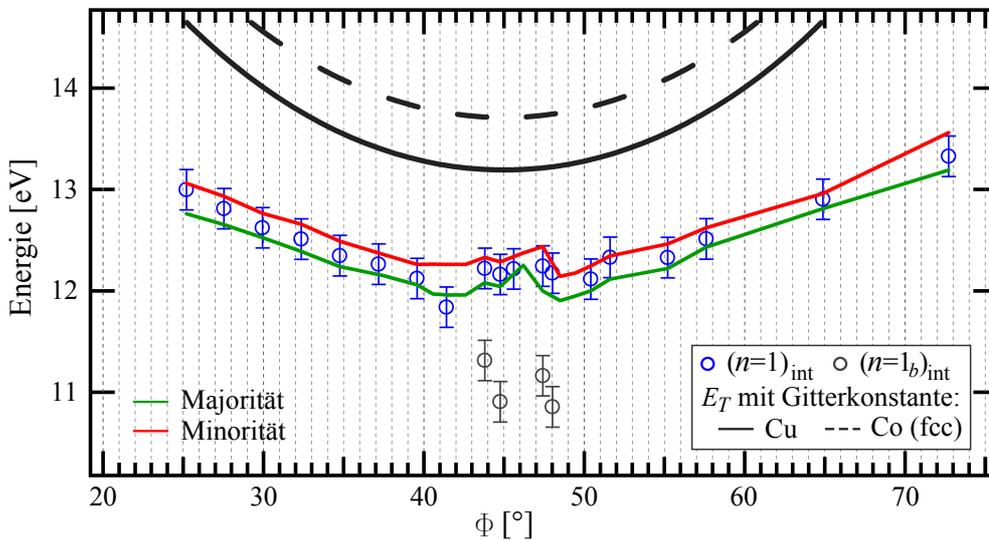
Die Asymmetrie des Braggzustands  $B_1$  ist dagegen konstant positiv und unter

$\Phi = 57,5^\circ$  kleiner als unter  $\Phi = 22,5^\circ$ . Eine quantitative Auswertung der Spinasymmetrie erfolgt in Abschnitt 4.2.4.



**Abbildung 4.15:** Winkelserie in  $\Phi$  von VLEED-Spektren an Co/Cu(001) unter  $\Theta = 60^\circ$  bei  $I_{Em} = 1,0 \mu A$ , dargestellt a) spinintegriert und b) spin aufgelöst.

Die durch Fitten der spinintegrierten und spinaufgelösten Spektren in Abb. 4.15 a) und b) erhaltenen energetischen Positionen des  $(n = 1)_{\text{int},\uparrow,\downarrow}$ -Zustands sind in Abb. 4.16 als Funktion von  $\Phi$  aufgetragen. Für  $\Phi = (45 \pm 2)^\circ$  sind die zwei Zustände aus dem Fit mit zwei Gaußfunktionen eingezeichnet. Dabei zeigt der energetisch tiefer liegende, der mit  $(n = 1_b)_{\text{int}}$  bezeichnet separat dargestellt wird, keine Spinaufspaltung in der spinaufgelösten Messung. Der höher gelegene Zustand sowie der einzelne Zustand bei  $\Phi = 45^\circ$  sind wie die übrigen  $(n = 1)_{\uparrow,\downarrow}$ -Zustände der Feinstruktur konstant um etwa  $(256 \pm 20)$  meV aufgespalten. Sie werden daher in Abb. 4.16 in die Reihe der  $(n = 1)_{\uparrow,\downarrow}$ -Zustände aufgenommen. Rein qualitativ zeigt der  $(n = 1)_{\text{int},\uparrow,\downarrow}$  hier das erwartete parabelförmige Verhalten. Die Abweichungen sind aber größer als bei der  $(\Theta = 70^\circ)$ -Serie. Der Verlauf ist vor allem für  $\Phi \leq 30^\circ$  und  $\Phi \geq 57,5^\circ$  zu flach im Vergleich zur Emergenzenergie. Außerdem fügen sich die  $(n = 1)_{\text{int},\uparrow,\downarrow}$ -Zustände bei  $\Phi = (45 \pm 2)^\circ$  nicht besonders gut ein.

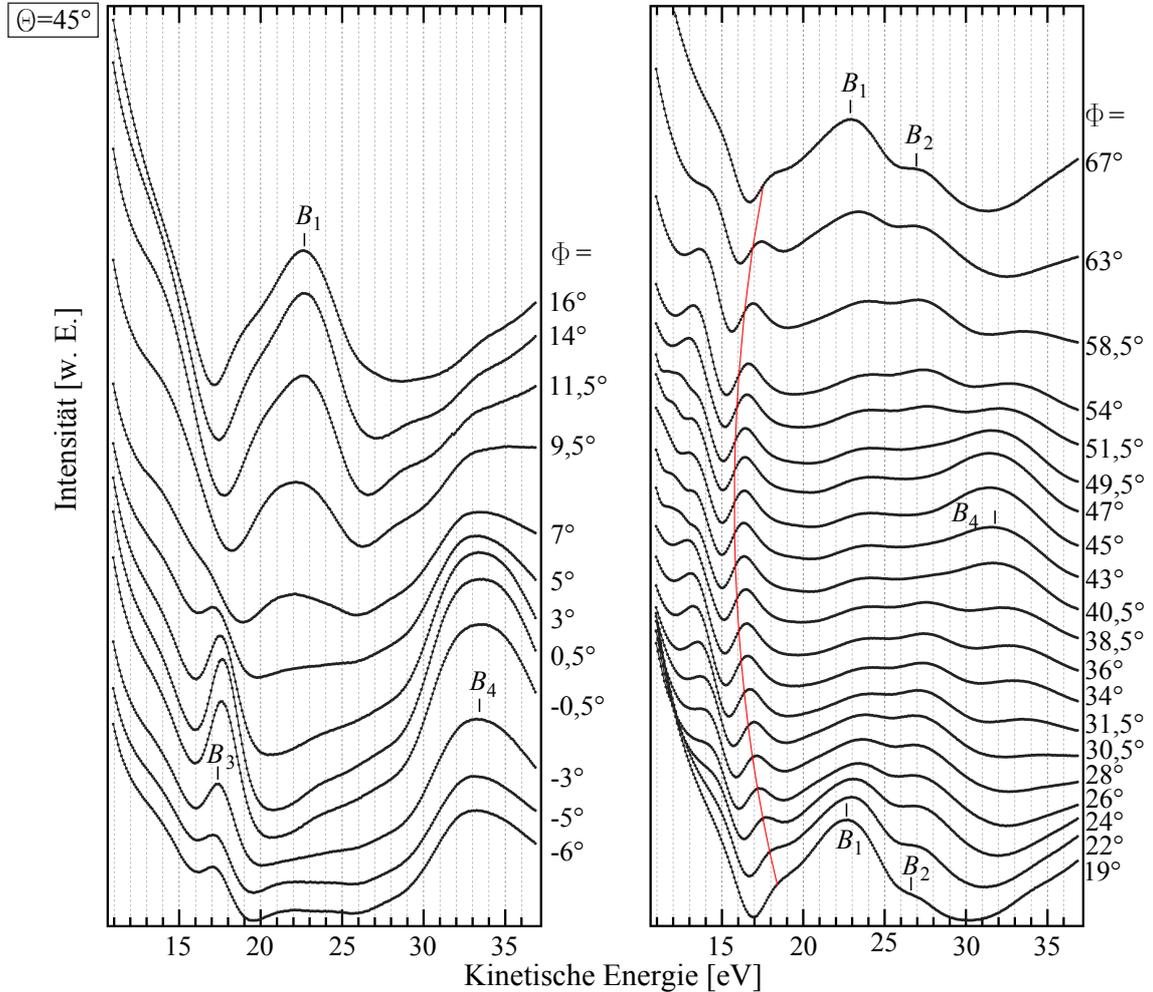


**Abbildung 4.16:** Energetische Position des  $(n = 1)$ -Feinstrukturzustands aus den spinintegrierten und spinaufgelösten Spektren von Co/Cu(001) als Funktion von  $\Phi$  unter  $\Theta = 60^\circ$  im Vergleich zur Emergenzenergieparabel, einmal für die Gitterkonstante von Cu(001) und die Gitterkonstante von fcc-Co/Cu(001). Für Bezeichnungen siehe Text.

Da hier kein  $(n = 2)$ -Zustand beobachtet wird, kann kein Vergleich zur Emergenzenergie gezogen werden. Für den  $(n = 1)_{\text{int},\uparrow,\downarrow}$ -Zustand gilt jedoch, dass dessen Abstand zur Emergenzenergie etwa  $0,3$  eV größer ist als für  $\Theta = 70^\circ$ . Eine  $(\bar{2}0)$ -Feinstruktur wird auch in dieser Winkelserie in Abb. 4.15 für  $\Phi \leq 15^\circ$  nicht beobachtet.

Winkelerie unter  $\Theta = 45^\circ$ 

Unter  $\Theta = 45^\circ$  wird in der spinintegrierten Winkelerie in Abb. 4.17 eine jetzt wieder aus zwei Zuständen bestehende  $(\bar{1}\bar{1})$ -Feinstruktur beobachtet.



**Abbildung 4.17:** Spinintegrierte Winkelerie in  $\Phi$  von VLEED-Spektren an Co/Cu(001) unter  $\Theta = 45^\circ$  aufgenommen mit  $I_{\text{Em}} = 0,65 \mu\text{A}$ .

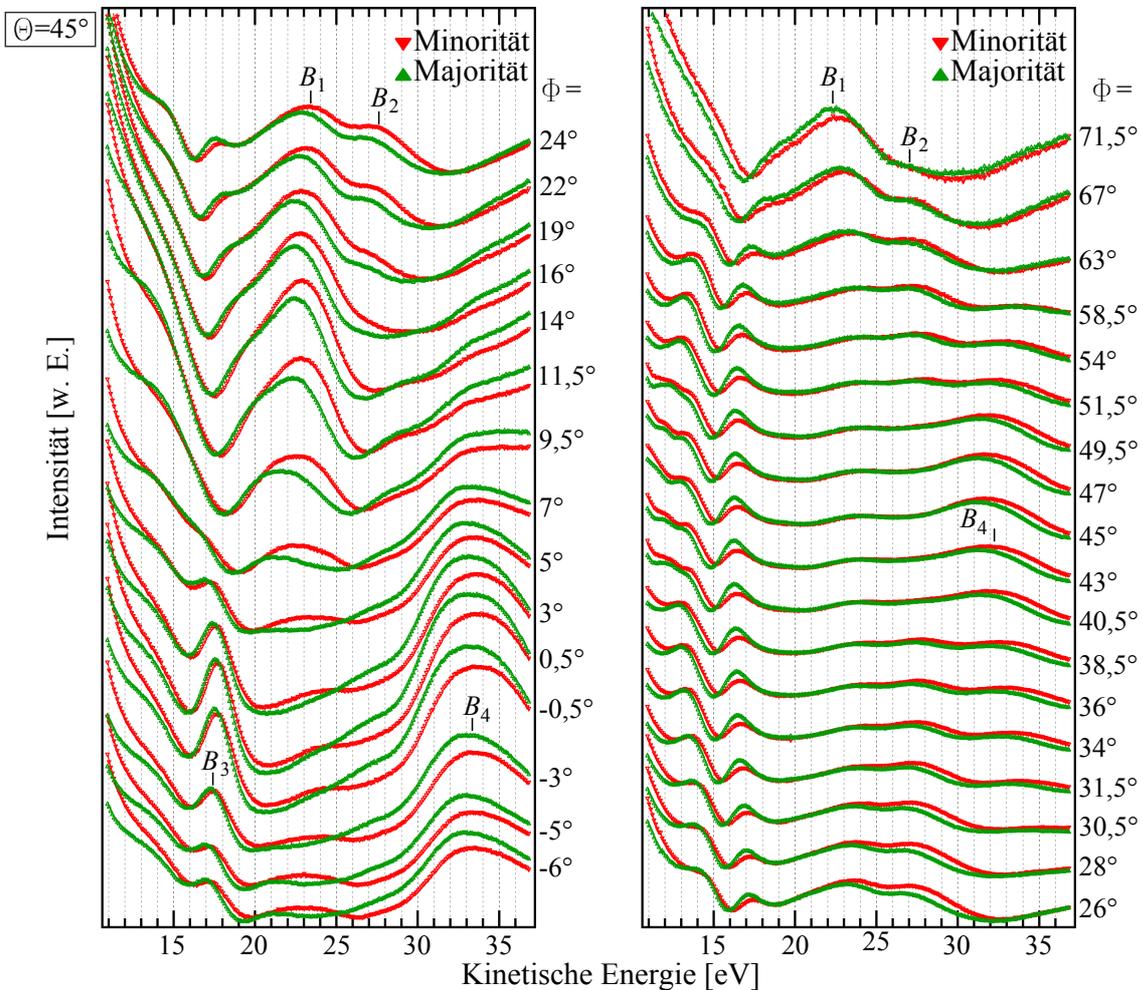
Unter  $\Theta = 45^\circ$  liegt der  $(n = 1)_{\text{int}}$  wie zuvor unter  $\Theta = 70^\circ$  und  $60^\circ$  bei vergleichsweise hoher Energie. Die Doppelmaximumstruktur ist nun für  $40,5^\circ \leq \Phi < 45^\circ$  und  $45^\circ < \Phi \leq 49,5^\circ$  über einen größeren Winkelbereich sichtbar und deutlich ausgeprägter. Im Rahmen der Fitprozedur stellte sich heraus, dass auch das VLEED-Spektrum unter  $\Phi = 45^\circ$  im Bereich des  $(n = 1)_{\text{int}}$ -Zustands besser reproduziert wird, wenn dort zwei Zustände angenommen werden. Für  $\Phi < 40,6^\circ$  und  $\Phi > 49,5^\circ$  dispergiert der  $(n = 1)_{\text{int}}$  wieder als klar erkennbarer einzelner Zustand symmetrisch zu  $\Phi = 45^\circ$  und nimmt entsprechend der Äquivalenten Auflösung unter kleinen bzw. großen  $\Phi$

in der Intensität ab.

Auch der  $(n = 2)_{\text{int}}$  folgt in seiner Dispersion der Emergenzenergieparabel. Für  $\Phi \leq 22^\circ$  bzw.  $\Phi = 67^\circ$  tritt er auch entsprechend der Äquivalenten Auflösung nur noch als Schulter an dem mit  $B_1$  bezeichneten Braggzustand auf.

Unter  $\Phi \leq 19^\circ$ , wo die  $(\bar{1}\bar{1})$ -Feinstruktur nicht mehr beobachtet wird, tritt ein stark in der Intensität variierender Untergrund bestehend aus vier Braggzuständen  $B_i$  auf. Dies wurde unter  $\Theta = 70^\circ$  und  $\Theta = 60^\circ$  so nicht beobachtet. Dort verläuft der Untergrund für kleine  $\Phi$  ähnlich flach wie hier unter  $\Theta = 45^\circ$  und  $\Phi = 45^\circ$ . Eine  $(\bar{2}0)$ -Feinstruktur findet sich auch hier nicht.

In der spinaufgelösten Winkelserie in Abb. 4.18 wird für den  $(n = 1)_{\uparrow,\downarrow}$  eine Spinasymmetrie beobachtet, die für  $\Phi \leq 30,5^\circ$  zunächst relativ gering ist, dann für größere  $\Phi$  das Vorzeichen wechselt und im weiteren Verlauf der Serie zunimmt.



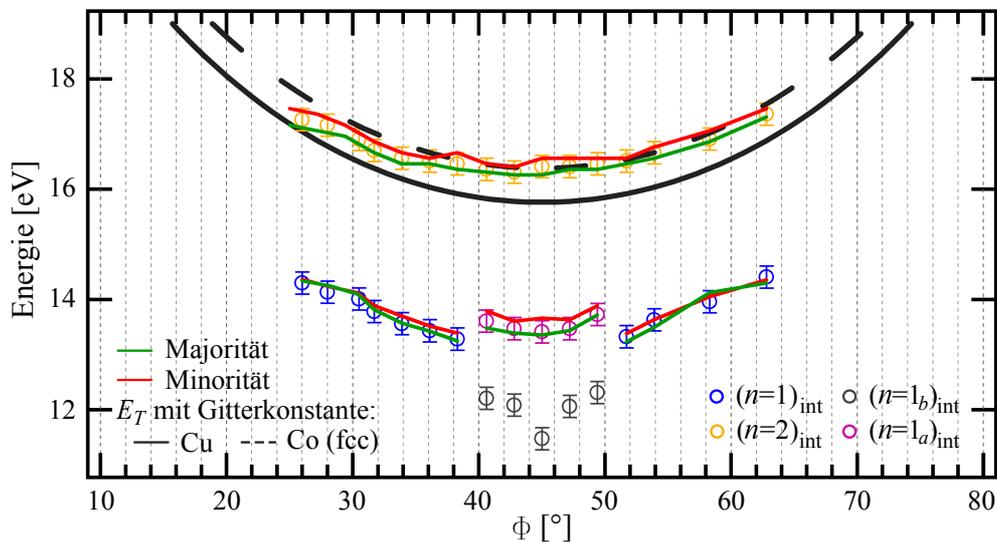
**Abbildung 4.18:** Spinaufgelöste Winkelserie in  $\Phi$  von VLEED-Spektren an Co/Cu(001) unter  $\Theta = 45^\circ$  aufgenommen mit  $I_{\text{Em}} = 0,65 \mu\text{A}$ .

Der  $(n = 2)_{\uparrow,\downarrow}$  zeigt um  $\Phi = 45^\circ$  maximale Spinasymmetrie und wechselt das Vorzeichen nicht.

Der Untergrund ist für  $\Phi \leq 26^\circ$  stark spinabhängig. Neben einer Spinasymmetrie aller Braggzustände  $B_i$  wird für  $B_1$  und  $B_3$  eine Spinaufspaltung beobachtet. Für  $B_1$  ist diese vor allem unter  $\Phi = 7^\circ$  und  $\Phi = 9,5^\circ$  zu erkennen, da sonst für ansteigende  $\Phi$  an dessen niederenergetischer Flanke der  $(n = 2)_{\uparrow,\downarrow}$  hervorzutreten beginnt. Im weiteren Verlauf ist deshalb nicht eindeutig festzustellen, ob die Aufspaltung an der linken Seite des  $B_1$  auf die des  $(n = 2)_{\uparrow,\downarrow}$  zurückzuführen ist.

Die Ergebnisse der Fitprozedur für die Feinstrukturzustände in den spinintegrierten und den spinaufgelösten Spektren sind in Abb. 4.19 dargestellt.

Für die Doppelmaximumstruktur unter  $40,5^\circ \leq \Phi \leq 49,5^\circ$  gilt wie unter  $\Theta = 60^\circ$ , dass der energetisch tiefer liegende Zustand nicht spinaufgespalten ist. Er wird wieder mit  $(n = 1_b)$  bezeichnet. Der energetisch höher gelegene zeigt dagegen eine Spinaufspaltung von  $(240 \pm 30)$  meV. Er wird hier als eigener Zustand  $(n = 1_a)$  eingezeichnet, da er sich in seiner energetischen Position, in der Dispersion als Funktion von  $\Phi$  und seiner Eigenschaft der Spinaufspaltung deutlich stärker vom  $(n = 1)_{\text{int},\uparrow,\downarrow}$ -Zustand unter den restlichen Azimutwinkeln  $\Phi$  unterscheidet als es unter  $\Theta = 60^\circ$  der Fall ist.



**Abbildung 4.19:** Energie der Feinstrukturzustände an Co/Cu(001) aus den spinintegrierten und spinaufgelösten VLEED-Spektren als Funktion von  $\Phi$  unter  $\Theta = 45^\circ$  im Vergleich zur Emergenzenergieparabel, einmal für die Gitterkonstante von Cu(001) und die Gitterkonstante von fcc-Co/Cu(001). Für Bezeichnungen siehe Text.

Der  $(n = 1)_{\text{int},\uparrow,\downarrow}$ -Zustand verläuft energetisch genau zwischen den Zuständen  $(n = 1_a)_{\text{int},\uparrow,\downarrow}$  und  $(n = 1_b)_{\text{int}}$  der Doppelmaximumstruktur und sein energetischer Abstand zur Emergenzenergie ist mit etwa 2,6 eV noch einmal größer als unter  $\Theta = 60^\circ$ . Er zeigt zunächst eine Spinaufspaltung von  $(150 \pm 10)$  meV, die dann für  $\Phi \leq 38,5^\circ$  und  $\Phi \geq 51,5^\circ$  auf Null zurückgeht.

Der  $(n = 2)_{\text{int},\uparrow,\downarrow}$ -Zustand zeigt einen parabelförmigen Verlauf, wobei die Abweichung davon für kleine  $\Phi$  etwas größer ist als für große  $\Phi$ . Die Spinaufspaltung wird hier zu  $(200 \pm 50)$  meV bestimmt.

Der energetische Abstand des  $(n = 2)_{\text{int},\uparrow,\downarrow}$  zur berechneten Emergenzenergie beträgt hier 0,5 eV und ist um 150 meV größer als es bei  $\Theta = 70^\circ$  der Fall ist.

## Diskussion

Für alle Winkel  $\Theta$  wird in den Winkelserien eine  $(\bar{1}\bar{1})$ -Feinstruktur identifiziert, die symmetrisch um  $\Phi = 45^\circ$  dispergiert.

Die überzeugendste Messung der Feinstruktur erfolgt unter  $\Theta = 70^\circ$ . Sowohl der  $(n = 1)_{\uparrow,\downarrow,\Theta=70^\circ}$  als auch der  $(n = 2)_{\uparrow,\downarrow,\Theta=70^\circ}$  entsprechen dem Verlauf der Emergenzenergie sehr gut. Bei den hier mit  $(n = 1)_{\text{int},\uparrow,\downarrow,\Theta=70^\circ}$  und  $(n = 2)_{\text{int},\uparrow,\downarrow,\Theta=70^\circ}$  bezeichneten Strukturen handelt es sich daher eindeutig um Mitglieder der Rydberg-Serie der  $(\bar{1}\bar{1})$ -Feinstruktur von Co/Cu(001).

Der mit der Cu(001)-Messung vergleichbare energetische Abstand des  $(n = 2)_{\uparrow,\downarrow,\Theta=70^\circ}$  zur Emergenzenergie der  $(\bar{1}\bar{1})$ -Feinstruktur auf Co/Cu(001) lässt auf eine Gitterkonstante des Co-Films schließen, die der von Cu(001) entspricht. Die für die fcc-Co-Gitterkonstante berechnete Emergenzenergie liegt zu hoch.

Insgesamt ist also die beim Co/Cu(001) unter  $\Theta = 70^\circ$  beobachtete  $(\bar{1}\bar{1})$ -Feinstruktur mit der an Cu(001) beobachteten absolut vergleichbar. Sie unterscheiden sich aber durch die sehr viel geringere Intensität beider Feinstrukturzustände von Co/Cu(001) (vergleiche Abb. 4.12 mit Abb. 4.1 und 4.2).

Ein Rückgang in der Intensität für beide Feinstrukturzustände gleichermaßen kann ein Hinweis auf eine nicht vollständig glatt präparierte Co-Oberfläche sein. Um dies zu überprüfen, müssen Präparationsparameter wie die Temperatur während und nach der Präparation der Co-Filme variiert werden und der Zustand der Oberfläche dann z. B. mittels Inverser Photoemissionsmessungen am Bildpotentialzustand charakterisiert werden. Allerdings liefern die in Abschnitt 3.3 vorgestellten IPE-Messungen an der Co/Cu(001)-Oberfläche bereits Hinweise auf eine wohlpräparierte Oberfläche. In diesem Zusammenhang kann der Intensitätsunterschied zwischen der  $(\bar{1}\bar{1})$ -Feinstruktur von Cu(001) und der von Co/Cu(001) auch auf eine stärkere inelastische Dämpfung der beim VLEED-Prozess an der Co-Oberfläche reflektierten oder gebeugten Elektronen zurückzuführen sein. Einen Hinweis darauf liefern die Lebensdauern der an diesen Oberflächen auftretenden Bildpotentialzustände. So geben [Höfer et al. 1997] z. B. für die Lebensdauer des  $(n = 1)$ -Bildpotentialzustands an Cu(001)  $\tau_1 = 40$  fs und [Schmidt 2007] für den spinabhängigen  $(n = 1)$ -Bildpotentialzustand an Co/Cu(001) nur  $\tau_1^\uparrow = 19$  fs bzw.  $\tau_1^\downarrow = 16$  fs an. Die kürzere Lebensdauer an der Co-Oberfläche ist mit einer stärkeren inelastischen Dämpfung der vor der Oberfläche propagierenden und an der Oberfläche reflektierten Elektronen verknüpft und kann daher eine Ursache für die

geringere Intensität der Feinstruktur von Co/Cu(001) sein.

Auch bei den Winkelserien unter  $\Theta = 60^\circ$  und  $\Theta = 45^\circ$  werden der  $(n = 1)_{\text{int},\uparrow\downarrow,\Theta=60^\circ}$  und der  $(n = 1)_{\text{int},\uparrow\downarrow,\Theta=45^\circ}$  der Rydberg-Serie der  $(\bar{1}\bar{1})$ -Feinstruktur auf Co/Cu(001) zugeordnet, auch wenn deren Abweichungen von der Emergenzenergieparabel ausgeprägter sind. Zumindest der in einem kleinen Winkelbereich auftretende  $(n = 1_a)_{\text{int},\uparrow\downarrow,\Theta=45^\circ}$  entspricht dem erwarteten Verlauf sehr gut.

Es wird vermutet, dass bei der  $(\bar{1}\bar{1})$ -Feinstruktur an Co/Cu(001) eine Doppelmaximumstruktur im Bereich des  $(n = 1)$  auftritt, die unter  $\Theta = 70^\circ$  wenig und unter  $\Theta < 70^\circ$  stärker ausgeprägt ist und dort jeweils zu den Abweichungen vom erwarteten Verlauf des  $(n = 1)$  führt.

Bei diesen Winkelserien fällt außerdem auf, dass der Abstand des  $(n = 1)$  zur Emergenzenergie ansteigt, wenn der Einfallswinkel von  $\Theta = 70^\circ$  auf  $\Theta = 45^\circ$  variiert wird, und damit die  $(\bar{1}\bar{1})$ -Feinstruktur eine ansteigende energetische Ausdehnung besitzt. Um die Frage nach der Doppelmaximumstruktur und der energetischen Ausdehnung der Feinstruktur zu klären, besteht der Bedarf an theoretischen Rechnungen von VLEED-Spektren an Co/Cu(001).

Während unter  $\Theta = 60^\circ$  keine als  $(n = 2)$ -Zustand in Frage kommende Struktur auftritt, ist diese unter  $\Theta = 45^\circ$  wieder vorhanden. Allerdings liegt diese bis jetzt als  $(n = 2)_{\text{int},\uparrow\downarrow,\Theta=45^\circ}$ -Zustand bezeichnete Struktur im Vergleich zum  $(n = 2)_{\uparrow\downarrow,\Theta=70^\circ}$ -Zustand 150 meV zu hoch. Außerdem zeigt sie eine mehr als fünf mal größere Spinaufspaltung als der  $(n = 2)_{\uparrow\downarrow,\Theta=70^\circ}$ . Aufgrund dieser Diskrepanzen ist es an dieser Stelle nicht zweifelsfrei möglich zu entscheiden, ob diese Struktur tatsächlich der Rydberg-Serie angehört. Auch deshalb besteht der Bedarf an Rechnungen von VLEED-Spektren.

Bezüglich der energetischen Lage besteht ein weiterer Ansatz zur Interpretation. Die  $(n = 2)_{\text{int},\uparrow\downarrow,\Theta=45^\circ}$ -Struktur schiebt in Richtung der Emergenzenergie von Co/Cu(001) mit einer Gitterkonstante entsprechend der Gitterfehlانpassung des Kobalts von 2%. Wenn es sich bei dieser Struktur um den  $(n = 2)$ -Zustand der Feinstruktur handeln sollte, kann das bedeuten, dass diese Oberfläche als Resultat der Präparation eine um weniger als 2% kleinere Gitterkonstante besitzt als die Oberfläche, an der die Messungen unter  $\Theta = 70^\circ$  durchgeführt wurden. Es handelt sich hierbei aber um eine reine Vermutung, da das allen diskutierten Oberflächen gemeinsame Standard-Präparationsverfahren angewendet wurde und diese spezielle Oberfläche nicht auf Unterschiede zu den anderen Präparationen untersucht wurde. Bei einer Variation von Präparationsparametern wie der Temperatur während und nach der Präparation der Co-Schicht könnte anschließend durch VLEED-Messungen festgestellt werden, ob sich die Feinstruktur verschiebt, was auf eine Änderung der Gitterkonstanten von Co/Cu(001) aufgrund der Gitterfehlانpassung von 2% zurückzuführen wäre.

Die Asymmetrie der auftretenden Zustände verhält sich in keiner der spinaufgelösten Winkelserien symmetrisch zu  $\Phi = 45^\circ$ . Das war auch bei der Kupferoberfläche der Fall. Dort wurde eine Invarianz der gesamten spinaufgelösten VLEED- $I(V)$ -Kurven

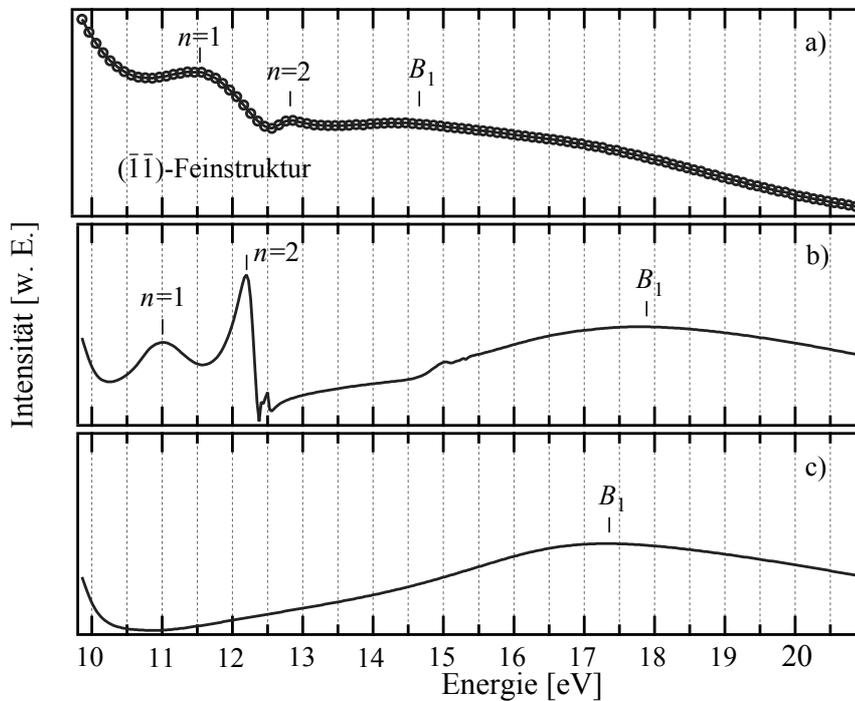
unter Rotation der Probe um  $\Delta\Phi = 90^\circ$  festgestellt.

Da der Co-Film entlang der [10]-Richtung (das entspricht  $\Phi = 0^\circ$ ) magnetisiert ist, ist diese Richtung nun ausgezeichnet, so dass keine Rotationsinvarianzen der Asymmetrie zu erwarten sind, weder für Feinstrukturzustände noch für Braggzustände. Bei Rotationen um  $\Delta\Phi = 180^\circ$  würde sich z. B. der Majoritäts- und Minoritätscharakter der Elektronen vertauschen.

Die Rotationsinvarianz der spinintegrierten VLEED- $I(V)$ -Kurven bleibt dagegen erhalten.

### 4.2.3 Bestimmung der Oberflächenbarriere für Co/Cu(001)

Im Folgenden sollen an Co/Cu(001) gemessene VLEED-Spektren mit ersten Ergebnissen der theoretischen Rechnungen verglichen werden. Dafür werden beispielhaft zunächst spinintegrierte Spektren unter  $\Theta = 70^\circ$  und  $\Phi = 37^\circ$  bzw.  $\Theta = 45^\circ$  und  $\Phi = 43^\circ$  diskutiert, die in Abb. 4.20 bzw. 4.21 abgebildet sind.



**Abbildung 4.20:** Spinintegrierte VLEED-Spektren an Co/Cu(001) unter  $\Theta = 70^\circ$  und  $\Phi = 37^\circ$ , in einem Energiebereich, in dem die  $(\bar{1}\bar{1})$ -Feinstruktur beobachtet wird,

- gemessen mit  $I_{Em} = 0,65 \mu A$  und
- gerechnet mit einem spinunabhängigen RM-Barrierenmodell ohne Berücksichtigung einer experimentellen Auflösung. Für Barrierenparameter siehe Text [Braun 2011].
- Berechnung des gleichen Spektrums mit „abgeschalteter“ Barriere.

Für die ersten Rechnungen verwendet [Braun 2011] eine spinunabhängige Rundgrenz-Malmström (RM)-Oberflächenbarriere und einen spinabhängigen Kristallanteil. Für

$\Theta = 70^\circ$  und  $\Phi = 37^\circ$  tritt die  $(\bar{1}\bar{1})$ -Feinstruktur im berechneten Spektrum in Abb. 4.20 b) zu kleineren Energien verschoben auf. Die energetische Position sowohl des  $(n = 1)$ - als auch des  $(n = 2)$ -Zustands unterscheidet um etwa 0,5 eV vom gemessenen Spektrum in Abb. 4.20 a). In der Rechnung ist der  $(n = 1)$ - von kleinerer Intensität der als der  $(n = 2)$ -Zustand, was auch schon bei der Berechnung der Cu-Spektren auffiel (vergleiche Abb. 4.8). Der Untergrund im berechneten Spektrum zeigt insbesondere im Auftreten des Braggzustands  $B_1$  keine gute Übereinstimmung mit dem gemessenen Spektrum.

Bei dem mit „abgeschalteter“ Barriere berechneten Spektrum in Abb. 4.20) verschwinden die mit  $(n = 1)$  und  $(n = 2)$  bezeichneten Zustände der  $(\bar{1}\bar{1})$ -Feinstruktur vollständig. Das bestätigt die Feststellung, dass es sich hier um die  $(\bar{1}\bar{1})$ -Feinstruktur der Co-Oberfläche handelt. Der mit  $B_1$  bezeichnete Braggzustand liegt bei „abgeschalteter“ Barriere bei kleinerer Energie.

Die Verschiebung der berechneten Feinstruktur gegenüber der gemessenen lässt darauf schließen, dass die für die Rechnung gewählten Barrierenparameter noch nicht optimal sind. Nach Abb. 4.9 würde z. B. eine Verschiebung der Spiegelebene zum Kristall hin die berechnete Feinstruktur zu höheren Energien verschieben und so die Übereinstimmung mit der Messung erhöhen.

Der sehr stark in der Intensität gedämpfte, berechnete  $(n = 1)$ -Zustand sowie der gegenüber der Messung verschobene Braggzustand  $B_1$  sind Hinweise darauf, dass auch der Kristallbeitrag zum VLEED-Prozess noch nicht vollständig korrekt berücksichtigt wird. Da die vergleichsweise geringe Intensität des  $(n = 1)$ -Zustands hier genauso wie bei den Rechnungen zur Feinstruktur an Cu(001) auftritt (vergleiche Abb. 4.8), können anhand dieser Rechnungen insbesondere keine Aussagen über eine unterschiedliche inelastische Dämpfung der Feinstrukturzustände an der Co/Cu(001)- bzw. Cu(001)-Oberfläche getroffen werden.

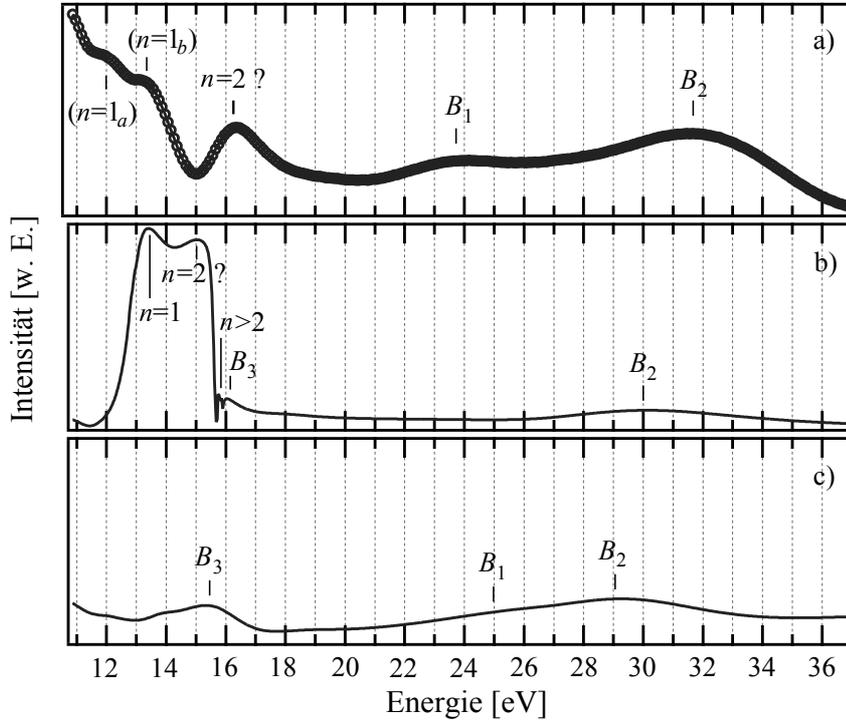
Im Vergleich des unter  $\Theta = 45^\circ$  und  $\Phi = 43^\circ$  gemessenen VLEED-Spektrums mit dem berechneten in Abb. 4.21 a) und b) fällt die Zuordnung der gemessenen Feinstrukturzustände schwerer. In beiden Spektren tritt eine Doppelmaximumstruktur auf, deren Maxima um etwa 1,5 eV auseinander liegen (siehe  $(n = 1)_a$ ,  $(n = 1)_b$  in Abb. 4.21 a) und  $(n = 1)$ ,  $(n = 2)$  in Abb. 4.21 b)). Während sich die gemessene Struktur nur schwach von einem zu kleinen Energien stark ansteigenden Untergrund absetzt, tritt die berechnete Struktur mit großer Intensität, klar separiert vom Untergrund auf. Die gemessene Struktur liegt bei etwa 1,5 eV geringerer Energie als die berechnete.

Die folgenden Feinstrukturzustände höherer Ordnung im berechneten Spektrum sind von sehr viel geringerer Intensität als die Doppelmaximumstruktur. Mit ihnen endet die berechnete Feinstruktur in etwa bei der Energie, bei der im gemessenen Spektrum der mit  $(n = 2)$  bezeichnete Zustand auftritt.

Bei „abgeschalteter“ Barriere in Abb. 4.21 c) verschwinden die Doppelmaximumstruktur und die Feinstrukturzustände höherer Ordnung. Es bleibt ein mit  $B_3$  bezeichneter Braggzustand zurück, der bei einer um etwa 1 eV geringeren Energie liegt als der gemessene  $(n = 2)$ -Zustand.

Der in der Messung beobachtete Braggzustand  $B_1$  wird im gerechneten Spektrum

nicht beobachtet bzw. ist bei abgeschalteter Barriere in der Energie verschoben. Ebenso ist der  $B_2$  in der Rechnung energetisch verschoben.



**Abbildung 4.21:** Spintintegrierte VLEED-Spektren an Co/Cu(001) unter  $\Theta = 45^\circ$  und  $\Phi = 43^\circ$ , in einem Energiebereich, in dem die  $(\bar{1}\bar{1})$ -Feinstruktur beobachtet wird, a) gemessen mit  $I_{Em} = 0,65 \mu A$ , für Bezeichnungen s. auch Abb. 4.19, und b) berechnet wie Abb. 4.20. c) Berechnung des gleichen Spektrums mit „abgeschalteter“ Barriere.

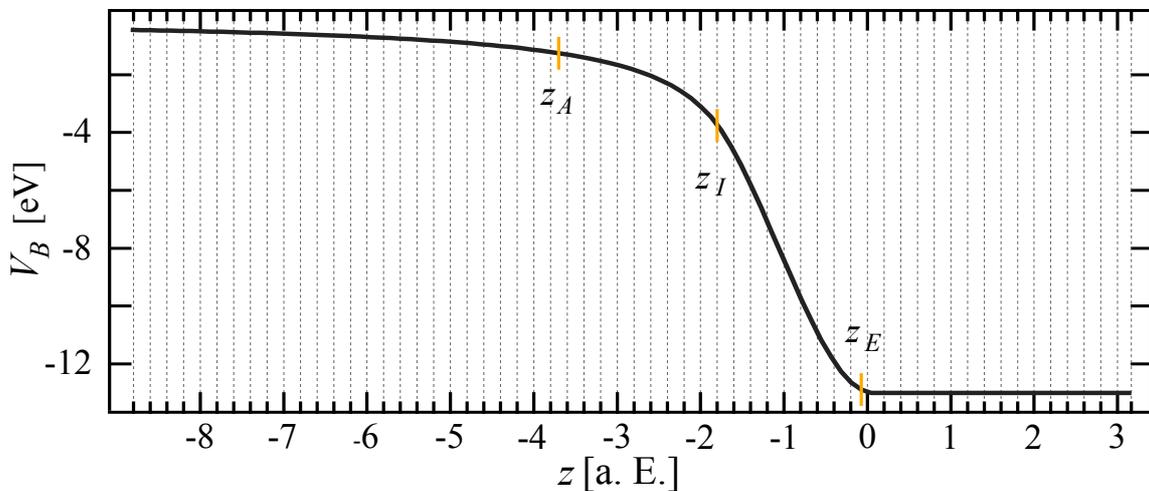
Durch den Vergleich mit dem berechneten VLEED-Spektrum zeigt sich, dass sich die an der Co-Oberfläche unter  $\Theta = 45^\circ$  beobachtete Feinstruktur von der Cu-Feinstruktur und auch von der unter  $\Theta = 70^\circ$  an der Co-Oberfläche beobachteten Feinstruktur unterscheidet. Der Unterschied besteht zum einen im Auftreten der Doppelmaximumstruktur unter  $\Theta = 45^\circ$ . Außerdem ist der Abstand der beiden Maxima dieser Struktur mit 1,5 eV etwas größer als der übliche Abstand zwischen  $(n = 1)$ - und  $(n = 2)$ -Zustand. Geht man davon aus, dass der mit  $(n = 2)$  bezeichnete Zustand in Abb. 4.21 a) zur Feinstruktur zählt und dass die berechnete Feinstruktur in Abb. 4.21 b) etwa bei  $B_3$  endet, so besitzen die gemessene und die berechnete Feinstruktur eine energetische Breite von etwa 5 eV. Diese Feinstruktur ist damit etwa doppelt so breit wie die Cu-Feinstruktur bzw. die Co-Feinstruktur unter  $\Theta = 70^\circ$ .

Es lässt sich auch an dieser Stelle nicht einwandfrei klären, ob der gemessene, mit  $(n = 2)$  bezeichnete Zustand in Abb. 4.21 a) tatsächlich der Feinstruktur angehört oder ob es sich um den mit  $B_3$  bezeichneten Braggzustand handelt, der bei abge-

schalteter Barriere in Abb. 4.21 c) an der Position der Feinstruktur zurückbleibt. Der Unterschied in deren energetischen Positionen von etwa 1 eV lässt hier keine eindeutige Zuordnung zu. Außerdem lassen die im Untergrund auftretenden Unterschiede zwischen gemessenen und berechneten Spektrum in Abb. 4.21 a) und b) vermuten, dass der Kristallbeitrag hier nicht ganz korrekt angenommen wird. Damit bleibt auch eine Unsicherheit für die energetische Position des mit  $B_3$  bezeichneten Braggzustands. Ebenso bleibt unklar, ob die Ursache für die energetische Verschiebung der Doppelmaximumstruktur im Vergleich vom gemessenen und berechneten Spektrum in der Wahl der Barrierenparameter oder im unterschiedlichen Untergrund an dieser Stelle liegt.

Es besteht aus experimenteller Sicht für beide Einfallswinkel  $\Theta$  und besonders für  $\Theta = 45^\circ$  der Bedarf an weiteren Rechnungen, in denen vor allem zuerst durch Korrekturen am Kristallbeitrag zum VLEED-Prozess der Untergrund bestehend aus  $B_1$  und  $B_2$  bzw. dem zu kleinen Energien ansteigenden Untergrund in der Messung zufriedenstellend wiedergegeben wird. Erst dann kann beurteilt werden, für welche Barrierenparameter die berechnete Feinstruktur mit der gemessenen übereinstimmt. Und erst dann sind Vergleiche zwischen Messung und Rechnung für weitere Azimutwinkel der Winkelserien sinnvoll.

In Abb. 4.22 ist die Oberflächenbarriere für Co/Cu(001) abgebildet, die bei den vorgestellten Rechnungen verwendet wurde.

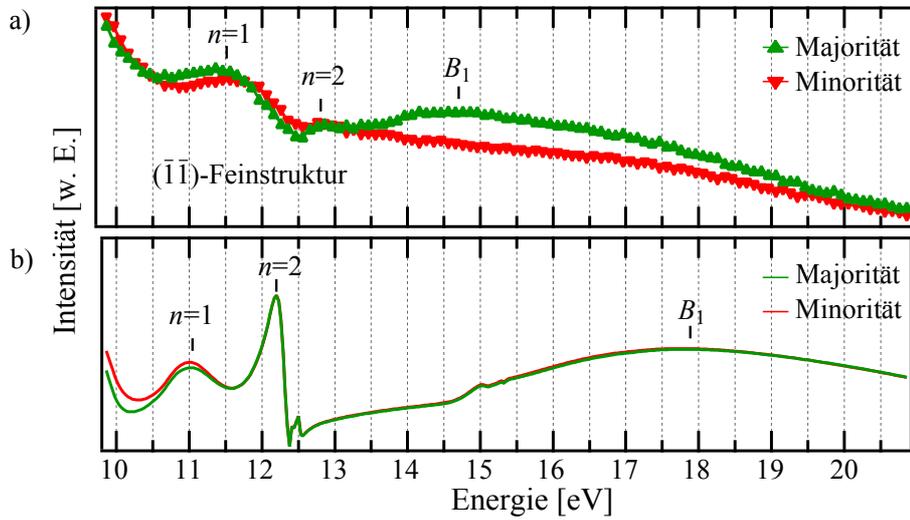


**Abbildung 4.22:** Oberflächenbarriere nach dem RM-Modell für Co/Cu(001), die zur Berechnung der hier vorgestellten theoretischen Spektren verwendet wird. Als Parameter der spinunabhängig angenommenen Barriere ergeben sich  $z_I = -1,800$  a. E.,  $z_A = -3,700$  a. E.,  $z_E = -0,075$  a. E. [Braun 2011].

Es handelt sich um ein RM-Modell, das wie beim Kupfer durch drei Parameter beschrieben wird, da die Barriere als spinunabhängig angenommen wird. Die Parameter betragen jetzt  $z_I = -1,800$  a. E.,  $z_A = -3,700$  a. E. und  $z_E = -0,075$  a. E. [Braun 2011]. Es liegen keine Fehlerangaben zu diesen Werten vor.

In Abb. 4.23 a) ist das Spektrum abgebildet, das spinaufgelöst unter  $\Theta = 70^\circ$  und  $\Phi = 37^\circ$  aufgenommen wurde. Es soll mit dem spinabhängig berechneten Spektrum in Abb. 4.23 b) verglichen werden, wobei die spinunabhängige Barriere aus Abb. 4.22 und ein spinabhängiger Kristallanteil verwendet wurden [Braun 2011].

Im berechneten Spektrum tritt im Maximum des ( $n = 1$ )-Zustands der  $(\bar{1}\bar{1})$ -Feinstruktur und auf dessen niederenergetischer Seite im Minimum und im Untergrund eine negative Spinasymmetrie auf. Das Minimum zeigt außerdem eine Spinaufspaltung von etwa 200 meV. Die übrigen Strukturen, d. h. die Feinstrukturzustände höherer Ordnung sowie der Braggzustand  $B_1$  zeigen keine Spinabhängigkeit.



**Abbildung 4.23:** Spinaufgelöst dargestellte VLEED-Spektren an Co/Cu(001) unter  $\Theta = 70^\circ$  und  $\Phi = 37^\circ$ , in einem Energiebereich, in dem die  $(\bar{1}\bar{1})$ -Feinstruktur beobachtet wird,

a) gemessen mit  $I_{Em} = 0,65 \mu\text{A}$  und

b) gerechnet mit einem spinunabhängigen RM-Barrierenmodell und einem spinabhängigen Kristallanteil ohne Berücksichtigung einer experimentellen Auflösung. Für Barrierenparameter siehe Text [Braun 2011].

Das berechnete Spektrum gibt somit nicht die bei der Messung beobachtete positive Spinasymmetrie und nicht die Spinaufspaltung des ( $n = 1$ )-Zustands wieder. Außerdem wird die Spinaufspaltung und die Asymmetrie im Minimum auf der energetisch höher gelegenen Seite des ( $n = 1$ ) nicht reproduziert. Gleiches gilt für die Spinasymmetrie im Braggzustand  $B_1$ . Die Spinaufspaltung im Minimum sowie die Asymmetrie im Untergrund auf der niederenergetischen Seite des ( $n = 1$ )-Zustands stimmen in Messung und Rechnung qualitativ überein.

Der Vergleich zwischen der Rechnung mit spinunabhängiger Barriere und der spinaufgelöst durchgeführten Messung liefert einen Hinweis auf die Spinabhängigkeit

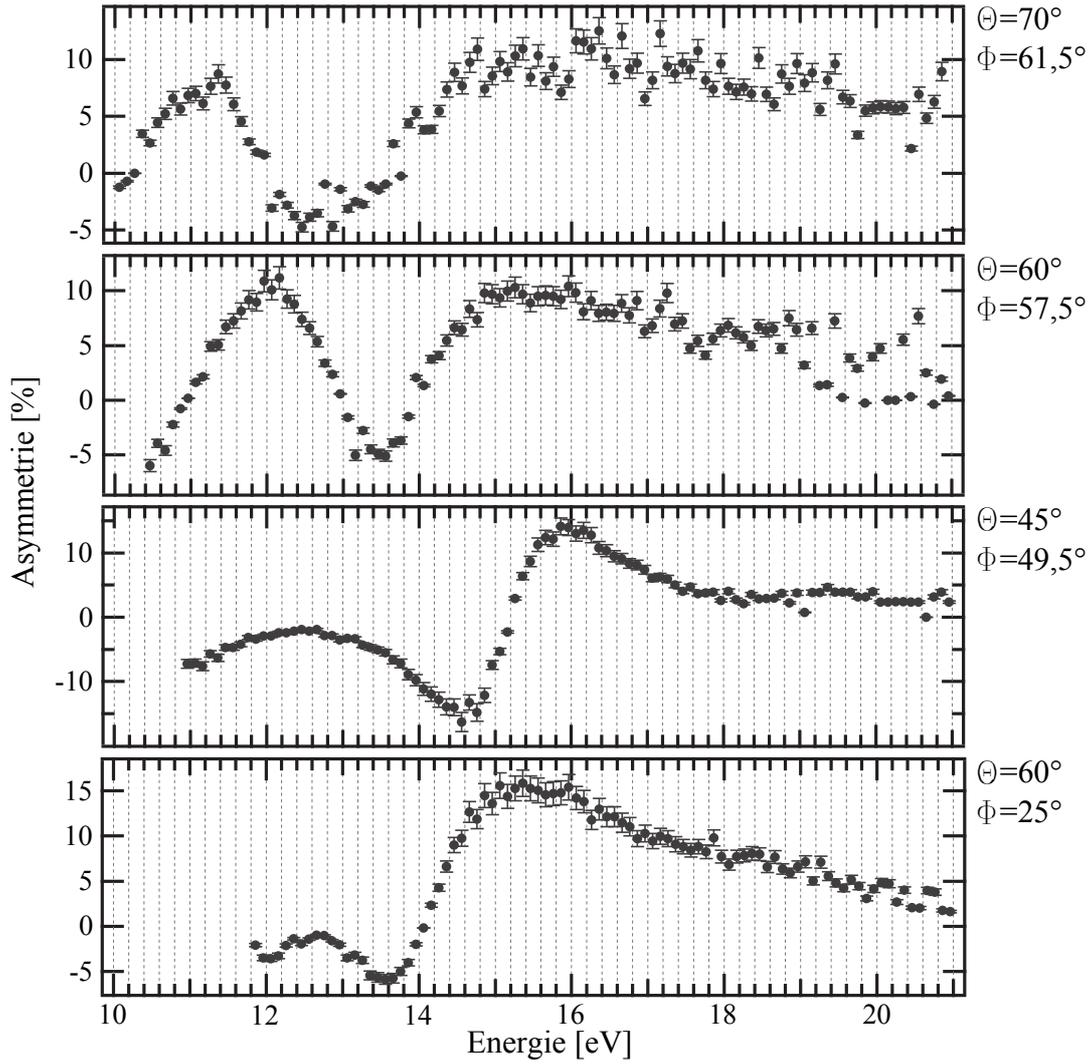
der Oberflächenbarriere der ferromagnetischen Co-Oberfläche. Die Rechnung unter Annahme einer spinunabhängigen Barriere weicht gerade in Bezug auf das Maximum des ( $n = 1$ )-Zustands und das Minimum auf dessen höherenergetischer Seite, die jeweils besonders empfindlich auf die Form und die Lage der Barriere sind, von der Messung ab. Es ist daher davon auszugehen, dass die Oberflächenbarriere von Co/Cu(001) spinabhängig ist. Für weitere Rechnungen zu diesem Probensystem sollte deshalb ein spinabhängiges Modell der Oberflächenbarriere verwendet werden. Allerdings gilt, dass auch im Rahmen der spinabhängigen theoretischen Rechnungen zunächst der Kristallbeitrag zur Elektronenstreuung überprüft werden muss, der das Auftreten u. a. des Braggzustand  $B_1$  bestimmt. Denn hier zeigt sich, dass nicht nur dessen gemessene energetische Position in der Rechnung nicht wiedergegeben wird, sondern auch dessen Spinabhängigkeit. Erst dann kann die Spinabhängigkeit der Feinstruktur, die auch durch einen spinabhängigen Untergrund beeinflusst wird, Gegenstand einer quantitativen Diskussion sein.

#### 4.2.4 Spinasymmetrie und Effizienz des VLEED-Experiments an Co/Cu(001)

In Bezug auf die Anwendung der spinabhängigen Streuung als Spindetektor ist die in Glg. 3.1 definierte Effizienz  $\epsilon$  des VLEED-Systems von Bedeutung. Dabei ist die in Glg. 3.3 eingeführte Asymmetriefunktion  $A$  eine wichtige Größe, da sie quadratisch eingeht. Sie ist ein Teil der spinaufgelösten Spektren, da sie bei der Normierung der gemessenen Intensität auf 100%ige Spinpolarisation der Elektronenquelle unter Berücksichtigung der Orientierung des Polarisationsvektors der Elektronen relativ zur Magnetisierungsrichtung der Probe eingeht. Deshalb konnte bei der Beschreibung der Winkelserien schon eine qualitative Abschätzung der Asymmetrie der Feinstruktur- und Braggzustände angegeben werden. Im Folgenden werden nun beispielhaft einige Asymmetriefunktionen in Abhängigkeit von der kinetischen Energie unter ausgewählten Einfallbedingungen der Elektronen vorgestellt.

Die größte Asymmetrie des ( $n = 1$ )-Zustands tritt für alle Einfallswinkel  $\Theta$  im Bereich von  $\Phi = [50^\circ, 60^\circ]$  auf (siehe z. B. Abb. 4.15 b). In Abb. 4.24 ist für jeden der drei diskutierten Winkel  $\Theta$  jeweils eine Asymmetriefunktion aus diesem Bereich dargestellt.

Die angegebenen Fehler ergeben sich durch Fehlerfortpflanzung für Glg. 3.3 unter Berücksichtigung einer Unsicherheit der Polarisation der Elektronen von  $\Delta P = \pm 3\%$ . Die systematischen Fehler bei der Bestimmung der Asymmetrie, die aufgrund der Unsicherheit des Einfalls- und Azimutwinkels  $\Delta\Theta$  und  $\Delta\Phi$  bzw. der Messung des Stroms für die jeweilige Spinorientierung der Elektronen entstehen, mitteln sich bei der Differenzbildung heraus. Sie werden daher nicht in die Fehlerrechnung einbezogen.



**Abbildung 4.24:** Asymmetrie als Funktion der kinetischen Energie der Elektronen für ausgewählte Winkel  $\Theta$  und  $\Phi$  aus VLEED-Spektren an Co/Cu(001) aus den zuvor vorgestellten Winkelserien.

Unter  $\Theta = 70^\circ$  und  $60^\circ$  ist die Spinasymmetrie des ( $n = 1$ )-Zustands positiv. Sie nimmt ein Maximum von

$$A_{n=1}^{\max}(\Theta = 70^\circ, \Phi = 61,5^\circ, E_{\text{kin}} = 11,36 \text{ eV}) = (9 \pm 1)\%$$

und

$$A_{n=1}^{\max}(\Theta = 60^\circ, \Phi = 57,5^\circ, E_{\text{kin}} = 12,16 \text{ eV}) = (11 \pm 1)\%$$

an. Aufgrund der Spinaufspaltung des ( $n = 1$ )-Zustands, folgt auf die positive Asymmetrie ein kleinerer negativer Unterschwinger von etwa  $A = -5\%$ .

Für  $\Theta = 45^\circ$  ist die Asymmetrie des ( $n = 1$ ) dagegen negativ. Sie beträgt im Maximum

$$A_{n=1}^{\max}(\Theta = 45^\circ, \Phi = 49,5^\circ, E_{\text{kin}} = 14,56 \text{ eV}) = (-16 \pm 1)\%$$

und es tritt kein Überschwinger auf. Bei etwa  $E_{\text{kin}} = 16 \text{ eV}$  nimmt die positive Asymmetrie des ( $n = 2$ )-Zustands ein Maximum von

$$A_{n=2}^{\max}(\Theta = 45^\circ, \Phi = 49,5^\circ, E_{\text{kin}} = 15,86 \text{ eV}) = (14 \pm 1)\%$$

an.

Im weiteren Verlauf der Winkelserie unter  $\Theta = 45^\circ$  für abnehmende  $\Phi$  wechselt die Asymmetrie des ( $n = 1$ )-Zustands das Vorzeichen und geht für  $\Phi \leq 25^\circ$  gegen Null. Auch unter  $\Theta = 70^\circ$  bzw.  $60^\circ$  kehrt sich das Vorzeichen der Asymmetrie des ( $n = 1$ )-Zustands für  $\Phi \leq 27,5^\circ$  bzw.  $\Phi \leq 25^\circ$  um, und im weiteren Verlauf liegt ein Untergrund mit dann negativer Spinasymmetrie vor. Als Beispiel dafür wird in Abb. 4.24 die Asymmetriefunktion unter  $\Theta = 60^\circ$  und  $\Phi = 25^\circ$  gezeigt. Dort wird auch die größte Asymmetrie des Braggzustands der  $\Theta = 60^\circ$  Serie von

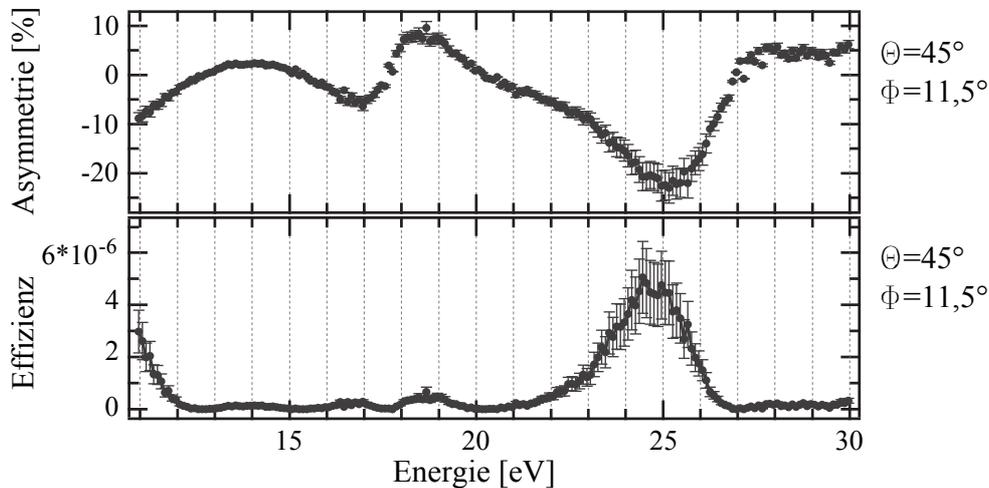
$$A_{B_1}^{\max}(\Theta = 60^\circ, E_{\text{kin}} = 15,36 \text{ eV}) = (16 \pm 1)\%$$

gemessen.

Die absolut größte Asymmetrie wird unter  $\Theta = 45^\circ$  und  $\Phi = 11,5^\circ$  im Braggzustand  $B_{1,\Theta=45^\circ}$  gemessen und beträgt

$$A_{B_1}^{\max}(\Theta = 45^\circ, \Phi = 11,5^\circ, E_{\text{kin}} = 25,16 \text{ eV}) = (-23 \pm 3)\%.$$

Die entsprechende Asymmetriefunktion ist in Abb. 4.25 dargestellt.



**Abbildung 4.25:** Asymmetrie sowie Effizienz der spinpolarisierten Streuung sehr niederenergetischer Elektronen an der Co/Cu(001)-Oberfläche unter  $\Theta = 45^\circ$  und  $\Phi = 11,5^\circ$  als Funktion der Energie. Bei  $E_{\text{kin}} = 24,5 \text{ eV}$  wird die maximale Effizienz angenommen.

Bei der Bestimmung der Effizienz  $\epsilon$  geht neben der Asymmetrie zusätzlich der bei der entsprechenden Energie der Elektronen im Analysator gemessene Strom relativ zum

einfallenden Strom ein. Berücksichtigt man das, werden die maximalen Werte für die Effizienz  $\epsilon$  unter  $\Theta = 45^\circ$  erzielt. Hier nimmt die Reflektivität der Co-Oberfläche ein Maximum als Funktion des Einfallswinkels an, während der Braggzustand  $B_{1,\Theta=45^\circ}$  maximale Asymmetrie bietet. Die zugehörige Effizienz  $\epsilon_{\max}$  unter  $\Theta = 45^\circ$  und  $\Phi = 11,5^\circ$  ist in Abb. 4.25 dargestellt. Die Fehlerbalken ergeben sich aus der Fehlerfortpflanzung für Glg. 3.1 mit  $\Delta A$  als Fehler der berechneten Asymmetriefunktion. Die hier erhaltene maximale Effizienz beträgt

$$\epsilon_{\max}(\Theta = 45^\circ, \Phi = 11,5^\circ, E_{\text{kin}} = 24,46 \text{ eV}) = (5,1 \pm 1,4) \cdot 10^{-6}.$$

Dieser Wert liegt in der Größenordnung der Effizienz von SPLEED-Detektoren, die in einem Bereich von  $10^{-7} - 10^{-4}$  liegen [Donath 1993]. Für VLEED-Detektoren in Anwendung werden Werte von  $\epsilon = 2 \cdot 10^{-3}$  für eine Fe/W(001) Oberfläche [Winkelmann et al. 2008] und  $\epsilon = 1,9 \cdot 10^{-2}$  für Fe(001)p(1x1)-O auf MgO(001) [Okuda et al. 2008] angegeben.

Es ist aber festzuhalten, dass es nicht Ziel dieser Arbeit war, die Effizienz zu optimieren, sondern die Feinstruktur zu untersuchen. Ansonsten hätte die Effizienz auch bei kleineren kinetischen Energien der Elektronen untersucht werden müssen. Außerdem hätte die Gegenspannung als Parameter optimiert werden müssen. Die ist für dieses Experiment so gewählt, dass die Feinstruktur mit bestem Intensitätsverhältnis zum Untergrund gemessen wird. Das ist für ein Energiefenster von 1,66 eV der Fall, für das die im Analysator gemessene Intensität sehr klein wird. [Winkelmann et al. 2008] wählen dagegen z. B. ein Energiefenster von drei bis vier Elektronenvolt. Laut der Autoren wird so die Zählrate deutlich erhöht, ohne Spinsensitivität zu verlieren.

Zum Vergleich ergibt sich im hier vorliegenden Experiment bei ausgeschaltetem Gegenfeld nach der Streuung ein um etwa  $2 \cdot 10^2$  größerer Strom im Analysator. Dann läge die Effizienz bei ansonsten gleichbleibenden Bedingungen bei  $\epsilon = 1 \cdot 10^{-3}$ , vorausgesetzt, die Spinasymmetrie des Braggzustands bliebe erhalten. Dieser Wert ist mit den für die VLEED-Detektoren angegebenen vergleichbar.

Die für die Co/Cu(001)-Oberfläche bestimmte Effizienz liegt in der gleichen Größenordnung wie die für Cu(001) bestimmte von  $\epsilon_{\text{Cu,max}} = 4,5 \cdot 10^{-6}$ .

Die Ursache dafür liegt in der im Vergleich zur Kupferoberfläche sehr viel geringeren Reflektivität der Kobaltoberfläche. Unter den Bedingungen, für die hier jeweils die maximale Effizienz angegeben wird, gilt für das Verhältnis vom im RFA gemessenen Strom  $I$  zum Emissionsstrom  $I_0$

$$\frac{(I/I_0)_{\text{Co}}}{(I/I_0)_{\text{Cu}}} = 1 \cdot 10^{-2}. \quad (4.5)$$

Hier stellt sich die Frage, ob die um Größenordnungen geringere Reflektivität der Co/Cu(001)-Oberfläche ein Indiz für eine nicht vollständig glatt präparierte Oberfläche ist, da bei einer größeren Rauigkeit der Co-Oberfläche deren Reflektivität im Vergleich zur Cu-Oberfläche zurückginge. Um zu überprüfen, ob das der Fall ist, müssen wiederum Messungen unter Variation der Präparationsparameter durchgeführt werden.

## 5 Zusammenfassung und Ausblick

In der vorliegenden Arbeit wird der Aufbau eines spinpolarisierten VLEED-Experiments beschrieben. Neben der Darstellung der theoretischen Grundlagen zur Bestimmung der Oberflächenbarriere im VLEED-Experiment erfolgt eine Charakterisierung des im Rahmen dieser Arbeit entstandenen VLEED-Messsystems. Dann werden die mit diesem Messsystem aufgenommenen Daten bezüglich des Auftretens der VLEED-Feinstruktur und der Bestimmung der Oberflächenbarriere diskutiert:

Im ersten Ergebnisteil werden VLEED- $I(V)$ -Kurven der Cu(001)-Oberfläche vorgestellt. Dabei werden die im Rahmen der Äquivalenten Auflösung zu beobachtenden Feinstrukturen nachgewiesen. Sie verhalten sich gemäß der in dieser Arbeit formulierten Erwartungen. Das gesamte Auftreten dieser Feinstrukturen bzgl. ihrer Form, ihrer energetischen Position, ihres Verhaltens als Funktion von Einfallswinkel  $\Theta$  und  $\Phi$  sowie der Untergrund in den VLEED-Spektren ist absolut in Übereinstimmung mit bereits veröffentlichten experimentellen Daten, soweit diese vorhanden sind [Hitchen und Thurgate 1988a, Hitchen und Thurgate 1988b, Hitchen et al. 1991].

An der Cu-Oberfläche wird wie erwartet die  $(\bar{1}\bar{1})$ -Feinstruktur am besten aufgelöst. Sie dispergiert als Funktion vom Azimutwinkel  $\Phi$  symmetrisch um  $\Phi = 45^\circ$  ( $\cong [100]$ -Richtung) und nimmt dort ihr energetisches Minimum an. Im Azimutwinkelbereich um  $\Phi = 45^\circ$  kann neben dem ( $n = 1$ )- und dem ( $n = 2$ )-Feinstrukturzustand eine Schulter aufgelöst werden, die einer Faltung aller Feinstrukturzustände höherer Ordnung ( $n \geq 3$ ) mit der Apparatefunktion des VLEED-Messsystems entspricht. Die energetische Position dieser ( $n \geq 3$ )-Schulter stimmt jeweils mit der Emergenzenergie, gegen die die Feinstruktur im zugehörigen VLEED-Spektrum konvergiert, überein. Die experimentell bestimmte Emergenzenergie entspricht im Rahmen des angegebenen apparativen Fehlers von  $\Delta E_S \leq 0,2 \text{ eV}$  der berechneten Emergenzenergie. Damit ist gezeigt, dass in diesem VLEED-Experiment die Emergenzenergie gebeugter Strahlen in einem Winkelbereich von  $\Phi$ , in dem die Äquivalente Auflösung eine Beobachtung der ( $n \geq 3$ )-Zustände als Schulter zulässt, zuverlässig bestimmt werden kann.

Während die ( $n = 1$ )- und ( $n = 2$ )-Zustände wie die Emergenzenergie die erwartete parabelförmige Dispersion als Funktion von  $\Phi$  zeigen, ergibt sich aus VLEED-Winkelserien in  $\Theta$  eine lineare Dispersion in  $E(k_{\parallel})$ -Diagrammen. Diese verläuft für die energetische Position der Feinstrukturzustände und die Emergenzenergie als Funktion von  $k_{\parallel}$  parallel und lässt auf einen konstanten energetischen Abstand untereinander, entsprechend der Anordnung in einer Rydberg-Serie, schließen. Der Abstand des ( $n = 2$ )-Zustands zur Emergenzenergie entspricht dabei dem im Rahmen der Rydberg-Serie der Feinstrukturzustände erwarteten Wert, während der

Abstand des ( $n = 1$ )-Zustands zur Emergenzenergie, in Übereinstimmung mit der Literatur, größer ist.

Wie die  $(\bar{1}\bar{1})$ -Feinstruktur verhält sich auch die  $(\bar{2}0)$ -Feinstruktur an Cu(001) mit ihrer parabelförmigen Dispersion als Funktion von  $\Phi$ , symmetrisch um  $\Phi = 0^\circ$  ( $\cong [110]$ -Richtung), entsprechend der formulierten Erwartungen. Zusätzlich wird in dieser Arbeit die  $(0\bar{2})$ -Feinstruktur beobachtet, die äquivalent zur  $(\bar{2}0)$ -Feinstruktur ist und symmetrisch um  $\Phi = 90^\circ$  als Funktion von  $\Phi$  dispergiert. Gemäß der Äquivalenten Auflösung werden hier jeweils zwei Feinstrukturzustände beobachtet. Eine Bestimmung der Emergenzenergie des jeweils beteiligten gebeugten Strahls kann hier anhand der energetischen Position des ( $n = 2$ )-Zustands innerhalb der Rydberg-Serie der Feinstrukturzustände erfolgen.

Im zweiten Ergebnisteil dieser Arbeit wird überprüft, ob die an Cu(001) gewonnenen Erkenntnisse auch für die Co/Cu(001)-Oberfläche Gültigkeit besitzen. An dieser Oberfläche wird im VLEED-Experiment ebenfalls eine  $(\bar{1}\bar{1})$ -Feinstruktur beobachtet, deren Zustände für verschiedene, festgehaltene Einfallswinkel  $\Theta$  jeweils auch die erwartete parabelförmige  $E(\Phi)$ -Dispersion zeigen.

Allerdings tritt die Feinstruktur hier mit geringerer Intensität im Vergleich zum Untergrund auf als an der Cu-Oberfläche. Eine Folge davon ist offensichtlich, dass in keinem der aufgenommenen VLEED-Spektren eine Schulter beobachtet wird, die den ( $n \geq 3$ )-Zuständen entspricht. Somit wird hier die energetische Position des ( $n = 2$ )-Zustands mit der berechneten Emergenzenergie verglichen, was zu ähnlichen Ergebnissen wie beim Kupfer führt.

Für den ( $n = 1$ )-Zustand ergeben sich bei Variation des Einfallswinkels unterschiedliche Abstände zur Emergenzenergie, was im Gegensatz zur Cu-Messung steht. Diese Diskrepanz tritt in Zusammenhang mit der Beobachtung einer Doppelmaximumstruktur im Bereich des ( $n = 1$ )-Zustands auf, deren Ausprägung ebenfalls eine Funktion von  $\Theta$  ist und die die Abweichungen vom erwarteten Verhalten des ( $n = 1$ )-Zustands verursacht. Als Folge davon besitzt die  $(\bar{1}\bar{1})$ -Feinstruktur an Co/Cu(001) für bestimmte Einfallswinkel  $\Theta$  eine größere energetische Ausdehnung als die an Kupfer. Die größte Übereinstimmung der  $(\bar{1}\bar{1})$ -Feinstruktur an Co/Cu(001) mit der an Cu(001) wird für den Winkel  $\Theta$  beobachtet, unter dem der Einfluss der Doppelmaximumstruktur auf die Feinstruktur am geringsten ist. Erste Berechnungen von VLEED-Spektren an Co/Cu(001) bestätigen das Auftreten dieser Doppelmaximumstruktur als Funktion von  $\Theta$  und führen zu dem Schluss, dass es sich um eine barriereninduzierte Struktur handelt.

Eine  $(\bar{2}0)$ -Feinstruktur an Co/Cu(001) wird in diesem Experiment nicht beobachtet.

Bei den spinaufgelösten Messungen treten sowohl bei den Messungen an Kupfer als auch an Kobalt signifikante Spinabhängigkeiten in den VLEED-Spektren auf.

In den Messungen an Cu(001) treten Spinasymmetrien sowohl in den Feinstrukturzuständen als auch in den Braggzuständen auf. Der Betrag der Asymmetrie variiert als Funktion des Azimutwinkels und spiegelt so die vierzählige Symmetrie der Oberfläche wieder. Bei Elektroneneinfall unter  $\Phi = 45^\circ$ , entlang der  $[100]$ -Richtung, wird

---

im gesamten VLEED-Spektrum keine Asymmetrie beobachtet.

Für die ferromagnetische Co-Oberfläche wird eine Spinaufspaltung der Feinstrukturzustände beobachtet, die für den ( $n = 1$ )-Zustand sowie das erste Minimum in der Größenordnung von 200 meV liegt. Für den ( $n = 2$ )-Zustand ist die Spinaufspaltung einfallswinkelabhängig entweder  $\leq 40$  meV oder ähnlich groß wie die des ( $n = 1$ )-Zustands. Die erhaltenen energetischen Positionen der Feinstrukturzustände für Majoritäts- und Minoritätselektronen zeigen ebenfalls jeweils die parabelförmige Dispersion als Funktion des Azimutwinkels. Auch für die Braggzustände im Untergrund der VLEED-Spektren an Co/Cu(001) werden sowohl z. T. Spinaufspaltungen sowie Spinasymmetrien beobachtet. Die aus der Asymmetrie bestimmte Effizienz der spinpolarisierten Streuung an Co/Cu(001) wird mit Literaturwerten und dem für Cu(001) bestimmten Wert verglichen.

Für beide Probensysteme werden theoretische Berechnungen von VLEED-Spektren von [Braun 2011] vorgestellt. Diese Rechnungen berücksichtigen sowohl den Beitrag der Oberflächenbarriere als auch des Kristalls zum VLEED-Streuprozess. Für einen eingeschränkten Winkelbereich in  $\Phi$  wird für die Kupferoberfläche eine gute Übereinstimmung sowohl in der  $(\bar{1}\bar{1})$ -Feinstruktur als auch im Untergrund, d. h. in den auftretenden Braggzuständen, erzielt. Darauf basierend wird die Oberflächenbarriere mit einem Barrierenmodell nach [Rundgren und Malmström 1977b] für Cu(001) modelliert und die zugehörigen Barrierenparameter angegeben. Für andere Winkelbereiche in  $\Phi$  ist die Übereinstimmung zwischen gemessenen und berechneten VLEED-Spektren deutlich schlechter, was vor allem auf Korrekturbedarf am Kristallbeitrag zum VLEED-Streuprozess und evtl. auch an den Barrierenparametern schließen lässt.

Die für diese Arbeit vorliegenden ersten berechneten VLEED-Spektren an ferromagnetischem Co/Cu(001) zeigen noch keine zufriedenstellende Übereinstimmung mit den Messungen, sowohl für die Feinstruktur als auch für die Braggzustände. Hier wurden die Rechnungen außerdem bisher nur mit einer nicht-spinabhängigen Oberflächenbarriere durchgeführt. Diese Rechnungen geben die Spinabhängigkeit der Feinstruktur, wie sie im Experiment beobachtet wird, nicht wieder. Das lässt darauf schließen, dass die Oberflächenbarriere der Kobaltoberfläche spinabhängig ist und in den Rechnungen als spinabhängig angenommen werden muss, um Übereinstimmung mit dem Experiment zu erzielen.

Es besteht zur Auswertung der in dieser Arbeit vorgestellten Daten daher der Bedarf an weiteren theoretischen Rechnungen sowohl für die Kupfer- als auch für die Kobaltoberfläche, um jeweils die Oberflächenbarriere und im Fall der Co-Oberfläche deren Spinabhängigkeit zu bestimmen. Dabei sollte auch eine Analyse erfolgen, aufgrund derer sich die Genauigkeit abschätzen lässt, mit der sich die Barrierenparameter auf der Grundlage dieses Experiments bestimmen lassen. Im Rahmen dieser Arbeit wird zunächst eine Abschätzung der oberen Grenze dieser Genauigkeit angegeben.

Weiterhin besteht Diskussionsbedarf bzgl. der an Kupfer unter  $\Phi = 0^\circ$  bzw.  $\Phi = 90^\circ$

beobachteten Asymmetrie, die nach jetzigem Kenntnisstand für diese Winkel aus Symmetriegründen nicht erwartet wird.

Von Seiten des Experiments ist das Auftreten des Bildpotentialzustands in IPE-Messungen an Co/Cu(001) ein Hinweis auf eine wohlpräparierte Oberfläche. Trotzdem wäre eine weitere Untersuchung der Umstände sinnvoll, die zu der vergleichsweise geringen Intensität der Feinstruktur von Kobalt führen.

Die auf der Grundlage der in dieser Arbeit vorgestellten Daten geführte Diskussion zeigt, dass dieses VLEED-Experiment dazu geeignet ist, Daten zu liefern, die eine Bestimmung der Oberflächenbarriere anhand der gemessenen Feinstruktur erlauben. Dabei spielt eine Rolle, dass ein großer Datensatz bzgl. Variation von Einfallswinkel und Azimutwinkel jeweils für große Energiebereiche zur Verfügung steht. So kann von Seiten der Theorie zum einen überprüft werden, ob mit der verwendeten Oberflächenbarriere die Feinstruktur über den gesamten Winkelbereich korrekt berechnet wird. Zusätzlich gibt der über einen großen Energiebereich gemessene Untergrund Hinweise darauf, ob der für die Rechnungen verwendete Beitrag des Kristalls zum VLEED-Streuprozess korrekt berechnet wird. Ein korrekt modellierter Untergrund erhöht auch die Genauigkeit, mit der die Oberflächenbarriere bestimmt wird. Ein großer Vorteil dieses experimentellen Aufbaus ist außerdem, dass neben dem VLEED-Messsystem das IPE-Messsystem zur Verfügung steht. So lässt sich die Oberfläche zunächst z. B. als Funktion der Präparationsparameter charakterisieren und dann die Auswirkung der verschiedenen Einflüsse auf die VLEED-Spektren bestimmen.

Basierend auf den in dieser Arbeit gewonnenen Erkenntnissen ist es daher in Zukunft sinnvoll, neben der Diskussion der bereits vorhandenen Daten, VLEED-Messungen an weiteren Probensystemen durchzuführen. Ziel der Messungen wäre zum einen, jeweils die Oberflächenbarriere zu bestimmen. Zum anderen könnten für Systeme wie Fe/W(001) oder Fe(001)p(1x1)-O auf MgO(001) die experimentellen Bedingungen zum Erzielen der bestmöglichen Effizienz bzgl. der spinpolarisierten Streuung von Elektronen untersucht werden. Dies wäre im Hinblick auf die Anwendung der spinpolarisierten Streuung als VLEED-Spindetektor von großem Interesse.

## 6 Summary and outlook

In this work a spin-polarised very-low-energy electron diffraction (SPVLEED) experiment is introduced. After a description of the basic theoretical principles to determine the surface barrier from VLEED measurements, a characterization of the whole VLEED apparatus is given. Then VLEED data are discussed in the context of the appearance of VLEED fine structure and surface barrier determination:

In the first part of this work, VLEED  $I(V)$  curves on the Cu(001) surface are presented. In accordance with the equivalent resolution, a fine structure is observed in these  $I(V)$  curves. This fine structure is measured as a function of energy for differing polar and azimuth angles of incidence. All in all, the presented data collected from the copper surface reflect the theoretical expectations in agreement with data published by [Hitchen und Thurgate 1988*a*, Hitchen und Thurgate 1988*b*, Hitchen et al. 1991].

At the copper surface the  $(\bar{1}\bar{1})$  fine structure is the most prominent feature. It is most easily observed (best energy resolution), when electrons approach the surface along the [100] direction, which corresponds to an azimuth angle of  $\Phi = 45^\circ$ . In addition to the first peak of the fine structure, a second member of the series is visible. A shoulder at the high energy side of the second peak cannot be simply assigned as the third member of the series, as it is a convolution of all higher order peaks with the apparatus function of the instrument.

Moving off the angle of  $\Phi = 45^\circ$ , there is an apparent loss of energy resolution, a consequence of the equivalent resolution. Further, the fine structure shows a parabolic dispersion around its minimum energetic position at  $\Phi = 45^\circ$ . In contrast to that, a linear dispersion of the fine structure is observed as a function of the polar angle of incidence  $\Theta$ . In  $E(k_{\parallel})$  diagrams the fine structure peaks are aligned in a Rydberg-like series with constant distance in energy.

Finally, the emergence energy of the diffracted beam, associated to the  $(\bar{1}\bar{1})$  fine structure, is determined as a function of  $\Phi$ . The results are in agreement with calculated emergence energies within the experimental error of  $\Delta E_S \leq 0,2 \text{ eV}$ . All in all, it is demonstrated that the emergence energy of diffracted beams can be deduced from this experiment.

Similar to the  $(\bar{1}\bar{1})$  fine structure, the  $(\bar{2}0)$  fine structure on Cu(001) reveals parabolic dispersion as a function of  $\Phi$ . Its minimum energetic position is now found at  $\Phi = 0^\circ$ . Additionally, a  $(0\bar{2})$  fine structure is observed, which is equivalent to the  $(\bar{2}0)$  fine structure and disperses around  $\Phi = 90^\circ$ . In accordance with the equivalent resolution, the first and second member of the fine structure are resolved. In this case the emergence energy can be deduced from the energetic position of the second member of the Rydberg series.

In the second part of this work, the validity of the findings for the Cu(001) surface with regard to the Co/Cu(001) surface is analysed. At this surface, a  $(\bar{1}\bar{1})$  fine structure is observed as well, and the peaks show the expected parabolic  $E(\Phi)$  dispersion. Now, due to a decrease in intensity vs. background ratio no shoulder is observed at the high energy side of the second peak of the  $(\bar{1}\bar{1})$  fine structure on the Co surface. Despite that, the dispersion of the second peak is comparable with the dispersion at the Cu surface regarding the calculated emergence energy.

In contrast to the findings on the Cu surface, the energetic distance between the first peak and the emergence energy varies as a function of  $\Theta$ . This discrepancy is accompanied by the appearance of a double maximum around the position of the first peak. As this feature occurs as a function of  $\Theta$  as well, the  $(\bar{1}\bar{1})$  fine structure exhibits a greater energetic expansion on cobalt than on copper for certain values of  $\Theta$ . Approaching values of  $\Theta$ , where the influence of the double maximum on the fine structure decreases, the similarity between the appearance of the  $(\bar{1}\bar{1})$  fine structure on cobalt and copper increases. First calculations of VLEED spectra for Co/Cu(001) confirm the existence of this double maximum feature and lead to the conclusion that it is a barrier-induced feature of the VLEED  $I(V)$  curves.

A  $(\bar{2}0)$  fine structure on Co/Cu(001) has not been observed.

Spin-polarised measurements reveal a significant spin dependence of the VLEED  $I(V)$  curves of the cobalt and the copper surface.

At the copper surface, spin asymmetries of the fine structure as well as of the Bragg peaks are observed. The magnitude varies as a function of azimuth angle resembling the four-fold symmetry of the fcc surface. For electron incidence along the [100] direction, the asymmetry equals zero.

At the ferromagnetic cobalt surface, a spin splitting of the fine structure is observed. It amounts to about 200 meV for the first maximum and minimum of the Rydberg series. Depending on the angle of incidence, the spin splitting of the second peak is  $\leq 40$  meV or it equals the splitting of the first peak. For the Bragg peaks measured on Co/Cu(001), a spin asymmetry and, additionally, in some cases a spin splitting is observed. From these asymmetries a figure of merit concerning the spin-polarised scattering is deduced.

In addition to the experimental data, first theoretical calculations done by [Braun 2011] on Cu(001) and Co/Cu(001) are presented. They contain simulations of the VLEED process, where the scattering contributions of the surface barrier and the crystal are included. The resulting  $I(V)$  curves are compared with the measurements with regard to the fine structure as well as the background, which mainly consists of the Bragg peaks.

For the copper surface, the calculations are in good agreement with the measured data, but for a limited range of azimuth angles only. Based upon these calculations and using a barrier model introduced by [Rundgren und Malmström 1977b], the

---

surface barrier for Cu(001) is deduced. For other azimuth angles there is less agreement between the calculated and the measured VLEED  $I(V)$  curves. This leads to the conclusion, that a refinement of the calculations is required. This refinement should contain corrections concerning the scattering contribution of the crystal and possibly of the surface barrier as well.

The first calculated VLEED  $I(V)$  curves available for ferromagnetic Co/Cu(001) do not show satisfactory agreement with the shape of the measured spectra, neither for the fine structure nor the Bragg peaks. Moreover, these calculations are not done with a spin-dependent surface barrier but only a spin-dependent crystal contribution. Thus, they do not reproduce the spin dependence of the fine structure. This implies that the surface barrier of cobalt is spin dependent.

To proceed with the analysis of the experimental data, in particular with determining the surface barrier and its spin dependence, refined calculations are required for both surfaces. In this context, the accuracy for determining barrier parameters from the comparison of calculations with experimental data should be estimated. Additionally, a discussion concerning the observed asymmetry on copper at  $\Phi = 0^\circ$  and  $\Phi = 90^\circ$  is required. Considering the current state of knowledge, the observed asymmetry is not expected due to the symmetry of the surface.

From the experimental side, the presence of the image-potential state in IPE measurements on Co/Cu(001) is an indication for a well-prepared surface. In spite of that, the decrease in intensity of the cobalt fine structure should be further investigated.

The discussion, which is carried out on the basis of the presented experimental data, leads to the conclusion that this experiment has proved to be capable of determining the surface barrier. Comparison with calculations confirms the importance of the availability of experimental data for differing experimental parameters to refine estimates of the surface barrier. On top of that, the background measured in the  $I(V)$  curves can be used to refine the estimate of the scattering contribution of the crystal in simulations of the VLEED process. Furthermore, the availability of the IPE system beside the VLEED system is a great advantage of this experimental set up, as it allows the characterization of the surface and subsequent analysis of the impact of surface quality on VLEED spectra.

Based on the knowledge obtained in this VLEED experiment, it proved to be reasonable to carry out further measurements on different sample systems to determine the surface barrier and its spin dependence. In addition, the Fe/W(001) and Fe(001)p(1x1)-O on MgO(001) surfaces could be analysed with regard to an application as VLEED spin detector. In this context, experimental conditions for a maximum figure of merit concerning the spin-polarised scattering at these surfaces are of great interest.



# Literaturverzeichnis

- Adnot, A. und Carette, J. D. (1977), 'High-resolution study of low-energy-electron-diffraction threshold effects on W(001) surface', *Phys. Rev. Lett.* **38**, 1084.
- Allmers, T. (2009), Magnetic nanostructures: influence of morphologie on electronic and magnetic properties, PhD thesis, Westfälische Wilhelms-Universität Münster.
- Alvarado, S., Feder, R., Hopster, H., Ciccacci, F. und Pleyer, H. (1982), 'Simultaneous probing of exchange and spin-orbit interaction in spin-polarized low-energy electron diffraction from magnetic surfaces', *Z. Phys. B: Condens. Matter* **49**, 129.
- Andersson, S. (1970), 'Resonances in low-energy electron diffraction from the copper (001) surface', *Surf. Sci.* **19**, 21.
- Ashcroft, M.W., M. N. D. (1976), *Solid State Physics*, Holt, Rinehart, and Winston, New York.
- Bardeen, J. (1940), 'The image and van der Waals forces at a metallic surface', *Phys. Rev.* **58**, 727.
- Baribeau, J. M. und Carette, J. D. (1981), 'Observation and angular behavior of Rydberg surface resonances on W(110)', *Phys. Rev. B* **23**, 6201.
- Bauer, P., Feder, R. und Müller, N. (1980), 'Longitudinal spin polarization and symmetries in low-energy-electron diffraction: experiment and theory for Pt(111)', *Solid State Commun.* **36**, 249.
- Borstel, G. und Thörner, G. (1988), 'Inverse photoemission from solids: theoretical aspects and applications', *Surface Science Reports* **8**, 1.
- Bosse, J. C. L., Lopez, J., Gaubert, C., Gauthier, Y. und Baudoing, R. (1982), 'Threshold effects in LEED: resonance or interference effects?', *J. Phys. C: Solid State Phys.* **15**, 3425.
- Braun, J. (2011), Persönliche Mitteilung. Ludwig-Maximilians-Universität München.
- Braun, J., Math, C., Postnikov, A. und Donath, M. (2002), 'Surface resonances versus surface states on Fe(110)', *Phys. Rev. B* **65**, 184412.
- Budke, M., Renken, V., Liebl, H., Rangelov, G. und Donath, M. (2007), 'Inverse photoemission with energy resolution better than 200 meV', *Rev. Sci. Instrum.* **78**, 083903.
- Burgbacher, U. (2010), 'Experimenteller Zugang zur Spinabhängigkeit der Oberflächenbarriere', Diplomarbeit, Westfälische Wilhelms-Universität Münster.

- Cutler, P. und Davis, J. (1964), 'Reflection and transmission of electrons through surface potential barriers', *Surf. Sci.* **1**, 194.
- Demtröder, W. (2004), *Experimentalphysik 3: Atome, Moleküle, Festkörper*, Springer-Verlag Berlin Heidelberg New York.
- Dietz, R. E., McRae, E. G. und Campbell, R. L. (1980), 'Saturation of the image potential observed in low-energy electron reflection at Cu(001) surface', *Phys. Rev. Lett.* **45**, 1280.
- Donath, M. (1993), 'Recent developments in surface and thin film magnetism probed by spin-polarized electrons', *Surf. Sci.* **287**, 722.
- Donath, M. (1994), 'Spin-dependent electronic structure at magnetic surfaces: the low-Miller-index surfaces of nickel', *Surf. Sci. Rep.* **20**, 251.
- Donath, M. (2010), Persönliche Mitteilung. Westfälische Wilhelms-Universität Münster.
- Donath, M., Dose, V., Ertl, K. und Kolac, U. (1990), 'Polarization effects in inverse-photoemission spectra from Ni(110)', *Phys. Rev. B* **41**, 5509.
- Echenique, P. M. und Pendry, J. B. (1978), 'The existence and detection of Rydberg states at surfaces', *J. Phys. C: Solid State Phys.* **11**, 2065.
- Edwards Jr, D. und Propst, F. M. (1972), 'Influence of O<sub>2</sub> adsorption on the intensity distribution of electrons scattered from W(100)', *J. Chem. Phys.* **56**, 3184.
- Ertl, G., K. J. (1985), *Low-Energy Electrons and Surface Chemistry*, VHC Verlagsgesellschaft Weinheim.
- Fauster, T. (2002), 'Elektronen nahe Metalloberflächen: Bildpotentialzustände', *Physik in unserer Zeit* **33**, 68.
- Feder, R. (1977), 'Theoretical spin polarization and intensity profiles in LEED from low-index surfaces of tungsten', *Surf. Sci.* **63**, 283.
- Feder, R. (1981), 'Spin-polarised low-energy electron diffraction', *J. Phys. C: Solid State Phys.* **14**, 2049.
- Feder, R. (2011), Persönliche Mitteilung. Universität Duisburg-Essen.
- Feder, R. und Kirschner, J. (1981), 'Spin-polarized low-energy electron diffraction: theory, experiment and analysis of results from W(001)(1 × 1)', *Surf. Sci.* **103**, 75.
- Funnemann, D. und Merz, H. (1986), '10 eV photon detector for inverse photoemission', *J. Phys. E: Sci. Instrum.* **19**, 554.
- Gaubert, C., Baudoing, R., Gauthier, Y. und Rundgren, J. (1984), 'General aspects of beam threshold effects in LEED', *Surf. Sci.* **147**, 162.
- Gaubert, G., Baudoing, R., Gauthier, Y., Bosse, J. C. L. und Lopez, J. (1983), 'On the extraction of surface barrier potentials from threshold effects in LEED: saturation on Cu(001) revisited', *J. Phys. C: Solid State Phys.* **16**, 2625.

- Grass, M., Braun, J., Borstel, G., Schneider, R., Durr, H., Fauster, T. und Dose, V. (1993), 'Unoccupied electronic states and surface barriers at Cu surfaces', *Journal of Physics: Condensed Matter* **5**, 599.
- Hammer, L. (2010), Persönliche Mitteilung. Friedrich-Alexander Universität Erlangen-Nürnberg.
- Heinz, K. (1988), 'Structural analysis of surfaces by LEED', *Prog. Surf. Sci.* **27**, 239.
- Heinz, K. (2009), Persönliche Mitteilung. Friedrich-Alexander Universität Erlangen-Nürnberg.
- Höfer, U., Shumay, I. L., Reuß, C., Thomann, U., Wallauer, W. und Fauster, T. (1997), 'Time-resolved coherent photoelectron spectroscopy of quantized electronic states on metal surfaces', *Science* **277**, 1480.
- Hitchen, G. J., Thurgate, S. M. und Jennings, P. J. (1991), 'Determination of the surface-potential barrier of Cu(001) from low-energy-electron-diffraction fine structure', *Phys. Rev. B* **44**, 3939.
- Hitchen, G. und Thurgate, S. (1988a), 'Azimuthal angular dependence of LEED fine structure from Cu(001)', *Surf. Sci.* **197**, 24.
- Hitchen, G. und Thurgate, S. (1988b), 'Determination of azimuth angle, incidence angle, and contact-potential difference for low-energy electron-diffraction fine-structure measurements', *Phys. Rev. B* **38**, 8668.
- Hitchen, G., Thurgate, S. und Jennings, P. (1990), 'A LEED fine structure study of oxygen adsorption on Cu(001) and Cu(111)', *Austr. J. Phys.* **43**, 519.
- Jennings, P. und Jones, R. (1978), 'Spin-dependent features in LEED intensity curves', *Surf. Sci.* **71**, 101.
- Jennings, P. und Price, G. (1980), 'The surface barrier structure of copper (001)', *Surf. Sci.* **93**, L124.
- Jennings, P. und Thurgate, S. (1981), 'The inner potential in LEED', *Surf. Sci.* **104**, L210.
- Jones, R. O. und Jennings, P. J. (1983), 'Fine-structure analysis of spin-polarized low-energy electron diffraction from W(001)', *Phys. Rev. B* **27**, 4702.
- Jones, R. O. und Jennings, P. J. (1988), 'LEED fine structure: origins and applications', *Surf. Sci. Rep.* **9**, 165.
- Jones, R. O., Jennings, P. J. und Jepsen, O. (1984), 'Surface barrier in metals: a new model with application to W(001)', *Phys. Rev. B* **29**, 6474.
- Kirschner, J. und Feder, R. (1979), 'Spin polarization in double diffraction of low-energy electrons from W(001): experiment and theory', *Phys. Rev. Lett.* **42**, 1008.
- Kolac, U., Donath, M., Ertl, K., Liebl, H. und Dose, V. (1988), 'High-performance GaAs polarized electron source for use in inverse photoemission spectroscopy', *Rev. Sci. Instrum.* **59**, 1933.

- Krewer, J. W., Dürr, W., Pescia, D. und Feder, R. (1990), 'Spin-polarized electron diffraction from Pb(110): surface barrier and non-spherical potential effects', *Solid State Commun.* **74**, 137.
- Lauzier, J., de Bersuder, L. und Hoffstein, V. (1971), 'Observation of surface-state resonances in low-energy electron-diffraction rotation diagrams for Al', *Phys. Rev. Lett.* **27**, 735.
- Liebl, H. (2006), Persönliche Mitteilung.
- MacRae, A. U. (1963), 'Low-energy electron diffraction', *Sci.* **139**, 379.
- Mai, W. (2009), Persönliche Mitteilung. Westfälische Wilhelms-Universität Münster.
- Malmström, G. und Rundgren, J. (1981), 'Rydberg resonances in spin polarised LEED', *J. Phys. C: Solid State Phys.* **14**, 4937.
- McRae, E. G. (1971), 'Surface-state resonances in low-energy electron diffraction', *Surf. Sci.* **25**, 491.
- McRae, E. G. (1979), 'Electronic surface resonances of crystals', *Rev. Mod. Phys.* **51**, 541.
- McRae, E. G., Aberdam, D., Baudoing, R. und Gauthier, Y. (1978), 'Electronic surface resonances of Ni(001) and Ni(001) $c(2 \times 2)S$  observed by LEED', *Surf. Sci.* **78**, 518.
- McRae, E. G. und Caldwell Jr., C. (1967), 'Observation of multiple scattering resonance effects in low energy electron diffraction studies of LiF, NaF and graphite', *Surf. Sci.* **7**, 41.
- McRae, E. G. und Caldwell Jr., C. W. (1964), 'Low-energy electron diffraction study of lithium fluoride (100) surface', *Surf. Sci.* **2**, 509.
- McRae, E. G. und Jennings, P. J. (1969), 'Surface-state resonances in low-energy electron diffraction', *Surf. Sci.* **15**, 345.
- McRae, E. G., Pierce, D. T., Wang, G. C. und Celotta, R. J. (1981), 'Polarized-low-energy-electron-diffraction study of the mechanism of electron reflection from W(001) at low energies', *Phys. Rev. B* **24**, 4230.
- Nekovee, M., Crampin, S. und Inglesfield, J. E. (1993), 'Magnetic splitting of image states at Fe(110)', *Phys. Rev. Lett.* **70**, 3099.
- Nekovee, M. und Inglesfield, J. E. (1995), 'Theory of image states at magnetic surfaces', *Progr. Surf. Sci.* **50**, 149.
- Nolting, W. (1990), *Grundkurs: Theoretische Physik 3 Elektrodynamik*, Zimmermann-Neufang Verlag - Ulmen.
- Nolting, W. (1993), *Grundkurs: Theoretische Physik 5/2 Quantenmechanik*, Zimmermann-Neufang Verlag - Ulmen.
- Okuda, T., Takeichi, Y., Maeda, Y., Harasawa, A., Matsuda, I., Kinoshita, T. und Kakizaki, A. (2008), 'A new spin-polarized photoemission spectrometer with very high efficiency and energy resolution', *Rev. Sci. Instrum.* **79**, 123117.

- Passek, F., Donath, M., Ertl, K. und Dose, V. (1995), 'Longer living majority than minority image state at Fe(110)', *Phys. Rev. Lett.* **75**, 2746.
- Pendry, J. B. (1974), *Low Energy Electron Diffraction*, Academic Press - London and New York.
- Pierce, D. T., Celotta, R. J., Wang, G. C. und McRae, E. G. (1981), 'Spin dependence of electronic surface resonance scattering from W(100)', *Solid State Commun.* **39**, 1053.
- Pierce, D. T. und Meier, F. (1976), 'Photoemission of spin-polarized electrons from GaAs', *Phys. Rev. B* **13**, 5484.
- Premper, J., Trautmann, M., Henk, J. und Bruno, P. (2007), 'Spin-orbit splitting in an anisotropic two-dimensional electron gas', *Phys. Rev. B* **76**, 073310.
- Price, G. L., Jennings, P. J., Best, P. E. und Cornish, J. C. L. (1979), 'Electronic surface resonances of Cu(001)', *Surf. Sci.* **89**, 151.
- Read, M. N. und Jennings, P. J. (1978), 'Surface barrier structure analysis using LEED', *Surf. Sci.* **74**, 54.
- Renken, V. (2007), Electron confinement and quantum-well states in two dimensional magnetic systems, PhD thesis, Westfälische Wilhelms-Universität Münster.
- Rundgren, J. und Malmström, G. (1977a), 'Surface-resonance fine structure in low-energy electron diffraction', *Phys. Rev. Lett.* **38**, 836.
- Rundgren, J. und Malmström, G. (1977b), 'Transmission and reflection of low-energy electrons at the surface barrier of a metal', *J. Phys. Condens. Matter* **10**, 4671.
- Sachs, R. G. und Dexter, D. L. (1950), 'Quantum limits of the electrostatic image force theory', *J. Appl. Phys.* **21**, 1304.
- Samarin, S. N., Williams, J. F., Sergeant, A. D., Artamonov, O. M., Gollisch, H. und Feder, R. (2007), 'Spin-dependent reflection of very-low-energy electrons from W(110)', *Phys. Rev. B* **76**, 125402.
- Scheunemann, T., Feder, R., Henk, J., Bauer, E., Duden, T., Pinkvos, H., Poppa, H. und Wurm, K. (1997), 'Quantum well resonances in ferromagnetic Co films', *Solid State Commun.* **104**, 787.
- Schmidt, A. B. (2007), Spin-dependent electron dynamics in front of ferromagnetic surfaces, PhD thesis, Freie Universität Berlin.
- Schneider, C. M., Bressler, P., Schuster, P., Kirschner, J., de Miguel, J. J. und Miranda, R. (1990), 'Curie temperature of ultrathin films of fcc-cobalt epitaxially grown on atomically flat Cu(100) surfaces', *Phys. Rev. Lett.* **64**, 1059.
- Seah, M. P. und Dench, W. A. (1979), 'Quantitative electron spectroscopy of surfaces: a standard data base for electron inelastic mean free paths in solids', *Surface and Interface Analysis* **1**, 2.
- Tamura, E. und Feder, R. (1982), 'Surface magnetism of Fe(110) from polarized electron scattering', *Solid State Commun.* **44**, 1101.

- Thiede, C. (2010), 'Über Transmissionsmessungen an  $\text{CaF}_2$  Kristallen im Vakuum ultravioletten Spektralbereich', Diplomarbeit, Westfälische Wilhelms-Universität Münster.
- Thurgate, S. und Hitchen, G. (1985), 'An electron spectrometer for LEED fine structure measurements', *Appl. Surf. Sci.* **24**, 202.
- Thurgate, S. und Jennings, P. (1982), 'Observations of LEED fine structure on the low-index planes of copper', *Surf. Sci.* **114**, 395.
- Thurgate, S. M. und Sun, C. (1995), 'Very-low-energy electron-diffraction analysis of oxygen on  $\text{Cu}(001)$ ', *Phys. Rev. B* **51**, 2410.
- van Hove, M. A. und Pendry, J. B. (1975), 'Dynamical low energy electron diffraction methods', *J. Phys. C: Solid State Phys.* **8**, 1362.
- van Hove, M. A., W. W. H. C. C.-M. (1986), *Low-Energy Electron Diffraction*, Springer-Verlag Berlin Heidelberg.
- Waller, G. und Gradmann, U. (1982), 'Spin-polarized electron scattering from ferromagnetic  $\text{Fe}(110)$  films on  $\text{W}(110)$ ', *Phys. Rev. B* **26**, 6330.
- Willis, R. F. (1978), 'Surface-resonance-band fine structure in low-energy-electron diffraction from  $\text{W}(001)$ ', *Phys. Rev. B* **17**, 909.
- Winkelmann, A., Hartung, D., Engelhard, H., Chiang, C.-T. und Kirschner, J. (2008), 'High efficiency electron spin polarization analyzer based on exchange scattering at  $\text{Fe}/\text{W}(001)$ ', *Rev. Sci. Instrum.* **79**, 083303.
- Yates Jr., J. T. (1998), *Experimental Innovations in Surface Science*, Springer.
- Yu, D. H., Donath, M., Braun, J. und Rangelov, G. (2003), 'Spin-polarized unoccupied quantum-well states in ultrathin Co films on  $\text{Cu}(100)$ ', *Phys. Rev. B* **68**, 155415.
- Yu, D., Math, C., Meier, M., Escher, M., Rangelov, G. und Donath, M. (2007), 'Characterisation and application of a SPLEED-based spin polarisation analyser', *Surf. Sci.* **601**, 5803.





# Lebenslauf



# Danksagung

Im Folgenden möchte ich allen danken, die zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben,

- Prof. Dr. Markus Donath dafür, mir die Möglichkeit gegeben zu haben, seine Idee vom spinpolarisierten VLEED umzusetzen, für wertvolle Diskussionen während meiner Promotion, sowie für die Vielzahl an Möglichkeiten, an Tagungen und Workshops teilzunehmen.
- Dr. Anke B. Schmidt dafür, sich so oft Zeit für die Diskussion physikalischer, apparativer oder sonst wie gearteter Fragen genommen zu haben, mit einer ansteckenden Begeisterung für das Betreiben von „Spitzenforschung“. Ich bin immer sehr gern (auf einen Tee, ...) zum Daten anschauen vorbeigekommen, was stark dazu beigetragen hat, das Beste aus dem Experiment (und mir selbst) herauszuholen.
- Ulrich Burgbacher für die gute Zusammenarbeit während seiner Diplomarbeit.
- apl. Prof. Dr. Jürgen Braun für viele Diskussionen theoretischer Natur, vor allem zum Ende dieser Arbeit, und für die Bereitstellung der theoretischen VLEED-Spektren und der Barriere.
- Prof. em. Dr. R. Feder von der Universität Duisburg-Essen für seine Diskussionsbereitschaft bei Fragen bezüglich des spinpolarisierten VLEED.
- Hubert Wensing und Werner Mai, die besonders zur Konstruktion der UHV-Apparatur und der Entwicklung der Messelektronik des Experiments beigetragen haben. Dank der Zusammenarbeit wurden apparative und elektronische Hürden nie zu ernsthaften Problemen.
- allen Mitarbeitern der Feinmechanischen Werkstatt des Physikalischen Instituts der WWU, besonders Werner David, Stephan Diekmann und Jürgen Zeder, für den Bau der größten bis hin zu den allerkleinsten Teilen meiner Apparatur und dafür, im Labor immer gerne mit Rat und Tat zur Stelle gewesen zu sein.
- der gesamten AG Donath, insbesondere auch Sabine Goßling im Sekretariat, für die gute Arbeitsatmosphäre und die Bereitschaft, sich jederzeit untereinander zu unterstützen und mit anzupacken, wenn's nötig ist. Außerdem für die vielen kleinen (und größeren) Gelegenheiten zwischendurch (und nach der Arbeit) sich mit guter Laune anzustecken.

- Anna Zumbülte für die gute Stimmung im Büro, den Kuchen, den Zusammenhalt zwischen uns Mädels (EGAL worum es geht), für das Bereitstellen von Maggie für Testmessungen und natürlich auch für die physikalischen Diskussionen zwischendurch.
- Christian Eibl, der immer versucht hat, sich in die aktuelle VLEED-Problematik reinzudenken und mir damit oft weitergeholfen hat.
- auch „Prof. Wahnsinn“ dafür, dass er uns immer wieder unermüdlich die Welt erklärt.

Ganz besonderer Dank gilt meinen Eltern, die mich im Studium und während der Promotion immer unterstützt und ermutigt haben, den Weg zu gehen, den ich mir ausgesucht habe. Ohne sie wäre vieles nicht möglich gewesen.

Und meinem Christoph, für seine unerschütterlich optimistische Art, Dinge anzugehen, die irgendwie ein bisschen auf mich abgefärbt hat und mir beim Basteln, Messen und Schreiben so sehr geholfen hat. Du bist das Beste was mir passieren konnte.