

# Magnetische Austauschkraftmikroskopie

Dissertation  
zur Erlangung des Doktorgrades  
im Department Physik  
der Universität Hamburg

vorgelegt von

**Uwe Kaiser**  
aus Leer/Ostfriesland

Hamburg  
2007

Gutachter der Dissertation:

Prof. Dr. R. Wiesendanger

Prof. Dr. R. L. Johnson

Prof. Dr. Ch. Gerber

Gutachter der Disputation:

Prof. Dr. R. Wiesendanger

Prof. Dr. H. P. Oepen

Datum der Disputation:

8.6.2007

Vorsitzender des Prüfungsausschusses:

Dr. M. Martins

Vorsitzender des Promotionsausschusses:

Prof. Dr. G. Huber

Dekan der MIN-Fakultät:

Prof. Dr. A. Frühwald

# Inhaltsverzeichnis

<b>Einleitung</b>	<b>1</b>
<b>1 Grundlagen</b>	<b>3</b>
1.1 Der Magnetismus des Festkörpers . . . . .	3
1.1.1 Magnetismus auf makroskopischer Skala . . . . .	3
1.1.2 Der Magnetismus auf atomarer Ebene . . . . .	7
1.2 Rasterkraftmikroskopie . . . . .	12
1.2.1 FM-RKM . . . . .	12
1.2.2 Die Messsonde . . . . .	15
1.2.3 Kräfte zwischen Spitze und Probe . . . . .	17
1.2.4 $\Delta f(z)$ -Spektroskopiekurven . . . . .	25
1.2.5 Dreidimensionale $\Delta f(x, y, z)$ -Spektroskopiefelder . . . . .	28
1.2.6 Energiedissipation durch nicht-konservative Wechselwirkungen . . . . .	29
1.2.7 Dissipationsmechanismen . . . . .	30
<b>2 Magnetische Austauschkraftmikroskopie</b>	<b>35</b>
2.1 Einleitung . . . . .	35
2.2 Vorarbeiten am Modellsystem NiO(001) . . . . .	39
2.2.1 Simulationsrechnungen . . . . .	39
2.2.2 Experimentelle Arbeiten . . . . .	40
2.2.3 Experimentelle Anforderungen . . . . .	42
2.3 Der experimentelle Aufbau . . . . .	45
2.3.1 Das Tieftemperatur-Rasterkraftmikroskop . . . . .	45
2.3.2 Das faseroptische Interferometer . . . . .	47
2.3.3 Auflösungsgrenzen und Rauschquellen der Messapparatur . . . . .	50
<b>3 Präparation und Charakterisierung der Messspitzen</b>	<b>55</b>
3.1 Methoden zur Präparation der Messspitzen . . . . .	55
3.1.1 Spitzenkollisionen auf der NiO-Oberfläche . . . . .	60

3.1.2	Spitzenkollisionen auf der Ni(111)-Oberfläche . . . . .	62
3.2	Charakterisierung der Spitze im Rasterkraftmikroskop . . . . .	65
3.2.1	Strukturelle Charakterisierung der Spitze . . . . .	65
3.2.2	Elektrische Eigenschaften der Spitze . . . . .	65
3.2.3	Magnetische Charakterisierung der Spitze . . . . .	69
3.2.4	Atomare Auflösung auf der Ni(111)-Oberfläche . . . . .	70
<b>4</b>	<b>Topographische Untersuchung der NiO(001)-Oberfläche</b>	<b>73</b>
4.1	Eigenschaften von Nickeloxid . . . . .	73
4.2	Präparation der NiO(001)-Oberfläche . . . . .	75
4.3	Untersuchung von Defekten . . . . .	77
4.4	Atomare Auflösung . . . . .	80
4.5	Dissipativer Kontrast . . . . .	81
4.6	Kontraständerungen durch Spitzenwechsel . . . . .	83
<b>5</b>	<b>Experimente zur magnetischen Austauschkraftmikroskopie</b>	<b>87</b>
5.1	Die verwendeten Messsonden . . . . .	88
5.2	Magnetischer Austauschkontrast auf NiO(001) . . . . .	89
5.2.1	Ausschluss oszillatorischer Rauschquellen . . . . .	91
5.2.2	Ausschluss eines Spitzenartefaktes . . . . .	92
5.2.3	Quantifizierung des Kontrastes . . . . .	94
5.2.4	Dissipativer Kontrast . . . . .	98
5.2.5	Magnetischer Austauschkontrast auf den Nickel- und den Sauerstoffatomen . . . . .	102
5.2.6	Spitzenwechsel in MAKM-Bildern . . . . .	106
5.2.7	Vergleich der gemessenen Kontraste mit verschiedenen Fe-beschichteten Messsonden . . . . .	113
5.3	Messungen auf NiO(001) mit Ni-beschichteten Spitzen . . . . .	114
5.4	Abbildung von NiO(001) mit Gd-beschichteten Spitzen . . . . .	116
5.5	Untersuchung der MnO(001)-Oberfläche . . . . .	118
5.5.1	Eigenschaften von Manganoxid . . . . .	118
5.5.2	Präparation der MnO-Proben . . . . .	119
5.5.3	Atomare Auflösung auf der MnO(001)-Oberfläche . . . . .	121
<b>6</b>	<b>Dreidimensionale Kraftspektroskopiefelder</b>	<b>125</b>
6.1	Motivation . . . . .	126
6.2	Experimentelle Vorgehensweise . . . . .	128
6.3	Umrechnung der $\Delta f(z)$ -Kurven . . . . .	133
6.4	Berechnung der dissipierten Energie . . . . .	140
6.5	Abstandsabhängige Untersuchung . . . . .	144
6.6	Charakterisierung des vordersten Spitzenendes . . . . .	146

6.6.1	Betrachtung des $E_{\text{SP}}(x, y, z)$ - und des $F_z(x, y, z)$ - Feldes . . . . .	149
6.6.2	Untersuchung des dissipativen Kontrastes . . . . .	165
<b>7</b>	<b>Zusammenfassung und Ausblick</b>	<b>173</b>
<b>A</b>	<b>Bildbearbeitung und -auswertung</b>	<b>187</b>
A.1	Ebenenabgleich . . . . .	187
A.2	Linienabgleich . . . . .	187
A.3	Mittelung über ein regelmäßiges Atomgitter . . . . .	189
A.4	Fouriertransformation . . . . .	190
A.5	Vertikale Schnitte in Spektroskopiefeldern . . . . .	192
<b>B</b>	<b>Einfluss oszillatorischer Rauschquellen</b>	<b>193</b>
<b>C</b>	<b>Störeffekte bei der Abbildung</b>	<b>195</b>
	<b>Veröffentlichungen</b>	<b>197</b>
	<b>Konferenzbeiträge</b>	<b>199</b>
	<b>Danksagung</b>	<b>201</b>



# Zusammenfassung

Die vorliegende Arbeit behandelt die erstmalige, eindeutige, experimentelle Realisierung der magnetischen Austauschkraftmikroskopie (MAKM). Die MAKM basiert auf der Rasterkraftmikroskopie (hier im dynamischen Nichtkontaktmodus) und erlaubt die atomar aufgelöste, spinsensitive Abbildung von Oberflächen, unabhängig von deren elektrischer Leitfähigkeit, durch Messung der kurzreichweitigen magnetischen Austauschkräfte zwischen den Spins des vordersten Atoms der Messsonde und dem darunterliegenden Probenatom.

Im ersten Teil der Arbeit wird das generelle Konzept der magnetischen Austauschkraftmikroskopie erklärt und es werden die experimentellen Anforderungen diskutiert. Außerdem wird ausführlich auf Techniken zur Präparation und Charakterisierung der verwendeten Messsonden und der Proben eingegangen.

Die Messergebnisse werden im zweiten Teil der Arbeit vorgestellt. In einem Magnetfeld mit einer Flussdichte von 5 T wurden Messungen bei einer Temperatur von 8 K durchgeführt, bei denen mit Hilfe einer eisenbeschichteten Messsonde simultan die chemische ( $1\times 1$ )- und die magnetische ( $2\times 1$ )-Oberflächeneinheit zelle der (001)-Oberfläche des antiferromagnetischen Isolators NiO abgebildet werden konnte. Der magnetische Kontrast ist dabei sowohl im Topographie- als auch im Dissipationskanal sichtbar. In manchen der auf diese Weise gemessenen Bilder treten diskrete Änderungen im magnetischen Kontrast auf, die mit Umkonfigurationen des vordersten Spitzenendes erklärbar sind. Außerdem wurden mit nickel- bzw. gadoliniumbedampften Messsonden auf der NiO(001)-Oberfläche sowie mit eisenbedampften Messsonden auf der MnO(001)-Oberfläche Messungen im Magnetfeld durchgeführt, bei denen die atomar aufgelöste Abbildung der chemischen Einheitszelle gelang, eine magnetische Abbildung jedoch nicht möglich war.

Bei weiteren Messungen wurde mittels atomar aufgelöster Rasterkraftspektroskopie mit einer nickelbeschichteten Messsonde ein Spektroskopiefeld aus  $64\times 64$  Kurven auf der NiO(001)-Oberfläche aufgenommen. Durch eine Optimierung der Messparameter und aufgrund der großen Stabilität des

verwendeten Mikroskops gelang es, eine praktisch driftfreie Messung durchzuführen. Allerdings war es nicht möglich, in diesem Messmodus magnetische Auflösung zu erzielen. Jedoch konnten aus den Messdaten das Wechselwirkungspotential, die Kraft, sowie die dissipierte Energie zwischen Spitze und Probe mit hoher räumlicher Auflösung rekonstruiert werden. Bei der Analyse der Spektroskopiefelder lag das Hauptaugenmerk nicht wie üblich auf den Eigenschaften der Probe, sondern es wurde die Wechselwirkung der Spitze mit der symmetrischen (001)-Oberfläche der Probe ausgenutzt, um Aussagen bezüglich der Struktur und der Relaxationseffekte der vordersten Spitzenatome zu machen.



# Abstract

The present work deals with the first unambiguous experimental realisation of magnetic exchange microscopy (MExFM). MExFM is based on atomic force microscopy (here in the dynamic non-contact mode) and allows the atomically resolved, spin-sensitive mapping of surfaces, independent of their electrical conductance, by measuring the magnetic exchange force between the spins of the foremost probe tip atom and the surface atom underneath.

In the first part of this work the general concept of magnetic exchange force microscopy is explained and experimental prerequisites are discussed. Furthermore, techniques for preparation and characterization of the probes and the samples that were used are addressed in detail.

Experimental results are presented in the second part of this work. Using an iron-coated probe tip, measurements were carried out at a temperature of 8 K and in a magnetic field with a flux density of 5 T. It was possible to image the chemical  $(1\times 1)$ - and the magnetic  $(2\times 1)$ -surface unit cell of the (001)-surface of the antiferromagnetic insulator NiO simultaneously. A magnetic contrast is present in the topography- as well as in the dissipation-channel. Some of the presented images show discrete jumps in the magnetic contrast, which can be explained by reconfigurations of the foremost tip apex. Besides that, nickel- and gadolinium-coated probes were used for measurements in a magnetic field on the (001)-surface of NiO and iron-coated probes for the (001)-surface of MnO. In these cases an atomically resolved mapping of the chemical unit cell was obtained whereas a magnetic imaging was not possible.

Further measurements were performed by using atomically resolved scanning force spectroscopy with a nickel-coated probe resulting in the successful measurement of a spectroscopy field with  $64\times 64$  curves on the NiO(001)-surface. By optimizing measurement parameters and because of the high stability of the microscope that was used, it was possible to perform an almost drift-free measurement. However, a magnetic imaging was not possible in this mode. Using the data, a reconstruction of the interaction potential, the force and the dissipated energy between probe and sample were done with high spatial resolution. Instead of the usual approach where one is mainly

interested in sample properties, the data are analyzed with respect to the structure and the relaxation effects at the foremost tip apex atoms.

# Einleitung

In der Festkörperphysik spielt die Untersuchung magnetischer Phänomene eine wichtige Rolle. Viele der dabei in der Vergangenheit gemachten Entdeckungen fanden bereits ihren Weg in technische Anwendungen und erfahren dabei zum Teil eine weite Verbreitung im alltäglichen Gebrauch. So wurden zum Beispiel in den vergangenen Jahrzehnten zahllose Fortschritte auf dem Gebiet der Datenspeichertechnologie gemacht, die zu einer immer weitergehenden Miniaturisierung moderner Speichermedien geführt haben. Dabei spielen auch Entwicklungen auf dem Gebiet der Spinelektronik, das ebenfalls ein bedeutendes Anwendungsgebiet für magnetische Materialien bildet, eine wichtige Rolle [1]. Hier wird an Bauelementen gearbeitet, bei denen nicht nur die Ladung der Elektronen, sondern auch deren Spin ausgenutzt wird. Die Weiterentwicklung dieser Technologien und die Erforschung magnetischer Phänomene in nanoskaligen Systemen ist eng verknüpft mit der Möglichkeit der magnetisch sensitiven Untersuchung von Oberflächen hinunter bis zur atomaren Auflösung.

Ein wichtiges Instrument bei der Erforschung solcher Systeme ist die spinpolarisierte Rastertunnelmikroskopie [2, 3]. Sie ermöglicht auf elektrisch leitfähigen Oberflächen die atomar aufgelöste Untersuchung mit magnetischer Sensitivität. Während diese Messmethode für Studien auf metallischen Oberflächen in den vergangenen Jahren etabliert werden konnte, blieb dagegen die orts aufgelöste magnetische Untersuchung isolierender Oberflächen auf atomarer Größenskala bislang unmöglich.

Anders als die Rastertunnelmikroskopie [4, 5] ist die Rasterkraftmikroskopie (RKM) nicht auf elektrisch leitfähige Materialien beschränkt [6]. So können mit dieser Technik bereits seit gut zehn Jahren Isolatoren mit wahrer atomarer Auflösung untersucht werden [7]. Eine magnetische Mikroskopietechnik, die auf der RKM basiert, ist die Magnetkraftmikroskopie (MKM) [8]. Dabei werden die magnetostatischen Wechselwirkungen zwischen einer magnetischen Spitze und einer magnetischen Probe genutzt, um die Domänenstruktur der Probenoberfläche abzubilden. Im Gegensatz zur MKM sollen bei der magnetischen Austauschkraftmikroskopie (MAKM) die kurzreichwei-

tigen magnetischen Austauschkräfte zwischen Spitze und Probe gemessen werden. Damit sollte eine atomar aufgelöste magnetische Abbildung einer elektrisch isolierenden Oberfläche möglich sein.

In der vorliegenden Arbeit gelang erstmalig der eindeutige Nachweis einer erfolgreichen Messung der magnetischen Austauschwechselwirkung zwischen der Spitze und der Probe eines Rasterkraftmikroskops und damit die Realisierung der magnetischen Austauschkraftmikroskopie. Dabei war es möglich, auf der (001)-Oberfläche des Antiferromagneten NiO neben der chemischen auch die magnetische Einheitszelle der Oberfläche aufzulösen, so dass damit die Machbarkeit der magnetischen Austauschkraftmikroskopie unter Beweis gestellt wird. Für die Zukunft eröffnen sich mit der neuen Messmethode zahlreiche Möglichkeiten zur Untersuchung nanostrukturierter Oberflächen, unabhängig von deren elektrischer Leitfähigkeit. Insbesondere können die magnetischen Austauschkraftwechselwirkungen zwischen einzelnen Atomen genauer untersucht werden.

Es werden in den nun folgenden Kapiteln zunächst die erforderlichen Rahmenbedingungen für ein erfolgreiches MAKM-Experiment beschrieben. So wird die verwendete Messapparatur erläutert und auf die Auswahl geeigneter Messsonden besonders eingegangen. Bei den durchgeführten Experimenten wurden verschiedene Ansätze verfolgt, um die magnetische Austauschwechselwirkung zu messen. Diese werden vorgestellt und die jeweiligen Messergebnisse ausführlich diskutiert.

# Kapitel 1

## Grundlagen

In den folgenden Unterkapiteln werden einige grundlegende Zusammenhänge geklärt, die zum Verständnis der Abschnitte über die experimentellen Ergebnisse benötigt werden. Zunächst wird der Magnetismus des Festkörpers mit seinen verschiedenen Ausprägungen behandelt, bevor im Anschluss die Funktionsweise des verwendeten Rasterkraftmikroskops erläutert wird. Insbesondere wird auch auf die Berechnung des Wechselwirkungspotentials bzw. der Kraft zwischen Spitze und Probe sowie auf die unterschiedlichen Dissipationsmechanismen eingegangen.

### 1.1 Der Magnetismus des Festkörpers

Der Magnetismus des Festkörpers wird durch die magnetischen Momente sowie deren Ordnung auf atomarer Skala bestimmt. Diese Momente entstehen durch den Spin und das Bahnmoment der Elektronen im Atom. Sind die Schalen eines Atoms vollbesetzt mit Elektronen, so kompensieren sich die magnetischen Momente der Elektronenspins gegenseitig und der Gesamtspin ist Null. Bei einer nicht vollbesetzten äußeren Schale entsteht dagegen ein permanentes magnetisches Moment.

#### 1.1.1 Magnetismus auf makroskopischer Skala

Bei der Betrachtung makroskopischer Festkörper treten unterschiedliche magnetische Erscheinungsformen auf, die in Diamagnetismus, Paramagnetismus und kollektiven Magnetismus unterteilt werden.

Diamagnete wie z.B. He, Ne, Ar oder Bi sind dadurch ausgezeichnet, dass sie auf atomarer Ebene kein permanentes magnetisches Moment besitzen, da ihre Atome abgeschlossene Schalen aufweisen. Ein Diamagnet erfährt eine

schwache abstoßende Wechselwirkung in einem externen Magnetfeld. Anschaulich kann der Diamagnetismus als Induktionseffekt gedeutet werden, bei dem durch ein äußeres Magnetfeld ein magnetisches Moment induziert wird, welches nach der Lenz'schen Regel dem einwirkenden Feld entgegenwirkt und so für die beobachtete repulsive Wechselwirkung sorgt.

Paramagnete wie z.B.  $O_2$ , Pt oder Al verfügen auf atomarer Skala über permanente magnetische Momente (Spins), die im Grundzustand ungeordnet sind, so dass die Gesamtpolarisation des Festkörpers Null ist. Durch Anlegen eines äußeren Magnetfeldes wird die magnetische Polarisation von Null verschieden, da die magnetischen Momente entlang der Feldrichtung ausgerichtet werden. Entfernt man das Magnetfeld, so geht auch die Gesamtpolarisation wieder vollständig auf Null zurück.

Im Gegensatz zu Para- und Diamagneten gibt es zahlreiche Materialien, in denen es zur Ausbildung einer spontanen Ordnung der magnetischen Momente auf atomarer Skala kommt, ohne dass ein äußeres Magnetfeld angelegt ist. Charakteristisch ist dabei die Existenz einer kritischen Temperatur, bei der ein Phasenübergang in den paramagnetischen Zustand erfolgt. Folgende Fälle werden gesondert betrachtet:

- 1.) **Ferromagnetismus:** unterhalb der Curietemperatur  $T_{\text{Curie}}$  entsteht hier bevorzugt eine parallele Ausrichtung der magnetischen Momente der Atome. Anders als bei den Paramagneten bleibt bei Ferromagneten nach Entfernen des Magnetfeldes eine von Null verschiedene magnetische Polarisation eingeprägt (Remanenz). Beispiele dafür sind die Elemente Fe, Co, Ni und Gd, Legierungen, die diese Elemente enthalten wie Permalloy und andere Materialien wie EuO.
- 2.) **Antiferromagnetismus:** hier existieren zwei gleich starke ferromagnetische Untergitter, die antiparallel zueinander stehen. Das resultierende magnetische Moment ist somit gleich Null. Die kritische Temperatur heißt hier Néeltemperatur  $T_{\text{Néel}}$ . Antiferromagnetisches Verhalten zeigen zum Beispiel das Element Cr, aber auch viele Übergangsmetalloxide wie NiO und MnO oder die Difluoride  $MnF_2$  und  $FeF_2$ .
- 3.) **Ferrimagnetismus:** wie beim Antiferromagnetismus existieren unterschiedliche Untergitter, allerdings kompensieren sich deren magnetische Momente nicht vollständig, so dass die resultierende magnetische Polarisation ungleich Null ist. Typische Ferrimagnete sind  $Fe_3O_4$ ,  $CoFe_2O_4$  und  $Y_3Fe_5O_{12}$ .

In vielen Fällen kommt es in solchen Festkörpern zur Ausbildung von magnetischen Domänen, also Bereichen mit gleichartig ausgerichteten Momenten, die relativ zueinander verdreht orientiert sind. Durch die Entstehung

von Domänen kann häufig die Gesamtenergie verringert werden. Sie wird bestimmt durch eine Reihe von Energiebeiträgen, die im Folgenden kurz behandelt werden sollen<sup>†</sup>.

### Anisotropieenergie

Betrachtet man die magnetische Energie eines Ferromagneten für verschiedene Kristallachsen, so wird durch den Anisotropieterm eine Richtungsabhängigkeit beschrieben, die auf die Spin-Bahn-Wechselwirkung zurückgeht. Im einfachsten Fall tritt z.B. bei hexagonalen oder tetragonalen Kristallgittern eine uniaxiale Kristallanisotropie auf, die durch die folgende Formel beschrieben wird:

$$E_{\text{Aniso}} = \int K_{u1} \sin^2 \theta + K_{u2} \sin^4 \theta + \dots dV \quad (1.1)$$

Dabei sind  $K_{u1}$  und  $K_{u2}$  die Anisotropiekonstanten, und  $\theta$  ist der Winkel zwischen der Anisotropieachse und der Magnetisierungsrichtung. Für den Fall  $\theta = 0$  besteht somit ein deutliches Energieminimum, wodurch die leichte Achse der Magnetisierung gekennzeichnet wird, die vorzugsweise eingenommen wird.

Für die Magnetisierung an der Oberfläche eines Festkörpers spielt die Oberflächenanisotropie eine wichtige Rolle. Es gilt:

$$E_{\text{OF}} = \int K_S [1 - (\vec{m} \cdot \vec{n})^2] dF \quad (1.2)$$

Dabei ist  $\vec{m}$  die Probenmagnetisierung,  $\vec{n}$  die Oberflächennormale und  $K_S$  die Anisotropiekonstante. Ist  $K_S$  positiv, so wird die Energie minimal, wenn der Magnetisierungsvektor senkrecht zur Oberfläche steht. Dieser Energieterm ist insbesondere für dünne Filme relevant. Der Ursprung der Oberflächenanisotropie liegt in der reduzierten Symmetrie der atomaren Umgebung an der Oberfläche. Analog kann auch für die Grenzflächen zwischen einem ferromagnetischen und einem nicht-magnetischen Material ein solcher Energieterm angesetzt werden.

---

<sup>†</sup>Eine ausführliche Beschreibung findet sich beispielsweise in [9].

### **Zeeman-Energie**

Wird ein Ferromagnet in ein äußeres Magnetfeld  $\vec{H}_{\text{ex}}$  gebracht, so entsteht als weiterer Energiebeitrag die Zeeman-Energie, die durch den folgenden Term ausgedrückt wird:

$$E_{\text{Zee}} = - \int \vec{H}_{\text{ex}} \cdot \vec{J} dV \quad (1.3)$$

Ist das äußere Magnetfeld homogen, so hängt die Energie nur von der mittleren magnetischen Polarisation  $\vec{J}$  und nicht von der Domänenstruktur oder der Form des Ferromagneten ab.

### **Streifeldenergie**

Durch die magnetische Polarisation des Festkörpers entsteht ein Magnetfeld, welches als Streufeld  $\vec{H}_{\text{Streu}}$  bezeichnet wird. Die Energie, die darin gespeichert wird, bestimmt sich aus der folgenden Formel:

$$E_{\text{Streu}} = -\frac{1}{2} \int_{\text{Probe}} \vec{H}_{\text{Streu}} \cdot \vec{J} dV \quad (1.4)$$

Daraus wird auch deutlich, dass Eindomänenzustände eines Festkörpers im allgemeinen aufgrund der damit verbundenen sehr hohen Streifeldenergie energetisch ungünstig sind und daher in realen Systemen nur unterhalb einer kritischen Partikelgröße vorkommen, die typischerweise im Nanometerbereich liegt.

### **Austauschenergie**

Ein weiterer wesentlicher Beitrag zur Gesamtenergie des Systems ist die Austauschenergie. Sie führt dazu, dass sich in einem Ferromagneten die magnetischen Momente parallel ausrichten. Ohne konkurrierende Energiebeiträge würde dies zu einer homogenen magnetischen Polarisation führen. Es gilt:

$$E_{\text{Aust}} = A \int (\text{grad } \vec{m})^2 dV \quad (1.5)$$

Dabei ist  $\vec{m}$  die Magnetisierung der Probe und  $A$  die Austauschkonstante des Materials. Die Austauschenergie spielt auch in Antiferromagneten und Ferrimagneten eine wichtige Rolle und sorgt dort für eine antiparallele Ausrichtung der atomaren magnetischen Momente. Sie wird im folgenden Abschnitt detailliert behandelt.



### 1.1.2 Der Magnetismus auf atomarer Ebene

Um die Verhältnisse auf atomarer Ebene zu beschreiben, ist eine quantenmechanische Beschreibung erforderlich. Allerdings existiert kein geschlossenes Modell, das alle Fälle des kollektiven Magnetismus umfasst. Eine gute Beschreibung liefert in vielen Fällen das Heisenberg-Modell. Danach wird die Situation durch den folgenden Hamilton-Operator ausgedrückt:

$$\hat{H} = - \sum_{ij} J_{ij} \vec{S}_i \cdot \vec{S}_j \quad (1.6)$$

Dabei ist  $J_{ij}$  das sogenannte Austauschintegral, das durch die folgende Beziehung bestimmt wird:

$$J_{ij} = e^2 \iint \frac{\psi_i^*(\vec{r}_i) \psi_i(\vec{r}_j) \psi_j^*(\vec{r}_j) \psi_j(\vec{r}_i) d^3r_i d^3r_j}{|\vec{r}_i - \vec{r}_j|} \quad (1.7)$$

Es beschreibt die Austauschwechselwirkungen zwischen den vektoriellen Spinoperatoren  $\vec{S}_i$  und  $\vec{S}_j$  im betrachteten Festkörper, die für die beschriebenen kollektiven Ordnungsphänomene verantwortlich sind. Der Begriff des Austauschintegrals bezieht sich darauf, dass gegenüber dem quantenmechanischen Coulomb-Integral die Elektronen-Koordinaten ausgetauscht erscheinen. Ferromagnetische Ordnungen führen zu positiven Werten für  $J_{ij}$ , antiferromagnetische entsprechen negativen Werten für das Austauschintegral. Die verschiedenen Ausprägungen der Austauschwechselwirkungen werden im folgenden Abschnitt behandelt.

#### Direkter Austausch

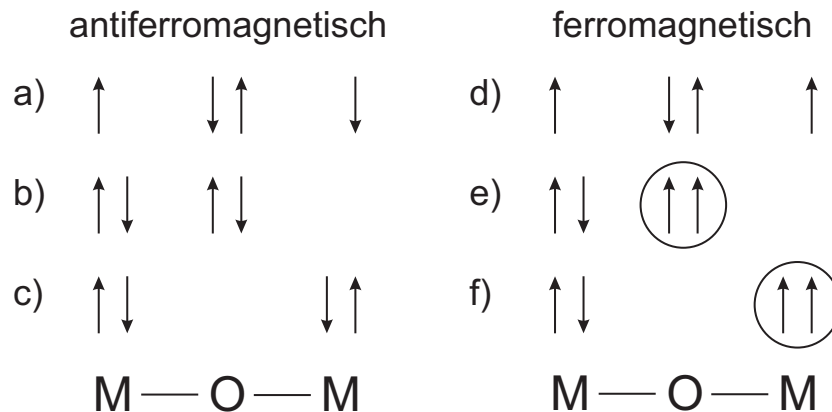
Bringt man zwei Atome mit nicht vollbesetzten Schalen so nah zusammen, dass ein Überlapp der Orbitale entsteht, so kommt es zu einer spinabhängigen Austauschwechselwirkung. Die Ursache dafür liegt im Pauli-Prinzip begründet. Danach ist es verboten, dass zwei Elektronen in allen ihren Quantenzahlen übereinstimmen. In dem beschriebenen Fall ist daher die antiparallele Ausrichtung der Elektronen energetisch bevorzugt und es kommt für die parallele Ausrichtung zu einer abstoßenden Wechselwirkung.

Da die Wechselwirkung auf dem direkten Überlapp von Orbitalen basiert, fällt sie wie der Radialanteil der Orbitale etwa exponentiell ab und ist daher kurzreichweitig mit einer Abfalllänge von circa 100 pm. Die Wechselwirkung wirkt somit nur direkt zwischen Atomen mit überlappenden, nicht-abgesättigten Schalen und heißt daher direkte Austauschwechselwirkung. Es

ist bemerkenswert, dass die magnetische Ordnung der Atome in einem Gitter letztlich auf die Coulomb-Wechselwirkung zurückgeht und es sich dabei um einen rein quantenmechanischen Effekt handelt.

### Superaustausch

Zahlreiche ionische Verbindungen wie z.B. Übergangsmetalloxide (NiO, MnO, FeO,...) oder auch manche Difluoride (MnF<sub>2</sub>, FeF<sub>2</sub>, CoF<sub>2</sub>,...) weisen eine antiferromagnetische Ordnung mit Néeltemperaturen von einigen hundert Kelvin auf. Der direkte Austausch scheidet als Erklärung dafür aus, da die Orbitale der spintragenden Metallatome in diesen Gittern kaum überlappen. So ist beispielsweise beim NiO jedes Nickelatom von einem Sauerstoffoktaeder umgeben, so dass zwischen zwei Nickelatomen immer ein Sauerstoffatom liegt. Die magnetische Ordnung in diesen Materialien kann mit dem Superaustauschmechanismus erklärt werden [11–13], wobei die diamagnetischen Sauerstoffatome als Vermittler für die Austauschkräfte zwischen den Nickelatomen auftreten. Da es sich bei NiO nicht um einen reinen Ionenkristall handelt, gibt es einen großen Anteil an kovalenten Bindungen, die einen magnetischen Austausch ermöglichen. Zwischen den 3*d*-Orbitalen der Nickelatome und den 2*p*-Orbitalen der Sauerstoffatome herrscht ein starker Überlapp und es können Elektronen-Übergänge zwischen Sauerstoff und



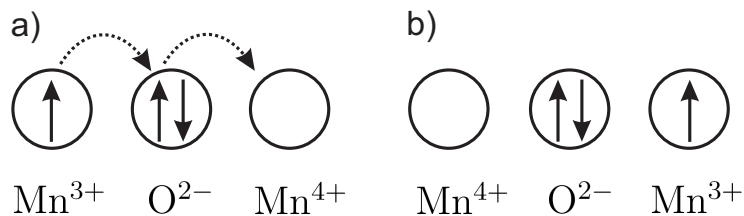
**Abbildung 1.1:** Prinzip des Superaustausches in einem magnetischen Oxid. Die Pfeile repräsentieren die vier beteiligten Spins, die auf die Metallionen M und das Sauerstoffion O verteilt sind. Im antiferromagnetischen Fall gibt es den Grundzustand a), der durch je zwei Elektronenübergänge in den Zustand b) oder c) übergehen kann. Beim ferromagnetischen Fall sind die beiden Spins der Metallionen im Grundzustand d) parallel angeordnet. Die Elektronenübergänge in den Zustand e) bzw. f) sind verboten, da die eingekreisten Konfigurationen durch das Pauli-Prinzip ausgeschlossen sind. In diesem Beispiel ist die antiferromagnetische Ordnung also klar bevorzugt (Abbildung nach [10]).

Nickel auftreten. Die Energien für die Übergänge sind infolge der Hundschen Regeln abhängig von der relativen Spinorientierung und es kommt zu einer entsprechenden Austauschwechselwirkung.

Zur Verdeutlichung wird das Prinzip in Abbildung 1.1 anhand eines Moleküls aus zwei Metallionen mit jeweils einem ungepaarten Elektron und einem Sauerstoffion mit zwei  $p$ -Elektronen gezeigt. In der antiferromagnetischen Konfiguration gibt es neben dem Grundzustand a) die angeregten Zustände b) und c). Die Elektronen sind also delokalisiert über das Molekül, wodurch sich ihre kinetische Energie verringert. Im Gegensatz dazu existiert im ferromagnetischen Zustand nur der Grundzustand d) mit lokalisierten Elektronen, da e) und f) infolge des Pauli-Prinzips verbotene Zustände sind. Dadurch ist der antiferromagnetische Zustand energetisch günstiger und es kommt zu einer dementsprechenden Ordnung im Festkörper. Der Superaustausch ist nicht immer eine antiferromagnetische Kopplung, allerdings ist der ferromagnetische Superaustausch schwächer und tritt seltener auf.

### Doppelaustausch

Bei manchen Oxiden tritt eine ferromagnetische Wechselwirkung auf, die mit dem so genannten Doppelaustausch erklärt werden kann [14] (siehe Abbildung 1.2). Entscheidend für diese Wechselwirkung ist die Existenz von magnetischen Ionen mit gemischten Valenzzuständen. Als Beispiel seien hier die Manganite genannt, bei denen es sowohl  $\text{Mn}^{3+}$ - als auch  $\text{Mn}^{4+}$ -Ionen im Festkörper gibt, die jeweils oktaedrisch von Sauerstoffionen umgeben sind. Im  $\text{Mn}^{3+}$ -Ion gibt es vier, getreu den Hundschen Regeln parallel ausgerichtete Elektronen, von denen drei  $t_{2g}$ -Zustände besetzen und eines den energetisch höher liegenden  $e_g$ -Zustand. Dementsprechend werden im  $\text{Mn}^{4+}$ -Ion lediglich die  $t_{2g}$ -Zustände besetzt. Das mobile  $e_g$ -Elektron vom  $\text{Mn}^{3+}$ -Ion kann nun auf das Sauerstoffatom überspringen, wobei zugleich ein Elektron vom



**Abbildung 1.2:** Schematische Darstellung des Doppelaustausches. a) Der  $e_g$ -Zustand des  $\text{Mn}^{3+}$ -Ions ist mit einem Elektron besetzt. Durch gleichzeitiges Springen der parallel ausgerichteten Elektronen des  $\text{Mn}^{3+}$ -Ions und des  $\text{O}^{2-}$ -Ions kann der in b) gezeigte Zustand erreicht werden. Der Doppelaustausch ist nur möglich, wenn eine parallele Spinausrichtung der Mn-Atome vorliegt.

Sauerstoff in den leeren  $e_g$ -Zustand eines  $\text{Mn}^{4+}$ -Ions springt. Dieser Sprung vom Sauerstoffatom auf das  $\text{Mn}^{4+}$ -Ion ist nur dann möglich, wenn die drei  $t_{2g}$ -Zustände parallel zum überspringenden Elektron ausgerichtet sind. Daher erfolgt der Doppelaustausch nur zwischen ferromagnetisch angeordneten  $\text{Mn}^{3+}$ - und  $\text{Mn}^{4+}$ -Ionen.

### RKKY-Wechselwirkung

Eine weitere Art der magnetischen Kopplung ist die RKKY-Wechselwirkung, die nach Rudermann, Kittel, Kasuya und Yosida benannt wurde [15–17]. Man findet sie bei Seltenerdmetallen wie Gadolinium, Terbium, Erbium oder Dysprosium. Hier befinden sich die ungepaarten Elektronen in den  $4f$ -Orbitalen, die nah um den Atomkern herum stark lokalisiert sind. Im Ortsraum werden sie umgeben von den energetisch darunter liegenden  $5s$ -,  $5p$ - und  $6s$ -Zuständen, so dass aufgrund der Geometrie hier nicht mit einem direkten Austausch zu rechnen ist. Dennoch kommt es zu einer magnetischen Ordnung, die mit der RKKY-Wechselwirkung erklärt werden kann. Die Spinausrichtung der  $4f$ -Elektronen führt zu einer Polarisierung der delokalisierten  $6s$ - und  $5d$ -Elektronen, die die Spininformation durch den Kristall tragen können. Treffen sie auf die Elektronen eines anderen Atoms, kommt es so zu einer spinabhängigen Kopplung, wodurch insgesamt eine Austauschwechselwirkung entsteht. Bemerkenswert ist hier, dass die Wechselwirkung ein oszillatorisches Verhalten zeigt:

$$J_{\text{RKKY}}(z) \propto \frac{\cos(2k_{\text{F}}z)}{z^3} \quad (1.8)$$

Das Austauschintegral  $J_{\text{RKKY}}$  kann also abhängig vom Abstand  $z$  sowohl positive als auch negative Werte annehmen, so dass die RKKY-Wechselwirkung dementsprechend zu einer ferromagnetischen oder antiferromagnetischen Ordnung führen kann. Somit zeigen die verschiedenen Seltenerdmetalle aufgrund der unterschiedlichen Gitterkonstanten verschiedene magnetische Eigenschaften. So ist beispielsweise Gadolinium ferromagnetisch geordnet, wohingegen bei Terbium und Dysprosium in Abhängigkeit der Temperatur eine ferromagnetische oder eine antiferromagnetische, helikale Phase<sup>†</sup> beobachtet wird.

Während die RKKY-Wechselwirkung das Verhalten in  $4f$ -Metallen gut beschreibt, ist sie ungeeignet für die Erklärung der ferromagnetischen Ordnung in den  $3d$ -Übergangsmetallen Fe, Co und Ni, da hier die nicht-

---

<sup>†</sup>Bei der helikalen Ordnung tritt von einer Atomlage zur nächsten eine Rotation des magnetischen Momentes auf, so dass benachbarte Atomlagen keine parallele magnetische Ordnung aufweisen.

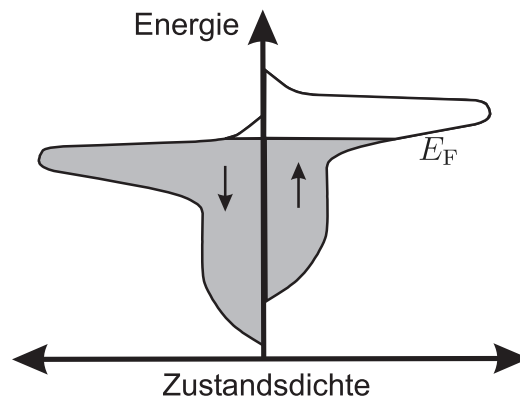
abgesättigten Spins nicht lokalisiert sind, sondern die spintragenden Elektronen das Leitungsband bilden.

### Bandmagnetismus

Die ferromagnetische Ordnung in den  $3d$ -Metallen Fe, Co und Ni kann mit Hilfe des Bandmagnetismus beschrieben werden. Die nicht-abgesättigten  $3d$ -Elektronen sind hier nicht an den Atomrümpfen lokalisiert, sondern können sich als itinerante Elektronen innerhalb des  $3d$ -Leitungsbandes des Festkörpers frei bewegen. Unterteilt man nun das Leitungsband für die beiden unterschiedlichen Spinorientierungen in zwei Teilbänder, so werden diese im paramagnetischen Fall von gleich vielen Elektronen besetzt. Werden einige Spins vom einen in das andere Band gebracht, so muss dafür eine kinetische Energie aufgebracht werden. Durch das Übergewicht der Elektronen der einen Spinrichtung entsteht allerdings ein Austauschfeld im Festkörper, welches zu einer positiven Rückkopplung der Umbesetzung der Bänder führt (vgl. Abbildung 1.3). Für die spontane Ausbildung dieser ungleichen Besetzung der Bänder und damit der ferromagnetischen Ordnung muss das Stoner-Kriterium erfüllt sein:

$$U \cdot n(E_F) \geq 1 \quad (1.9)$$

Dabei ist  $U$  ein Maß für die Coulombenergie, aus der die Austauschwechselwirkung erwächst und  $n(E_F)$  die Zustandsdichte an der Fermikante. Es ergibt



**Abbildung 1.3:** Schematische Darstellung des Bandmagnetismus. Das Leitungsband ist für die beiden Spinorientierungen in zwei Teilbänder aufgeteilt. Durch die spezielle Ausformung des Bandes findet bereits bei einer leichten Verschiebung der beiden Teilbänder gegeneinander eine starke Umbesetzung der Elektronen statt. Der entstandene Zustand ist energetisch günstiger als die gleich besetzte Konfiguration, so dass ein permanentes magnetisches Moment entsteht.

sich die Konsequenz, dass eine hohe Zustandsdichte bei der Fermienergie  $E_F$  und eine hohe Coulombenergie zu einer ferromagnetischen Kopplung führen. Liegt ein hohes  $n(E_F)$  vor, so werden bereits bei einer leichten Verschiebung der Teilbänder gegeneinander sehr viele Elektronen in die andere Spinorientierung umbesetzt mit einem entsprechend hohen Energiegewinn. Die spontane ferromagnetische Ordnung von Fe, Co und Ni kann demzufolge durch ihre Bandstruktur erklärt werden.

## 1.2 Rasterkraftmikroskopie

Mit einem Rasterkraftmikroskop (RKM) [6] können Oberflächen von Festkörpern bis herunter zur atomaren Auflösung untersucht werden. Herzstück des Mikroskops ist eine Messsonde, die aus einem einseitig eingespannten quaderförmigen Federbalken (engl. *cantilever*) besteht<sup>†</sup>, an dessen Ende sich eine feine Spitze befindet, mit der eine Oberfläche abgetastet wird (siehe Abbildung 1.4). Die Messsonde besteht häufig aus dotiertem Silizium und wird üblicherweise mittels Ätztechniken, wie sie auch in der Halbleiterindustrie verwendet werden, hergestellt.

Die zu untersuchende Probe kann im Mikroskop mit einem piezoelektrischen Stellelement in alle drei Raumrichtungen  $x, y$  und  $z$  relativ zur Messsonde bewegt werden. Dabei dient der Federbalken der Messsonde als Kraftsensor. Im geregelten Modus wird die Probe soweit an die Messsonde angenähert, bis ein frei wählbarer Sollwert der Kraft  $F_{\text{Soll}}$  erreicht wird. Um ein topographisches Abbild der Oberfläche zu erhalten, fährt die Probe zeilenweise in der  $(x, y)$ -Ebene den gewünschten Bildbereich ab, während ein Regelkreis durch Variation des Abstandes in  $z$ -Richtung die Kraft konstant bei  $F_{\text{Soll}}$  hält. Die Spannung, die am piezoelektrischen Stellelement angelegt werden muss, um diese Bedingung zu erfüllen, wird aufgezeichnet. Hat man die piezoelektrischen Stellelemente zuvor mit Hilfe einer bekannten Probenstruktur geeicht, ergibt sich so ein Topographiebild  $z(x, y)$  der Probenoberfläche.

### 1.2.1 FM-RKM

Alle hier vorgestellten Messungen wurden im dynamischen Frequenzmodulationsmodus durchgeführt (FM-RKM). Dafür wird der Federbalken mit einem Anregungspiezo zu einer Oszillation bei seiner aktuellen Resonanzfrequenz  $f$  angeregt. Wird die Probe an die Spitze angenähert, so erfährt die Spitze eine

---

<sup>†</sup>Es gibt eine Vielzahl verschiedener instrumenteller Ausprägungen der Rasterkraftmikroskopie. Im Folgenden wird nur auf den in dieser Arbeit verwendeten Aufbau bzw. Messmodus eingegangen



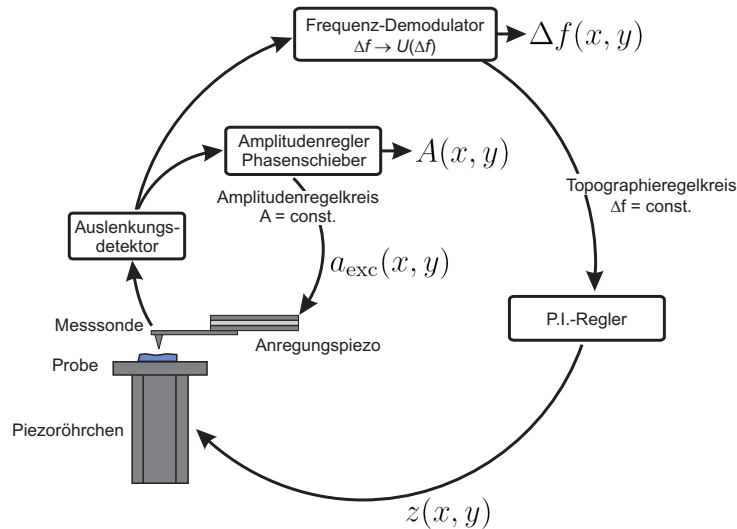
**Abbildung 1.4:** Elektronenmikroskopisches Bild einer Si-Messsonde. Der Federbalken ist ca.  $200 \times 40 \times 10 \mu\text{m}^3$  groß und ragt über den Trägerchip hinaus. Am Ende des Federbalkens ist die Spitzenpyramide zu erkennen, die zum Abrastern von Oberflächen verwendet wird [18].

Wechselwirkung, durch die die aktuelle Resonanzfrequenz des Federbalkens  $f$  gegenüber der Resonanzfrequenz des frei schwingenden Federbalkens  $f_0$  um den Betrag  $\Delta f$  verschoben wird. Es gilt also:

$$\Delta f = f - f_0 \quad (1.10)$$

Wirkt eine attraktive Wechselwirkung zwischen Spitze und Probe, so resultiert daraus eine kleinere Frequenz  $f$  und somit ein negatives  $\Delta f$ . Die Frequenzverschiebung  $\Delta f$  ist ein Maß für die wirkende Kraft und wird daher zur Abstandsregelung im Topographieregelkreis benutzt (siehe Abbildung 1.5).

Die Auslenkung des schwingenden Federbalkens wird mit einem Faserinterferometer ausgelesen (siehe Kapitel 2.3.2) und durch nachgeschaltete Elektronikkomponenten zur Amplituden- und Frequenzdetektion weiterverarbeitet. Neben dem bereits erwähnten Topographieregelkreis, in dem die Frequenzverschiebung als Regelgröße verwendet wird, geht das Signal auch in einen Amplitudenregelkreis. Dieser verfügt über einen Phasenschieber, der auf eine Phasenverschiebung von  $\pi/2$  eingestellt wird und über eine Verstärkerschaltung, die das detektierte Signal um den Faktor  $V$  verstärkt. Anschließend wird das Signal in einen Anregungspiezo geführt, welcher sich in der Aufhängung der Messsonde befindet und so den Federbalken zur Oszillation anregen kann. Da die Frequenz somit vom Federbalken vorgegeben wird, handelt es sich um eine selbstangeregte Oszillation.



**Abbildung 1.5:** Schematische Darstellung der Regelkreise im verwendeten Rasterkraftmikroskop. Der Amplitudenregelkreis sorgt für die selbstangeregte Oszillation des Federbalkens. Im CA-Modus hält dieser Regelkreis zudem die Schwingungsamplitude des Federbalkens konstant. Der Topographieregelkreis sorgt für eine konstante Frequenzverschiebung während der Rasterbewegung der Probe über die Spitze. Dies wird gewährleistet durch Nachregeln des Spitze-Probe-Abstandes mittels des Piezoröhrchens. Man erhält vier Datenkanäle, die ausgelesen werden können: die Topographie  $z(x, y)$ , die Frequenzverschiebung  $\Delta f(x, y)$ , die Anregungsamplitude  $a_{\text{exc}}(x, y)$  und die reale Schwingungsamplitude  $A(x, y)$ . Während die Frequenzverschiebung mit der Kraft, die zwischen Spitze und Probe wirkt, verknüpft ist (siehe Kapitel 1.2.4) kann aus der Anregungsamplitude die Dissipationsenergie bestimmt werden (vgl. dazu Kapitel 1.2.6).

Für die Anregung der Oszillation gibt es zwei wichtige Modi:

- 1.) Im so genannten CA-Modus (nach engl. *constant amplitude*) wird die Schwingungsamplitude des Federbalkens vom Regelkreis mit Hilfe einer geeigneten Anregungsamplitude  $a_{\text{exc}}$  auf einen konstanten Amplitudensollwert  $A$  geregelt.
- 2.) Im CE-Modus (nach engl. *constant excitation*) wird  $a_{\text{exc}}$  konstant gehalten, so dass die reale Schwingungsamplitude der Messsonde infolge von Probe-Spitze-Wechselwirkungen nicht notwendigerweise konstant bleibt während einer Messung.

Die in dieser Arbeit vorgestellten Messungen wurden im CA-Modus vorgenommen, wobei im Normalfall jeweils das Topographiesignal  $z(x, y)$ , die Frequenzverschiebung  $\Delta f(x, y)$ , die Anregungsamplitude  $a_{\text{exc}}(x, y)$  und



die Schwingungsamplitude  $A(x, y)$  aufgezeichnet wurden. Die Frequenzverschiebung und die Schwingungsamplitude stellen dabei das Fehlersignal des Topographie- bzw. des Amplitudenregelkreises dar. Bei ideal arbeitenden Regelkreisen sollte daher in diesen beiden Kanälen keine Oberflächenstruktur erkennbar sein.

Um ein Bild aufzunehmen, wird die Oberfläche zeilenweise abgefahren. Bei der Aufnahme einer Rasterzeile werden sowohl bei der Bewegung der Probe vom Zeilenanfang bis zum Zeilenende als auch bei der Rückbewegung vom Zeilenende bis zum Zeilenanfang Daten aufgenommen. Damit erhält man in jedem Kanal, der aufgezeichnet wird, zwei Bilder von der Oberfläche, die sich jeweils nur in der Richtung der schnellen Rasterrichtung unterscheiden. Insgesamt werden so während einer typischen Messung also acht Bilder aufgenommen.

### 1.2.2 Die Messsonde

Für eine konkrete Messsituation ist die Wahl einer geeigneten Messsonde von großer Bedeutung. Die Dimension und das Material der Messsonde entscheidet dabei über ihre mechanischen Eigenschaften. So ist für die Verwendung als Kraftsensor die Federkonstante  $c_z$  des Federbalkens eine wichtige Größe. Für einen rechteckigen Federbalken gilt [19]:

$$c_z = \frac{E b d^3}{4 l^3} \quad (1.11)$$

Es sind  $b$ ,  $d$  und  $l$ : Breite, Dicke und Länge des Federbalkens und  $E$  der Elastizitätsmodul (für Silizium ist  $E_{\text{Si}} = 1,69 \cdot 10^{11} \text{ N/m}^2$ ). Durch geeignete Wahl der Abmessungen und des Materials kann die Federkonstante also auf einen bestimmten Wert eingestellt werden, um eine Anpassung an die durchzuführenden Messaufgaben zu erreichen. Da die Dicke  $d$  des Federbalkens mit der dritten Potenz in die Rechnung eingeht und die Werksangaben für die Dicke einen großen relativen Fehler aufweisen (vgl. dazu Tabelle 1.1), ist die Berechnung der Federkonstanten  $c_z$  nach Gleichung 1.11 mit einem großen Fehler verbunden.

In der Praxis kann sie daher mit einer anderen Beziehung genauer bestimmt werden, da hier die Dicke nur linear in die Berechnung eingeht [20]:

$$c_z = 4\pi^2 M_e \rho b d l f_0^2 \quad (1.12)$$

Hier ist  $\rho$  die Dichte des Federbalkenmaterials (im Fall von Silizium:  $\rho_{\text{Si}} = 2330 \text{ kg/m}^3$ ) und  $M_e$  die normalisierte effektive Masse des Federbalkens. Für  $l/b > 5$  kann ein Wert von  $M_e = 0,2427$  verwendet werden [20]. Die

		Typ PPP-NCL	Typ SSS-NCL
Länge	$l$	$225 \pm 10 \mu\text{m}$	$225 \pm 5 \mu\text{m}$
Breite	$b$	$38 \pm 7,5 \mu\text{m}$	$38 \pm 5 \mu\text{m}$
Dicke	$d$	$7 \pm 1 \mu\text{m}$	$7 \pm 0,5 \mu\text{m}$
Spitzenradius	$r$	$< 10 \text{ nm}$	$< 5 \text{ nm}$
Resonanzfrequenz	$f_0$	$190 \text{ kHz}$	$160 \text{ kHz}$
Federkonstante	$c_z$	$48 \pm 19 \text{ N/m}$	$34 \pm 8 \text{ N/m}$

**Tabelle 1.1:** Eigenschaften der verwendeten Silizium-Messsonden von der Firma Nanosensors. Die Werte für die Resonanzfrequenz entsprechen typischen Frequenzen, die bei den in dieser Arbeit verwendeten Messsonden gemessen wurden. Die Angaben zu den Dimensionen der Messsonden wurden dem Datenblatt des Herstellers entnommen [18]. Die Federkonstanten wurden nach Gleichung 1.12 aus den Dimensionen und den Resonanzfrequenzen berechnet.

Variable  $f_0$  bezeichnet die Resonanzfrequenz des frei schwingenden Federbalkens im Vakuum. Wie die Federkonstante hängt auch  $f_0$  von der Geometrie ab [21]:

$$f_0 = \frac{1.875^2 d}{4\sqrt{3}\pi l^2} \sqrt{\frac{E}{\rho}} \quad (1.13)$$

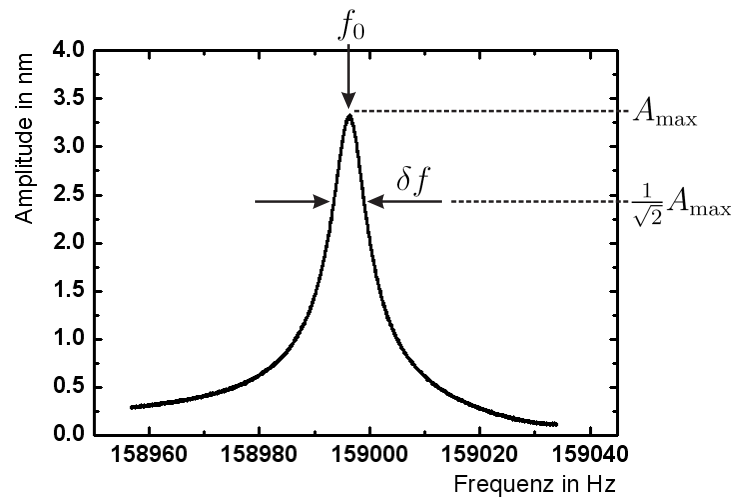
In dieser Arbeit wurden ausschließlich Si-Federbalken der Abmessungen verwendet, wie sie Tabelle 1.1 zu entnehmen sind.

### Güte des Federbalkens

Ein Maß für die intrinsische Dämpfung der Schwingung der frei schwingenden Messsonde liefert die Güte  $Q_0$ . Die Bestimmung der Güte ist notwendig, um die dissipierte Energie berechnen zu können (siehe Kapitel 1.2.6). Die Güte kann durch die Auswertung der Resonanzkurve der Messsonde berechnet werden (siehe Abbildung 1.6). Dafür wird die Messsonde mit einer Sinusschwingung zu einer erzwungenen Oszillation angeregt und die anregende Frequenz nahe der Resonanzfrequenz variiert. Aus der dabei aufgezeichneten  $A(f)$ -Kurve wird die Breite  $\delta f$  bei der  $\frac{1}{\sqrt{2}}$ -fachen Maximalamplitude gemessen.

Für schwach gedämpfte Oszillatoren kann daraus die Güte mit der folgenden Formel bestimmt werden:

$$Q_0 = \frac{f_0}{\delta f} \quad (1.14)$$



**Abbildung 1.6:**  $A(f)$ -Kurve einer typischen Messsonde im Ultrahochvakuum. Um die Resonanzfrequenz  $f_0$  herum bildet sich in der Amplitude ein scharfes Maximum heraus. Zur Bestimmung der Güte  $Q_0$  wird die Breite  $\delta f$  der Kurve bei  $A_{\max}/\sqrt{2}$  gemessen. In diesem Fall liegt die Güte bei  $Q_0 \approx 28.000$ .

Scharfe Resonanzmaxima entsprechen also hohen Güten und einer schwachen Dämpfung. Alle Messungen, die in der vorliegenden Arbeit behandelt werden, wurden im Ultrahochvakuum (UHV) durchgeführt. Während die Schwingung des Federbalkens an Umgebungsbedingungen durch die umgebende Luftsäule gedämpft wird, fällt diese Dämpfung im Ultrahochvakuum weg, so dass hier mit den verwendeten Messsonden typischerweise Güten in der Größenordnung von  $10^5$  bis  $10^6$  erreicht werden. Eine hohe Güte ist im allgemeinen vorteilhaft, da dadurch das Frequenzrauschen verringert wird (siehe Gleichung 2.1) und sich somit die Sensitivität der Messsonde erhöht.

### 1.2.3 Kräfte zwischen Spitze und Probe

Die zwischen Spitze und Probe wirkende Gesamtkraft setzt sich aus unterschiedlichen Kraftbeiträgen zusammen, die verschiedene Abstandsabhängigkeiten aufweisen. Für die Messung mit atomarer Auflösung sind die kurzreichweitigen Kräfte von besonderem Interesse, wobei die langreichweitigen Wechselwirkungen häufig störend wirken. Es ist dabei nur innerhalb bestimmter Grenzen möglich, die Kraftbeiträge zu separieren. Im folgenden Abschnitt folgt eine Diskussion der verschiedenen Wechselwirkungen, die für die vorliegende Arbeit relevant sind.

### Van der Waals-Wechselwirkungen

Die van der Waals-Wechselwirkungen spielen eine große Rolle in der Rasterkraftmikroskopie, da sie zwischen allen Atomen und Molekülen wirken und während einer Messung nicht unterdrückt werden können. Ihre atomistische Ursache sind Ladungsdichtefluktuationen in der Atomhülle, durch die kurzzeitig ein elektrisches Dipolmoment entsteht. Befindet sich ein zweites Atom in der Nähe, so kann darin durch Wechselwirkung mit dem ersten Atom ein Dipolmoment induziert werden. Daraus resultiert eine anziehende Kraft zwischen den beiden Atomen. Die Abstandsabhängigkeit folgt für Abstände unterhalb von ungefähr 5 nm einem  $1/z^6$ -Gesetz und für größere Distanzen über 100 nm aufgrund von Retardierungseffekten einer  $1/z^7$ -Abhängigkeit [22]. Die beschriebene Wechselwirkung zeigt also eine starke Abstandsabhängigkeit.

Im realen Spitze-Probe-System, in dem sehr viele Atome miteinander wechselwirken, wird über alle interatomaren van der Waals-Wechselwirkungen summiert, so dass man letztlich eine langreichweitige Wechselwirkung mit einer schwächeren Abstandsabhängigkeit erhält. Die berechnete Formel für die van der Waals-Kraft hängt dabei entscheidend von der Geometrie des Systems ab. Mittels einer so genannten Hamaker-Integration, in der für Spitzen- und Probenmaterial ein Kontinuum mit konstanter Atomdichte angenommen wird, erhält man für kegelförmige beziehungsweise pyramidale Spitzen oberhalb von ausgedehnten Ebenen [23]:

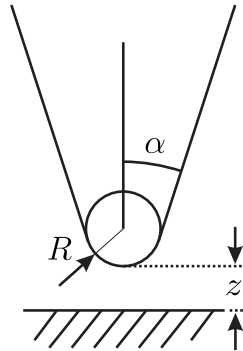
$$F_{\text{vdW,Kegel}}(z) = A_{\text{H}} \frac{\tan^2(\alpha)}{6z} \quad (1.15)$$

$$F_{\text{vdW,Pyramide}}(z) = A_{\text{H}} \frac{2 \tan^2(\alpha)}{3\pi z} \quad (1.16)$$

Wählt man ein etwas realistischeres Spitzenmodell, so wird der entsprechende Ausdruck deutlich komplizierter. Für einen Kegelstumpf, der von einer Halbkugel abgeschlossen wird, erhält man nach Argento und French [24]:

$$F_{z,\text{Kegelstumpf}}(z) = \frac{A_{\text{H}} R^2 (1 - \sin \alpha) (R \sin \alpha - z \sin \alpha - R - z)}{6z^2 (R + z - R \sin \alpha)^2} - \frac{A_{\text{H}} \tan \alpha [z \sin \alpha + R \sin \alpha + R \cos(2\alpha)]}{6 \cos \alpha (z + R - R \sin \alpha)^2} \quad (1.17)$$

$A_{\text{H}}$  ist die Hamakerkonstante,  $\alpha$  der halbe Öffnungswinkel und  $R$  der Radius der Halbkugel (siehe auch Abbildung 1.7).



**Abbildung 1.7:** Spitzenmodell einer kegelförmigen Spitze mit halbem Öffnungswinkel  $\alpha$ , deren Ende von einer Kugel mit Radius  $R$  gebildet wird und die sich im Abstand  $z$  von der Oberfläche befindet.

Aus Gleichung 1.15 kann man abschätzen, dass bei einer kegelförmigen Spitze, die sich in einem Abstand von einem Nanometer zu der Probe befindet, die vordersten zehn Nanometer der Spitze etwa 75 % zur insgesamt wirkenden van der Waals-Kraft beitragen [23]. Eine möglichst scharfe Spitze ist daher wünschenswert, um die van der Waals-Wechselwirkungen zwischen Spitze und Probe zu minimieren.

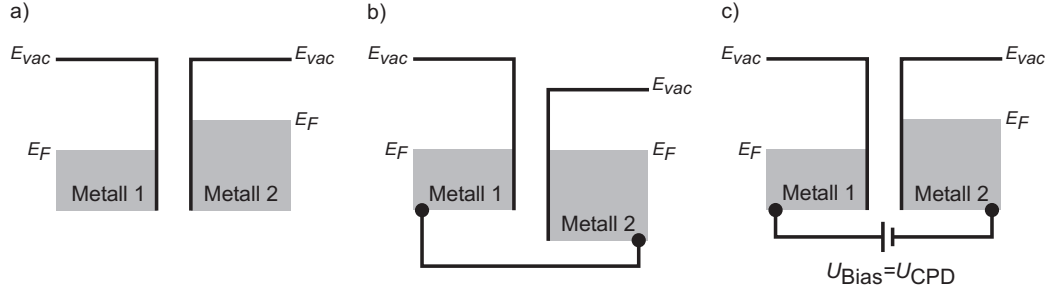
Auf atomarer Skala kann die van der Waals-Wechselwirkung zwischen dem vordersten Spitzenatom und dem darunterliegenden Probenatom auch kontrastgebend sein und für atomare Auflösung sorgen. So wurde beispielsweise die atomar aufgelöste Abbildung von reinen van der Waals-Oberflächen wie Graphit(0001) [25, 26], Kohlenstoffnanoröhrchen [27] oder Xenon [26, 28] mittels eines Rasterkraftmikroskops demonstriert. Für die Beschreibung der dabei wirkenden Kräfte kann das Lennard-Jones-Potential herangezogen werden (siehe Kapitel 1.2.3).

### Elektrostatische Wechselwirkungen

Die elektrostatischen Wechselwirkungen, die hier eine Rolle spielen, lassen sich unterscheiden in einen kapazitiven Anteil, der durch eine anliegende Spannung entsteht und einen Coulomb-Anteil, der auf lokalisierte Ladungen zurückgeht. Betrachtet man ein System aus einer metallischen Spitze und einer metallischen Probe, zwischen denen eine Spannung  $U$  herrscht, so erhält man für die kapazitive Kraft den folgenden Ausdruck:

$$F_{\text{kap}}(z) = \frac{U^2}{2} \frac{\partial C}{\partial z} \quad (1.18)$$

$C$  ist die Kapazität des Systems aus Spitze und Probe. Sie ist abhängig vom Abstand  $z$  und von der Geometrie. Für einige einfache Geometrien kann die



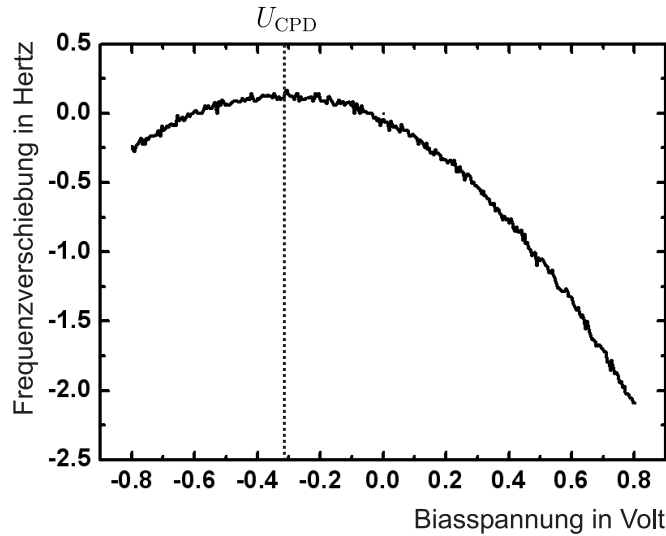
**Abbildung 1.8:** Kontaktpotentialdifferenz bei Verwendung einer metallischen Spitze und einer metallischen Probe. Metall 1 und Metall 2 sind dabei das Spitzen- bzw. Probenmaterial. a) Zwischen den beiden Fermi-niveaus der verschiedenen Metalle besteht ein Potentialunterschied. b) Entsteht ein Kontakt zwischen den beiden Metallen, so gibt es eine leitfähige Verbindung und die Fermi-niveaus liegen auf einem Potential. Dabei entsteht zwischen den Vakuumniveaus ein Potentialunterschied, die so genannte Kontaktpotentialdifferenz  $U_{CPD}$ . Diese wirkt wie eine von außen angelegte Spannung zwischen Spitze und Probe und sorgt für eine zusätzliche elektrostatische Wechselwirkung. c) Durch Anlegen einer Biasspannung mit  $U_{Bias} = U_{CPD}$  werden die beiden Vakuumniveaus auf ein Potential gebracht und die elektrostatische Wechselwirkung zwischen Spitze und Probe wird minimiert.

kapazitive Kraft zwischen Spitze und Probe berechnet werden. Betrachtet man eine Spitze, die aus einem Kegelstumpf besteht, der durch eine Halbkugel mit Radius  $R$  abgeschlossen wird (vgl. Abbildung 1.7), erhält man den folgenden Ausdruck [29]:

$$F_{\text{kap}}(z) = -\pi\epsilon_0(U_{\text{Bias}} - U_{\text{CPD}})^2 \left\{ \frac{R}{z} + k(\alpha)^2 \left( \ln \frac{L}{z + R_\alpha} - 1 \right) - \frac{R [1 - k(\alpha)^2 \cos^2 \alpha / \sin \alpha]}{z + R_\alpha} \right\} \quad (1.19)$$

Es sind  $k(\alpha) = 1 / \ln [\cot(\alpha/2)]$  und  $R_\alpha = R(1 - \sin \alpha)$ .  $\alpha$  ist der halbe Öffnungswinkel des Kegels,  $L$  die Länge des Spitzenkegels,  $z$  der Spitze-Probe-Abstand und es gilt  $L \gg z$ .

Die Spannung  $U$  wurde hier ersetzt durch die Differenz aus  $U_{\text{Bias}}$  und  $U_{\text{CPD}}$ . Dabei ist  $U_{\text{CPD}}$  die Kontaktpotentialdifferenz und  $U_{\text{Bias}}$  die Spannung, die von außen zwischen Probe und Spitze angelegt wird. In Abbildung 1.8 wird eine Schemazeichnung gezeigt, in der die Entstehung einer Kontaktpotentialdifferenz beim Kontakt zweier unterschiedlicher Metalle verdeutlicht wird. In der Praxis spielt auch die Geometrie von Spitze und Probe für die Größe von  $U_{\text{CPD}}$  eine wichtige Rolle. Die Kontaktpotentialdifferenz wirkt wie eine von außen angelegte Spannung und führt zu einer zusätzlichen elektro-



**Abbildung 1.9:**  $\Delta f(U_{\text{Bias}})$ -Kurve auf einer Ni(111)-Oberfläche, aufgenommen mit einer Nickel-beschichteten Siliziumspitze. Die Aufnahme von  $\Delta f(U_{\text{Bias}})$ -Kurven erfolgt bei konstantem Spitze-Probe-Abstand, also ausgeschaltetem Topographieregelkreis. Beim Maximum der Kurve gilt  $U_{\text{Bias}} = U_{\text{CPD}}$  und die elektrostatische Wechselwirkung ist minimal. Messparameter:  $f_0=152.404$  Hz,  $\Delta f_{\text{Soll}}=-1$  Hz,  $A=\pm 5$  nm,  $c_z=31$  N/m,  $Q_0=44.000$ , Messsonde: PPP-NCL, (10+10) nm Ni/SiO.

statischen Wechselwirkung zwischen Spitze und Probe. Durch Anlegen einer geeigneten Biasspannung kann diese Wechselwirkung minimiert werden (siehe Abbildung 1.8 c)). Dementsprechend wird Gleichung 1.18 gleich Null für  $U_{\text{Bias}} = U_{\text{CPD}}$ . Um  $U_{\text{CPD}}$  zu bestimmen, wird bei konstant gehaltenem Spitze-Probe-Abstand  $U_{\text{Bias}}$  variiert und dabei die Frequenzverschiebung aufgezeichnet. Dazu wird der Topographieregelkreis bei einem bestimmten Sollwert der Frequenzverschiebung ( $\Delta f_{\text{Soll}}$ ) ausgeschaltet. Eine solche  $\Delta f(U_{\text{Bias}})$ -Kurve ist im Normalfall parabelförmig (siehe Glg. 1.18) und für das Extremum gilt  $U_{\text{Bias}} = U_{\text{CPD}}$  (siehe Abbildung 1.9). Üblicherweise wird in der Rasterkraftmikroskopie die Biasspannung während eines Bildes nicht verändert, so dass nur ein mittleres  $U_{\text{CPD}}$  kompensiert wird und lokale Variationen nicht berücksichtigt werden<sup>†</sup>.

<sup>†</sup>Durch Einführung eines dritten Regelkreises, der während der Rasterbewegung immer  $U_{\text{Bias}} = U_{\text{CPD}}$  realisiert, ist eine bessere Kompensation möglich. Dieser Ansatz wird bei der Kelvinsondenkraftmikroskopie mit dem Ziel verfolgt, die lokale Variation der Austrittsarbeit abzubilden.

Neben den kapazitiven Kräften können auch Coulombkräfte auftreten. So werden die Wechselwirkungen zwischen zwei Punktladungen  $q_1$  und  $q_2$ , zwischen denen ein Abstand  $z$  liegt, beschrieben durch das Coulombgesetz:

$$F_{\text{el}}(z) = \frac{q_1 q_2}{4\pi\epsilon_0 z^2} \quad (1.20)$$

Betrachtet man den Fall einer isolierenden Probe, deren Oberfläche mit einigen lokalisierten Ladungen belegt ist (zum Beispiel an Defekten oder Stufenkanten), so entstehen in einer leitfähigen Spitze oberhalb dieser Oberfläche Bildladungen entgegengesetzter Größe. Dadurch wird das elektrische Potential an der Oberfläche der Spitze konstant gehalten. Zwischen den Ladungen auf der Probe und den Bildladungen an der Spitze herrschen attraktive Coulombwechselwirkungen.

Für die Messungen werden üblicherweise hochdotierte Si-Messsonden verwendet, die über eine gute Leitfähigkeit verfügen sollten. Da sie an Luft gelagert werden, bildet sich allerdings eine native Oxidschicht auf der Oberfläche der Messsonden, so dass unter Realbedingungen häufig lokalisierte Ladungen im Spitzenbereich der verwendeten Si-Messsonden auftreten. Diese wechselwirken mit den Ladungen auf der Probenoberfläche, wobei es bei gleicher Polarität auch zu repulsiven Wechselwirkungen kommt. Summiert man die Wechselwirkungen aller lokalisierter Ladungen und gegebenenfalls der entstandenen Bildladungen auf, so erhält man die Gesamtkraft, die im Normalfall langreichweitiger Natur ist. Die so entstandene Hintergrundkraft kann eine zufriedenstellende Abbildung der Oberflächentopographie verhindern. Zur Minimierung der elektrostatischen Wechselwirkungen kann eine Biasspannung angelegt werden, die zur Polarisierung der isolierenden Probe führt, wodurch die Oberflächenladungen zumindestens teilweise kompensiert werden. Die Größe dieser Biasspannung ergibt sich wiederum aus dem Extremum der  $\Delta f(U_{\text{Bias}})$ -Kurve.

Ein weiterer kurzreichweitiger Beitrag kommt zur elektrostatischen Wechselwirkung bei der Untersuchung von Ionenkristalloberflächen wie der (001)-Oberfläche von MnO oder NiO hinzu. Hier sind die Anionen und Kationen periodisch angeordnet, so dass sich die Beiträge zu einer  $1/e^z$ -Wechselwirkung aufsummieren, die eine Spitze oberhalb der Oberfläche erfährt.

### Magnetostatische Wechselwirkungen

Auch die magnetostatischen Wechselwirkungen können bei RKM-Messungen eine wichtige Rolle spielen. Dafür müssen sowohl Spitze als auch Probe über ein magnetisches Dipolmoment verfügen. Betrachtet man die Wechselwirkungen zwischen ferromagnetischen Festkörpern, die eine endliche magnetische



Polarisation besitzen, so werden diese bestimmt durch die magnetostatische Dipolwechselwirkung. Sie wird durch die folgende Relation beschrieben:

$$E = \frac{\mu_0}{4\pi z^3} \left[ \vec{m}_1 \cdot \vec{m}_2 - \frac{3}{z^2} (\vec{m}_1 \cdot \vec{z})(\vec{m}_2 \cdot \vec{z}) \right] \quad (1.21)$$

Für die Wechselwirkung zweier magnetischer Dipole  $\vec{m}_1$  und  $\vec{m}_2$  sind also die relative Ausrichtung der magnetischen Momente, deren Größe sowie der Abstand  $\vec{z}$  zwischen ihnen entscheidend. Wie in Kapitel 1.1.1 beschrieben, sorgt die magnetische Dipolwechselwirkung zusammen mit einigen anderen Energietermen für eine vielfältige Domänenstruktur bei ferromagnetischen Festkörpern.

In der Magnetkraftmikroskopie verwendet man zur Detektion der magnetostatischen Wechselwirkungen Spitzen, die mit ferromagnetischem Material beschichtet sind, um so das Streufeld einer Probe abzubilden [8]. Die Kraft, die in  $z$ -Richtung, d.h. normal zur Probenoberfläche, wirkt, ist dann [30]:

$$F_{\text{mag}} = m_z \frac{\partial H_{\text{P},z}}{\partial z} \quad (1.22)$$

Es sind  $m_z$  und  $H_{\text{P},z}$  die Spitzenmagnetisierung bzw. das Streufeld der Probe in  $z$ -Richtung. Voraussetzung für die Gültigkeit der Gleichung ist die Annahme, dass das Streufeld der Probe über das Volumen der Spitzenmagnetisierung konstant ist. Sie gilt also für kleine magnetische Spitzenvolumina, große Domänen und große Abstände. Die Messung ist somit sensitiv auf die  $z$ -Ableitung des Streufeldes der Probe. Generell ist die magnetostatische Wechselwirkung langreichweitig.

Zur Trennung der eher schwachen magnetostatischen Wechselwirkungen von den starken kurzreichweitigen Kräften wird in der Magnetkraftmikroskopie üblicherweise ein Messabstand von mehr als zehn Nanometern gewählt, da dort die magnetostatischen Kräfte dominieren. Die laterale Auflösung wird durch den großen Messabstand limitiert und liegt daher in derselben Größenordnung.

Als Erklärung für die magnetischen Ordnungsphänomene auf atomarer Skala kann die magnetostatische Wechselwirkung nicht herangezogen werden, wie eine einfache Abschätzung zeigt [10]: mit  $m \approx \mu_{\text{B}} = 9,274 \cdot 10^{-24}$  J/T (Bohrsches Magneton) und  $z \approx 200$  pm berechnet sich aus Gleichung 1.21 die Energie zu etwa  $m^2/4\pi z^3 \approx 10^{-24}$  J. Diese Energie entspricht einer Temperatur von unter 1 K. Da übliche Curietemperaturen sehr viel größer sind (zum Beispiel  $T_{\text{Curie}}(\text{Fe}) = 1043$  K,  $T_{\text{Curie}}(\text{Ni}) = 631$  K oder  $T_{\text{Curie}}(\text{Gd}) = 292$  K [31]), spielt die magnetostatische Wechselwirkung für die Nahordnung im Kristall allenfalls eine untergeordnete Rolle. Im kurzreichweitigen Bereich dominieren die magnetischen Austauschwechselwirkungen.

## Magnetische Austauschwechselwirkungen

Die magnetischen Austauschwechselwirkungen, die bereits in Kapitel 1.1.2 besprochen wurden, sind kurzreichweitiger Natur. Trotz verschiedener Versuche wurde bislang kein eindeutiger Nachweis einer erfolgreichen Messung dieser Kräfte mit einem Rasterkraftmikroskop erbracht (vgl. Kapitel 2.2.2). Ein erfolgreiches Experiment durchzuführen, in dem die magnetischen Austauschwechselwirkungen gemessen werden, soll das Ziel der vorliegenden Arbeit sein. Eine Diskussion, wie ein solches Experiment durchgeführt werden sollte, findet sich in Kapitel 2.1, die Messergebnisse werden in Kapitel 5.2 präsentiert.

## Chemische Wechselwirkungen

Bringt man die Probe sehr nah an die Spitze heran, kann es zur Ausbildung von chemischen Bindungen kommen. Chemische Bindungen liefern häufig einen Hauptbeitrag zum Kontrast bei atomarer Auflösung, da die entstehenden Wechselwirkungen kurzreichweitiger Natur sind. So konnte gezeigt werden [32, 33], dass bei der Abbildung der Si(111)-(7×7)-Oberfläche mit einer Silizium-Spitze die stark gerichteten kovalenten Bindungen zum atomar aufgelösten Kontrast führen.

Es ist zu beachten, dass die Reichweite der chemischen Wechselwirkung deutlich unterhalb der in der vorliegenden Arbeit verwendeten Schwingungsamplituden des Federbalkens liegt. Daher werden die chemischen Bindungen bei jedem Schwingungszyklus von neuem gebildet und wieder aufgebrochen. Sie wirken daher nur für einen Bruchteil der gesamten Schwingungsdauer. Trotzdem reicht die Sensitivität des Mikroskops aus, um die dadurch verursachten Frequenzverschiebungen, die typischerweise in der Größenordnung von ca. 1 Hz liegen, zu detektieren.

## Repulsive Wechselwirkungen

Bei sehr kleinen Abständen kommt es zwischen Spitze und Probe zu repulsiven Wechselwirkungen. Zum einen ist hier die Pauli-Abstoßung zu nennen, die durch das Pauli-Prinzip bedingt wird. Bei überlappenden Elektronenorbitalen kommt somit eine abstoßende Wechselwirkung zustande. Eine weitere repulsive Kraft entsteht, wenn die Kernladungen bei sehr geringen Abständen nur noch unvollständig abgeschirmt werden. In diesem Fall stoßen sich die Ionenrümpfe gegenseitig ab.

## Modellpotentiale

Zur Beschreibung der attraktiven und repulsiven chemischen Wechselwirkungen, die zwischen der Probe und der Spitze wirken, können Modellpotentiale wie das Morsepotential oder das Lennard-Jones-Potential verwendet werden. So wird das Morsepotential zur Beschreibung der chemischen Wechselwirkung zwischen zwei Atomen verwendet.

Die entsprechende Kraft berechnet sich zu:

$$F_{\text{Morse}}(z) = \frac{2E_0}{\lambda} \left[ \exp\left(-2 \frac{z - z_0}{\lambda}\right) - \exp\left(-\frac{z - z_0}{\lambda}\right) \right] \quad (1.23)$$

Dabei ist  $E_0$  die Bindungsenergie,  $z_0$  der Gleichgewichtsabstand,  $\lambda$  die Abfalllänge und  $s$  der Spitze-Probe-Abstand am unteren Umkehrpunkt der oszillatorischen Bewegung der Spitze. Typische Werte sind:  $E_0 \approx 1$  eV,  $z_0 = 0,3$  nm und  $\lambda = 0,1$  nm.

Spielen chemische Wechselwirkungen keine Rolle, so werden die kurzreichweitigen Kräfte häufig mit Hilfe des Lennard-Jones-Potentials beschrieben. Die entsprechende Kraft ist dann:

$$F_{\text{LJ}}(z) = -12 \frac{E_0}{z_0} \left[ \left(\frac{z_0}{z}\right)^7 - \left(\frac{z_0}{z}\right)^{13} \right] \quad (1.24)$$

Auch hier sind  $E_0$  die Bindungsenergie und  $z_0$  der Gleichgewichtsabstand. Dabei steht der erste Term für die attraktive van der Waals-Kraft einer einatomigen Spitze und der zweite Term für die kurzreichweitigen repulsiven Wechselwirkungen.

### 1.2.4 $\Delta f(z)$ -Spektroskopiekurven

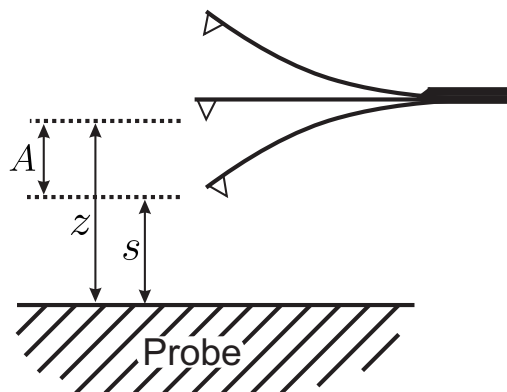
Zur Untersuchung der Kräfte zwischen Spitze und Probe verwendet man häufig  $\Delta f(z)$ -Spektroskopiekurven. Dafür wird eine bestimmte Position  $(x, y)$  auf der Oberfläche angefahren, wobei zunächst der Abstand auf  $\Delta f = \Delta f_{\text{Soll}}$  geregelt wird. Dann wird der Topographieregelkreis deaktiviert und eine Spannungsrampe am piezoelektrischen Stellelement angelegt, so dass die Probe in  $z$ -Richtung verfahren wird. Während dieser Abstandsvariation wird die Frequenzverschiebung  $\Delta f$  und unter Umständen auch die Anregungsamplitude  $a_{\text{exc}}$  sowie die reale Amplitude  $A$  aufgezeichnet. Nach Abschluss der Spektroskopiekurve wird der Regelkreis wieder eingeschaltet. Solche Kurven können an den unterschiedlichen Gitterplätzen des atomaren Gitters aufgenommen werden und erlauben so einen Rückschluss auf die Kräfte, die oberhalb dieser Punkte wirken [34, 35].

### Umrechnung der $\Delta f(z)$ - in $F(z)$ -Kurven

Um eine weitere Auswertung zu erlauben, können die gemessenen  $\Delta f(z)$ -Spektroskopiekurven in  $F(z)$ -Kurven, also abstandsabhängige Kraftkurven umgerechnet werden. Zunächst soll eine Formel für die Abhängigkeit der Frequenzverschiebung von der Kraft angegeben werden. Gießibl beschreibt den schwingenden Federbalken als schwach gestörten harmonischen Oszillator und berechnet über den Hamilton-Jacobi-Formalismus die Frequenzverschiebung [23]. Dürig verfolgt einen anderen Ansatz und nähert die Oszillation durch eine Fourierreihe an, bei der nur die erste Ordnung betrachtet wird [36]. Aus beiden Ansätzen folgt für die Frequenzverschiebung unter der Voraussetzung, dass  $\Delta f \ll f_0$  ist:

$$\Delta f(z) = \frac{f_0}{\sqrt{2\pi c_z A^{3/2}}} \int_s^\infty \frac{F(z)}{\sqrt{z-s}} dz \quad (1.25)$$

Hier ist  $s$  der Spitze-Probe-Abstand im unteren Umkehrpunkt und  $z$  der Abstand zwischen der Basis des Federbalkens und der Probe, der durch die Spannungsrampe variiert wird (siehe Abbildung 1.10). Die gemessene Frequenzverschiebung skaliert nach Gleichung 1.25 auch mit der Amplitude und der Resonanzfrequenz. Um eine gemessene  $\Delta f(z)$ -Spektroskopiekurve in eine Kraftspektroskopiekurve umrechnen zu können, muss die Formel 1.25 invertiert werden. Da dies analytisch nicht möglich ist, werden zum einen numerische Lösungsverfahren verwendet [37, 38] und zum anderen Näherungen für bestimmte Messbedingungen verwendet, aus denen sich dann analytische Lö-



**Abbildung 1.10:** Skizze der schwingenden Messsonde über der Probenoberfläche. Die Amplitude der Oszillation ist  $A$ , der Spitze-Probe-Abstand am unteren Umkehrpunkt ist  $s$  und die mittlere Entfernung der Spitze von der Probe ist  $z$ .

sungen herleiten lassen. Ist die Amplitude klein verglichen mit der Reichweite der Wechselwirkung, gilt nach Albrecht *et al.* [39]:

$$\Delta f(z) \approx -\frac{f_0}{2c_z} \frac{\partial F(z)}{\partial z} \quad (1.26)$$

Sie findet zum Beispiel in der Magnetkraftmikroskopie Anwendung. Für den Fall großer Amplituden gibt Dürig die folgende Beziehung an [36]:

$$F(s) = \sqrt{2} \frac{c_z A^{3/2}}{f_0} \frac{\partial}{\partial s} \int_s^\infty \frac{\Delta f(z)}{\sqrt{z-s}} dz \quad (1.27)$$

Um Messungen mit unterschiedlichen Amplituden und Messsonden einfach vergleichen zu können, kann die normalisierte Frequenzverschiebung  $\gamma(z)$  berechnet werden [23]:

$$\gamma(z) := \frac{c_z A^{3/2}}{f_0} \Delta f(z, c_z, A, f_0) \quad (1.28)$$

Der Vorfaktor, der hier zur Normalisierung dient, findet sich auch in den Gleichungen 1.25 und 1.27 wieder. Mit Hilfe der normalisierten Frequenzverschiebung kann auch eine Amplitudeneichung des Federbalkens vorgenommen werden. Dazu wird im geregelten Modus die Amplitude  $A$  variiert und dabei die Frequenzverschiebung  $\Delta f$  so angepasst, dass stets bei gleichbleibendem  $\gamma$  gearbeitet wird. Da der Topographieregelkreis eingeschaltet ist, wird bei einer Änderung der Schwingungsamplitude die Probenposition in  $z$ -Richtung genau um den Betrag der Amplitudenänderung nachgeregelt. Bei bekannter  $z$ -Eichung des Piezoelementes kann daraus die Amplitude des Federbalkens berechnet werden [40].

Für viele Messungen ist der Einfluss der langreichweitigen Wechselwirkungen nicht vernachlässigbar, so dass es bei einer Auswertung nach Gleichung 1.27 zu Fehlern kommen kann. Einen anderen Ansatz zur Näherung verfolgen Sader *et al.* in [41]. Hier wird eine Laplace-Transformation angesetzt, bevor eine Näherung verwendet wird. Die Abweichung der Näherung liegt bei unter 5 % und ist bei mittleren Amplituden maximal. Dagegen konvergiert sie für sehr große oder sehr kleine Amplituden. Für die so berechnete Kraft gilt damit:

$$F(s) = 2c_z \int_s^\infty \left( 1 + \frac{A^{1/2}}{8\sqrt{\pi(t-s)}} \right) \Omega(t) - \frac{A^{3/2}}{\sqrt{2(t-s)}} \frac{d\Omega(t)}{dt} dt \quad (1.29)$$

mit  $\Omega(z) = \Delta\omega(z)/\omega_0$  und  $\omega = 2\pi f$ . Die Gleichungen 1.27 und 1.29 gelten nur für konstante Amplituden, also im CA-Modus. Für nicht-konstante Amplituden, wie sie im CE-Modus auftreten, ist für das Verfahren nach Dü-

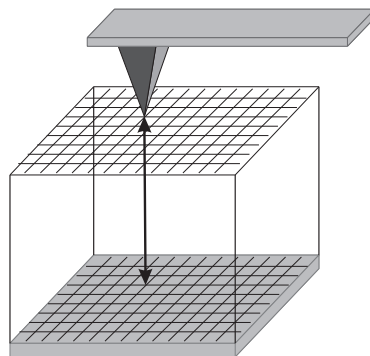
rig jedoch ebenfalls eine Umrechnung in die Kraft möglich [42, 43]. Dieser Fall wird in Kapitel 6.3 behandelt.

### 1.2.5 Dreidimensionale $\Delta f(x, y, z)$ -Spektroskopiefelder

Zur genaueren Untersuchung der Kräfte oberhalb einer Probe können auch dreidimensionale  $\Delta f(x, y, z)$ -Spektroskopiefelder aufgenommen werden. Dabei wird der Bildbereich in ein Gitter mit  $n \times m$  Punkten unterteilt und an jedem dieser Punkte eine  $\Delta f(z)$ -Kurve aufgenommen (vgl. Abbildung 1.11). Diese Kurven werden mit den oben aufgeführten Methoden in Kraft-Distanzkurven umgerechnet und es wird daraus ein dreidimensionaler Datenquader erstellt. Nach einer entsprechenden Umrechnung der  $\Delta f(z)$ -Kurven in  $F(z)$ -Kurven können auf diese Weise atomar aufgelöste dreidimensionale Kraftfelder  $F_z(x, y, z)$  oder Potentiallandschaften  $E_{SP}(x, y, z)$  für die Spitze-Probe-Wechselwirkungen bestimmt werden [44]. Dabei können auch Lateralkräfte untersucht werden [45].

Werden  $\Delta f(x, y, z)$ -Spektroskopiefelder mit einer großen Zahl an Datenpunkten aufgenommen, um eine hohe laterale Auflösung zu erhalten, so entstehen häufig lange Messzeiten, die zu unerwünschten Drifteffekten führen können. Für solche Messungen ist daher die Verwendung eines langzeitstabilen Mikroskops mit einer driftarmen Elektronik von großer Bedeutung.

Die Messung und Auswertung eines dreidimensionalen Spektroskopiefeldes mit hoher lateraler Auflösung wird in Kapitel 6 eingehend diskutiert.



**Abbildung 1.11:** Prinzip der dreidimensionalen Rasterkraftspektroskopie. Die Oberfläche wird in ein Gitter aus  $n \times m$  Punkten eingeteilt. An jedem dieser Punkte wird eine  $\Delta f(z)$ -Kurve gemessen, so dass sich eine dreidimensionale Karte der Oberfläche ergibt.

### 1.2.6 Energiedissipation durch nicht-konservative Wechselwirkungen

Neben den im vorherigen Abschnitt behandelten, konservativen Wechselwirkungen können auch nicht-konservative Wechselwirkungen zwischen Spitze und Probe auftreten. Diese sollen im Folgenden näher betrachtet werden.

Verwendet man den CA-Modus, so wird die Amplitude  $A$  der Oszillation des Federbalkens durch Variation der Anregungsamplitude  $a_{\text{exc}}$  konstant gehalten (vgl. Kapitel 1.2.1). Ist die Spitze weit entfernt von der Probenoberfläche, so ist in der Schwingung des Federbalkens die Energie  $E_{\text{FB}}$  gespeichert:

$$E_{\text{FB}} = \frac{c_z A^2}{2} \quad (1.30)$$

Schwingt die Messsonde frei mit konstanter Amplitude, so hat auch die Anregungsamplitude einen konstanten Wert  $a_{\text{exc},0}$ , der von der Dämpfung des Federbalkens abhängt. Da im Ultrahochvakuum gearbeitet wird, fallen Stöße des Federbalkens mit Molekülen des umgebenen Gases praktisch weg, so dass die extrinsische Dämpfung sehr klein ist. Durch die präzise Fertigung der Federbalken aus Silizium, das mit einer wohldefinierten Dotierung, ansonsten aber hochrein und mit einer geringen Defektdichte hergestellt werden kann, sind sie nahezu ideale Oszillatoren mit sehr geringer intrinsischer Dämpfung.

#### Die dissipierte Energie

Nähert man die Spitze an die Probe an, so kann es zu nicht-konservativen Spitze-Probe-Wechselwirkungen kommen, in denen ein Teil der Schwingungsenergie der Messsonde dissipiert wird, so dass dieser Energieverlust durch eine erhöhte Anregungsamplitude  $a_{\text{exc}}$  kompensiert werden muss. Die Auswertung der Anregungsamplitude liefert die während eines Schwingungszyklus durch Spitze-Probe-Wechselwirkungen dissipierte Energie  $\Delta E_{\text{Diss,CA}}$  (siehe Kapitel 6.4 für eine Herleitung der Formel):

$$\Delta E_{\text{Diss,CA}} = 2\pi \frac{E_{\text{FB}}}{Q_0} \left( \frac{|a_{\text{exc}}|}{|a_{\text{exc},0}|} - 1 \right) \quad (1.31)$$

Dabei ist  $Q_0$  die Güte des Federbalkens und  $a_{\text{exc},0}$  die Anregungsamplitude, mit dem der Sollwert der Amplitude des frei schwingenden Federbalkens erreicht wird. Im allgemeinen ist die so dissipierte Energie nur ein kleiner Bruchteil der Schwingungsenergie des Oszillators. Die Schwingungsenergie einer Si-Messsonde liegt für typische Messparameter im Bereich einiger Tausend eV während die pro Zyklus dissipierten Energien typischerweise im Bereich von 0,1 bis 1 eV liegen.



### 1.2.7 Dissipationsmechanismen

Die Aufklärung der Mechanismen, die zur Energiedissipation in RKM-Experimenten führen, gab in den vergangenen Jahren Anlass zu kontroversen Diskussionen. In der Literatur finden sich eine Vielzahl von Erklärungsansätzen (eine Übersicht geben Hug und Baratoff in [46]), jedoch gibt es bis heute keine vollständige und befriedigende Beschreibung des Problems. Viele Aspekte der experimentell gefundenen Daten können somit bislang nur unzureichend erklärt werden. Im folgenden Abschnitt sollen einige mögliche Dissipationsmechanismen behandelt werden. Dabei wird eine grobe Unterteilung vorgenommen in scheinbare Dämpfung, geschwindigkeitsabhängige Dissipation und hysteresebedingte Dissipation.

#### Scheinbare Dämpfung

Unter bestimmten Bedingungen wird in Experimenten eine scheinbare Dämpfung (engl. *apparent damping*) beobachtet, die nicht durch dissipative Wechselwirkungen zwischen Spitze und Probe zustande kommt. So kann bei starken Wechselwirkungen zwischen Spitze und Probe ein kleiner Teil der Schwingungsenergie des Federbalkens in Oberschwingungen übergehen, so dass die gemessene Amplitude der fundamentalen Biegeschwingung sinkt, obwohl die Energie des Federbalkens vollständig erhalten bleibt. Bei den meisten RKM-Experimenten ist dieser Effekt aber vernachlässigbar klein. So liegt bei typischen Amplituden und Federkonstanten der Anteil der in die Oberschwingung übergegangenen Energie bei etwa 1 ‰.

Ein anderer Effekt, der zu Schwierigkeiten bei der Interpretation von Messergebnissen führen kann, entsteht durch das Zusammenspiel der Abstands- und Amplitudenregelung während einer Messung. In [47] wurde ein Rasterkraftmikroskop mit beiden Regelkreisen simuliert und für verschiedene Messparameter untersucht. Es zeigt sich, dass die Größe der gemessenen Dissipation von der Wahl der Rastergeschwindigkeit und der Einstellung des Proportional- und Integralanteils des Amplitudenregelkreises abhängt. Unter bestimmten Bedingungen schwingt der Amplitudenregelkreis mit der Frequenz des Messsignals, wodurch große Anregungsamplituden gemessen werden, die nicht auf eine große Energiedissipation zurückgehen.

Auch eine laterale Verschiebung zwischen Topographie- und Dämpfungsbildern, wie sie bei Messungen mit atomarer Auflösung gefunden wurde [48], kann unter Umständen mit einem Reglerartefakt erklärt werden. Ist einer der beiden beteiligten Regelkreise zu langsam eingestellt, reagiert die Regelung mit einer nicht zu vernachlässigenden zeitlichen Verzögerung auf das Messsignal, so dass Topographie- und Dämpfungsbild entlang der schnellen



Rasterrichtung gegeneinander verschoben sind. In einem solchen Fall ist die Verschiebungsrichtung allerdings abhängig von der Richtung der Rasterbewegung. Daher variiert bei Änderung der Rasterrichtung auch die Verschiebung von Topographie- gegen Dämpfungsbild entsprechend. Dies kann als einfacher Test dienen, um ein solches Artefakt auszuschließen. Der Einstellung der beiden Regelkreise kommt also eine große Bedeutung zu, so dass diese bei jeder Messung optimiert werden sollten um die beschriebenen Messartefakte zu vermeiden.

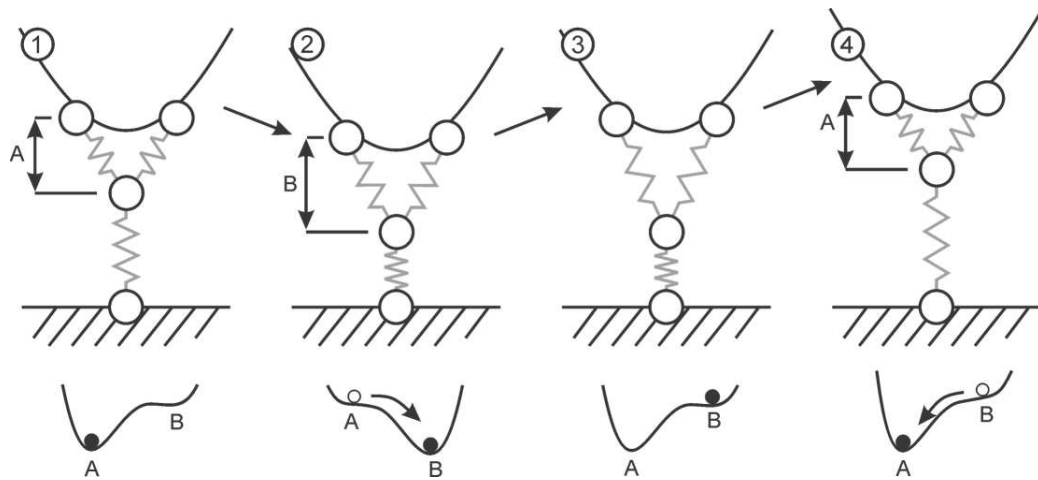
Da die Dissipation abstandsabhängig ist, kann auch ein perfekt eingestellter Topographieregelkreis zur Messung einer scheinbaren Dissipation führen. Bei atomarer Auflösung variiert der Topographieregelkreis den Abstand zwischen Spitze und Probe, um die Frequenzverschiebung konstant zu halten. Allein dadurch kann bereits eine Variation des Dissipationssignals entstehen. Um die reale Dissipation von der scheinbaren Dissipation zu trennen, sollten Messungen bei konstantem Abstand, d.h. bei abgeschaltetem Topographieregelkreis, durchgeführt werden.

### **Geschwindigkeitsabhängige Dissipation**

Die geschwindigkeitsabhängige Dissipation (in der Literatur oft auch als *viscous damping* bezeichnet) wird durch eine dissipative Kraft beschrieben, die proportional zur Geschwindigkeit der Spitze ist:  $F_{\text{Diss}}(z) = \beta(z)\dot{z}$ . Dabei ist  $\beta$  die Dämpfung. Ein Beispiel für einen solchen dissipativen Mechanismus ist die Joulesche Dissipation. Dazu kommt es zum Beispiel bei einer Spitze, die lokalisierte Ladungen trägt und die sich oberhalb einer leitfähigen Probe befindet. In der Probenoberfläche werden Bildladungen induziert und das System wirkt wie ein Kondensator (vgl. Kapitel 1.2.3). Schwingt die Messsonde, so wird der Kondensator mit der Oszillationsfrequenz auf- und entladen und in den Ladeströmen wird Energie dissipiert. Liegt die Zeitkonstante des Kondensators in der Größenordnung der Periodendauer der Oszillation der Messsonde, so ist die kapazitive Kraft zwischen Probe und Spitze unterschiedlich für Annäherung und Entfernung der Spitze von der Probe. Die Joulesche Dissipation kann zwar einen allgemeinen Beitrag zur Dämpfung liefern, erklärt jedoch nicht die atomare Auflösung in Dissipationsbildern, wie sie in der Literatur beschrieben wird [48, 49].

### **Hysteresebedingte Dissipation**

Ein anderer Erklärungsansatz für die Ursache der Dissipation wird bei der hysteresebedingten Dämpfung verfolgt. Zeigt eine Wechselwirkung eine Hysterese zwischen Annäherung und Entfernung von Spitze und Probe während



**Abbildung 1.12:** Modell für einen hysteresebedingten Dissipationsmechanismus. Zu Beginn ist die Spitze in (1) relativ weit von der Oberfläche entfernt. Das Spitzenatom befindet sich im Abstand A zu den anderen Atomen der Spitze und damit in einem globalen Potentialminimum. Durch die Annäherung der Spitze an die Probe in (2) wird die Potentiallandschaft modifiziert, und es entsteht ein neues globales Potentialminimum, so dass das Spitzenatom eine neue Position einnimmt. In (3) wird die Spitze wieder auf den Abstand von (1) zurückgezogen. Position B stellt ein lokales Potentialminimum dar, so dass das Spitzenatom in dieser Position verbleibt. Bei weiterer Entfernung der Spitze von der Probe in (4) verschwindet das lokale Potentialminimum bei B und das Spitzenatom springt zurück in Position A. Somit gibt es eine Hysterese zwischen der Annäherung und dem Zurückziehen der Spitze, da das Spitzenatom bei gleichem Abstand in (1) und (3) unterschiedliche Positionen besetzt. Damit geht eine Energiedissipation einher. Mit einem solchen Hysterese Mechanismus kann auch die atomare Auflösung im Dissipationskanal erklärt werden. Das Modell verdeutlicht, dass die Stärke der dissipativen Prozesse stark abhängig ist von der Bindung zwischen dem vordersten Spitzenatom und den anderen Atomen der Spitze. Es ist zu beachten, dass bei den in dieser Arbeit besprochenen Messungen die Amplituden deutlich größer sind als die in dieser Abbildung gezeigte Spitzenbewegung, so dass der hier gezeigte Hysteresezyklus bei jedem einzelnen Schwingungszyklus durchlaufen wird. Wird der untere Umkehrpunkt der oszillierenden Spitze weiter an die Probe angenähert, so vergrößert sich die Hystereseschleife und damit auch die dissipierte Energie. Eine starke Abstandsabhängigkeit der Dissipationsenergie ist die Folge, die auch experimentell beobachtet wird.

eines Oszillationszyklus, so kommt es dadurch zur Dissipation von Energie. Ein Beispiel für eine solche Wechselwirkung ist die Adhäsion zwischen Spitze und Probe. Wird die Spitze einer nicht-oszillierenden Messsonde sehr nah an eine Probe gebracht, so kommt es bei einem bestimmten Abstand, wenn der Kraftgradient der Spitze-Probe-Wechselwirkung größer als die Federkonstante ist, zum so genannten *jump-to-contact*, d.h. einem Einspringen der Spitze in den Kontakt mit der Probenoberfläche [50]. Die Kontaktfläche zwischen Spitze und Probe wird dann von vielen Atomen gebildet. Beim Zurückziehen

der Spitze reißt der Kontakt zwischen Spitze und Probe erst ab, wenn der Abstand  $z$  zwischen der Basis des Federbalkens und der Probenoberfläche (vgl. Abbildung 1.10) größer ist als beim Einspringen in den Kontakt. Die Kraft-Distanz-Kurve für Annäherung und Zurückziehen der Spitze zeigt also eine Hysterese.

Im dynamischen Modus kann eine solche Hysterese ebenfalls zustande kommen. Da bei den verwendeten Federbalken die Resonanzfrequenzen  $f_0$  im Bereich von 160 bis 190 kHz liegen (vgl. Tabelle 1.1), wird bei Datenaufnahmezeiten von 1 ms pro Bildpunkt über mehr als 100 Schwingungszyklen gemittelt, so dass die einzelne Hystereseschleife nicht aufgelöst werden kann. Wird im CA-Modus gearbeitet, führt das Auftreten einer Hysterese zu einem Anstieg der Anregungsamplitude  $a_{\text{exc}}$ , im CE-Modus ist ein Sinken der Amplitude zu erwarten.

Um die atomar aufgelöste Abbildung im Dissipationskanal zu erklären, schlagen Sasaki und Tsukada [51] für den dynamischen Modus einen Hysteresemechanismus vor, der auf einer reversiblen Verschiebung des vordersten Spitzenatoms während eines Schwingungszyklus basiert (siehe dazu auch Abbildung 1.12). Bei Annäherung der Spitze an die Probe springen ein oder mehrere Atome der Spitze in Richtung der Probenoberfläche, da die Potentiallandschaft oberhalb der Probe durch die Einwirkung der Spitze entsprechend modifiziert wird. Beim Zurückziehen der Spitze wird die Potentialbarriere erst bei einem größeren Spitze-Probe-Abstand wieder überschritten, so dass die Rückkehr in die Ausgangskonfiguration mit einer Hysterese verbunden ist. Simulationsrechnungen zeigen, dass die Energiedissipation bei einem solchen Vorgang in einer Größenordnung liegt, wie sie auch experimentell beobachtet wird. Auch die deutliche Abstandsabhängigkeit der Energiedissipation, die in vielen Experimenten nachgewiesen wurde, kann mit dem gezeigten Modell erklärt werden. Ein Kontrast auf atomarer Skala im Dissipationskanal kann ebenfalls auf diese Weise simuliert werden und auch die zum Teil experimentell beobachtete Kontrastinversion des Dämpfungsbildes im Vergleich mit dem Topographiebild ist im Rahmen dieses Modells erklärbar [52]. Es ist zu beachten, dass die dissipativen Prozesse hochgradig von der Stärke der Bindungen zwischen den beteiligten Atomen abhängen. Damit wird klar, dass die Konfiguration des vordersten Spitzenendes von hoher Bedeutung für die Größe der dissipierten Energie ist.



# Kapitel 2

## Magnetische Austauschkraftmikroskopie

Nachdem im vorangegangenen Kapitel die grundlegenden Zusammenhänge bei der herkömmlichen Rasterkraftmikroskopie erläutert wurden, konzentriert sich der nun folgende Abschnitt auf die magnetische Austauschkraftmikroskopie, deren erstmalige experimentelle Realisierung den Mittelpunkt dieser Arbeit bildet. Dazu werden zunächst das Konzept dieser Mikroskopietechnik sowie die unterschiedlichen experimentellen Ansätze zur Durchführung eines solchen Experimentes behandelt. Zudem werden die theoretischen und experimentellen Vorarbeiten auf diesem Gebiet dargestellt, und es wird auf die Voraussetzungen für die experimentelle Umsetzung solcher Experimente eingegangen.

### 2.1 Einleitung

Die magnetische Austauschkraftmikroskopie (MAKM, im englischen auch MExFM von *magnetic exchange force microscopy*) zielt auf die direkte Detektion der magnetischen Austauschkräfte mit einem Rasterkraftmikroskop ab und wurde erstmals in [53] beschrieben. Anders als bei einem Magnetkraftmikroskop (MKM) (vgl. Kapitel 1.2.3), wo die magnetische Dipolwechselwirkung als bildgebende Wechselwirkung verwendet wird, soll bei der MAKM die magnetische Austauschkraft zwischen einem magnetischen Atom an der Probenoberfläche und dem vordersten Atom einer magnetischen Spitze nachgewiesen werden. Da die Wechselwirkung sehr kurzreichweitig ist, ermöglicht diese Technik eine atomar aufgelöste Abbildung der magnetischen Struktur an der Oberfläche eines Festkörpers. Bislang war eine derart hohe magnetisch sensitive Ortsauflösung nur mit der spinpolarisierten

Rastertunnelmikroskopie (SP-RTM) möglich [54, 55]. Allerdings ist diese Methode auf leitfähige Proben beschränkt, da die Abbildung auf der Messung eines Tunnelstromes zwischen der Probe und der Spitze basiert. Ein anderer federbalkenbasierter Ansatz zur Detektion einzelner Spins wird in der magnetischen Resonanzkraftmikroskopie (MRFM für *magnetic resonance force microscopy*) verfolgt [56, 57]. Diese Methode vereint Konzepte aus der Rasterkraftmikroskopie und der magnetischen Resonanzspektroskopie (NMR für *nuclear magnetic resonance*) und ist ein tomographisches, also tiefenauflösendes Verfahren. Es ist damit möglich, einzelne Spins innerhalb von Festkörpern zu detektieren, allerdings ist die Methode mit einem hohen experimentellen Aufwand verbunden, da die zu messenden Kräfte sehr klein sind. So werden beispielsweise speziell gefertigte Messsonden verwendet, mit denen die notwendige Kraftsensitivität im aN-Bereich erreicht wird. Die gemessene laterale Ausdehnung des Signals eines einzelnen Elektronenspins liegt dabei bei etwa 19 nm, so dass mit dieser Methode momentan keine atomare Auflösung, also die Detektion zweier Elektronenspins, die auf benachbarten Atomen lokalisiert sind, möglich ist<sup>†</sup>.

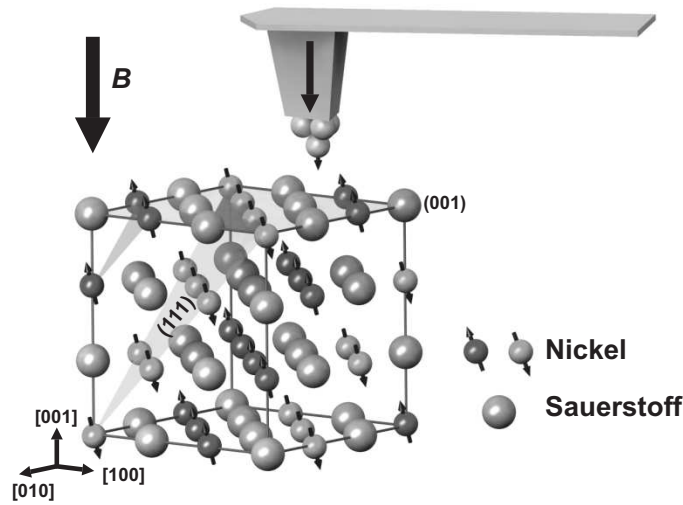
Wie in Kapitel 5 gezeigt wird, kann die magnetische Austauschkraftmikroskopie unabhängig von der Leitfähigkeit der Proben, deren Spinstruktur an der Oberfläche mit atomarer Auflösung im Realraum abbilden. Außerdem sollte es künftig möglich sein, magnetische Dissipationsprozesse sowie die Abstandsabhängigkeit der magnetischen Austauschwechselwirkung im Spektroskopiemodus zu untersuchen.

Um nachzuweisen, dass in einem MAKM-Experiment tatsächlich die kurzreichweitige magnetische Austauschkraft detektiert wird, sind unterschiedliche Ansätze möglich, von denen hier vier beispielhaft diskutiert werden:

- 1.) Die spinsensitive, atomar aufgelöste Abbildung einer antiferromagnetischen Oberfläche.
- 2.) Die atomar aufgelöste Abbildung der Spinstruktur einer Domänenwand eines Ferromagneten.
- 3.) Die spinsensitive Abbildung einer ferromagnetischen Oberfläche mit anschließender Umkehrung der Spitzen- oder Probenmagnetisierung.
- 4.) Der Nachweis der oszillatorischen Abstandsabhängigkeit einer RKKY-Wechselwirkung zwischen Spitze und Probe mit Hilfe von  $\Delta f(z)$ -Spektroskopiekurven.

---

<sup>†</sup>Das Signal eines einzelnen Kernspins, das etwa um den Faktor 1000 schwächer ist, konnte bislang noch nicht detektiert werden.



**Abbildung 2.1:** Schema der magnetischen Austauschkraftmikroskopie auf dem Antiferromagneten NiO. An der (001)-Oberfläche sind Nickelatome zu sehen, deren magnetische Momente abwechselnd auf- und abwärts zeigen. Um diese unterschiedliche magnetische Ausrichtung zu messen, wird eine magnetisch beschichtete Spitze zur Messung verwendet, deren magnetische Ausrichtung durch ein äußeres Magnetfeld mit einer Flussdichte von bis zu 5 T ausgerichtet wird [58].

In der vorliegenden Arbeit wird der erste Ansatz verfolgt, der auch in Abbildung 2.1 schematisch dargestellt wird. Eine antiferromagnetisch geordnete Oberfläche (in diesem Fall NiO(001)) wird mit einer magnetisch beschichteten Spitze vermessen, mit dem Ziel, die abwechselnd orientierten magnetischen Momente auf atomarer Skala abzubilden. Ein Vorteil dieses Ansatzes liegt in der Eliminierung des Einflusses des Streufeldes der Probe, so dass kein Kontrast durch eine magnetostatische Wechselwirkung zwischen Spitze und Probe zu erwarten ist. Stimmt die chemische Oberflächeneinheit zelle überein, ist eine klare Trennung der kurzreichweitigen, magnetischen Wechselwirkungen von den chemischen Wechselwirkungen möglich. Prinzipiell kommen als Spitzenmaterial sowohl ferromagnetische als auch antiferromagnetische Materialien in Frage. Für die hier durchgeführten Messungen wurden allerdings ferromagnetische Beschichtungen gewählt, da diese, wie es in Abbildung 2.1 dargestellt ist, durch ein äußeres Magnetfeld so ausgerichtet werden können, dass ein hoher magnetischer Austauschkontrast zu erwarten ist.

Aufgrund der genannten Faktoren erscheint der erste Ansatz als vorteilhaft gegenüber den Ansätzen 2.) und 3.). So könnte man bei 2.) zwar die magnetostatische Wechselwirkung eliminieren durch die Verwendung einer antiferromagnetischen Spitze, trotzdem bleibt das Problem, auf der Probe



eine Domänenwand zu finden. Die Breite der Domänenwand muss außerdem schmal genug sein, um sie vollständig mit atomarer Auflösung abbilden zu können. Punkt 3.) ist verglichen mit 1.) experimentell anspruchsvoller, da für die Umkehrung der Spitzen- oder Probenmagnetisierung das äußere Magnetfeld umgekehrt werden muss. Nur so kann auf Ferromagneten abseits von Domänenwänden die magnetische Austauschwechselwirkung von der chemischen Wechselwirkung unterschieden werden. Da sich bei der Änderung des Magnetfeldes mechanische Spannungen im Kryostaten ruckartig lösen, muss bei der verwendeten Anlage die Probe dabei zurückgezogen werden, um eine unabsichtliche Kollision zwischen Spitze und Probe zu vermeiden. Nach einer vorsichtigen Annäherung der Probe an die Spitze muss derselbe Bereich der Probe nochmals abgebildet werden, wobei Oberflächendefekte als Orientierungshilfe verwendet werden sollten. Der geschilderte Ablauf ist recht langwierig und erfordert eine langzeitstabile Spitze, die während der gesamten Prozedur unverändert bleibt. Zudem muss sichergestellt werden, dass nur die Probe oder die Spitze ummagnetisiert wird und nicht beide zugleich. Der Ansatz, der in Punkt 4.) geschildert wird, wurde in einer vorangegangenen Diplomarbeit verfolgt [40]. Bei dieser Methode ist nicht unbedingt atomare Ortsauflösung erforderlich, sondern man verwendet Spektroskopiekurven und die oszillatorische Abstandsabhängigkeit zum Nachweis der RKKY-Wechselwirkung. Bislang gelang auch auf diesem Wege noch kein experimenteller Nachweis für die erfolgreiche Detektion der magnetischen Austauschwechselwirkung.

Für die konkrete Durchführung eines Experimentes nach 1.) auf einem Antiferromagneten gibt es zwei mögliche Ansätze. Zum einen kann eine atomar aufgelöste topographische Abbildung bei sehr kleinen Abständen erfolgen, um in den Wechselwirkungsbereich der magnetischen Austauschkraft vorzustoßen. Ein anderer Ansatz ist die Messung eines  $\Delta f(z)$ -Spektroskopiefeldes mit lateraler atomarer Auflösung (siehe auch Kapitel 1.2.5). Dabei wird an jedem Rasterpunkt eine  $\Delta f(z)$ -Kurve aufgenommen, während die Probe an die Spitze angenähert wird. So ist es möglich, auch im repulsiven Bereich, also bei sehr kleinen Spitze-Probe-Abständen, zu messen. Bei der einfachen Messung der Topographie ist dieser Bereich nur schwer zugänglich, da dort die Polarität des Topographie-Reglers umgeschaltet werden muss im Vergleich zum attraktiven Wechselwirkungsregime (siehe dazu auch Kapitel 6.1). Beide geschilderten Ansätze werden in der vorliegenden Arbeit verwendet und besprochen (siehe Kap. 5 und Kap. 6).

Für die hier vorgestellten Experimente wurde hauptsächlich die (001)-Oberfläche von NiO verwendet, da sie die genannten Voraussetzungen erfüllt und bereits in einigen Voruntersuchungen gezeigt wurde, dass die atomare



Auflösung der Oberfläche möglich ist<sup>†</sup> (siehe Kapitel 2.2.2). Zudem ist eine vergleichsweise einfache *in situ*-Präparation geeigneter Proben durch Spalten eines Einkristalls möglich. Die Spinausrichtung an der Oberfläche sowie der Grad der Oberflächenrekonstruktion sind bekannt und weisen die Probe als taugliches Testsystem für ein MAKM-Experiment aus. Zudem wurde in theoretischen Vorarbeiten für dieses System die Detektierbarkeit der magnetischen Austauschwechselwirkungen mit einem Rasterkraftmikroskop vorhergesagt.

## 2.2 Vorarbeiten am Modellsystem NiO(001)

### 2.2.1 Simulationsrechnungen

Um die magnetischen Wechselwirkungen abzuschätzen, die in einem MAKM-Experiment zu erwarten sind, wurden von verschiedenen Autoren Rechnungen an vereinfachten Modellsystemen durchgeführt [53, 59–63]. Dabei können die Untersuchungen in [59–61] für die vorliegende Arbeit nur grobe Anhaltspunkte liefern, da hier ausschließlich rein metallische Systeme in sehr einfachen Geometrien untersucht wurden. Allen drei Arbeiten ist gemein, dass die berechneten Kräfte für Abstände von einigen zehntel Nanometern in der Größenordnung von etwa 0,1 nN liegen.

Die Modellierung eines Systems, das aus einer Spitze oberhalb einer NiO(001)-Oberfläche besteht, wird in [62–64] behandelt. Foster *et al.* verwenden *ab initio*-Methoden, um die Größe der magnetischen Austauschwechselwirkungen zwischen einer metallischen Spitze mit feststehendem Spin und einer NiO-Probe zu berechnen. Um die Rechnungen zu vereinfachen, wurden Spitzen verwendet, die nur aus einem einzelnen H- bzw. Na-Atom mit festgehaltener Spinorientierung bestehen, wobei die Richtung (anti)parallel zu den Nickelatomen der Oberfläche ausgerichtet wurde. Es wurden die Potentiale der Spitze-Probe-Wechselwirkungen berechnet und differenziert, um so die wirkenden Kräfte zu bestimmen. Für typische Messparameter wurde die zu erwartende Frequenzverschiebung in Abhängigkeit vom Spitze-Probe-Abstand errechnet. Für eine chemisch inaktive Wasserstoffspitze wird eine Frequenzverschiebung von 50 mHz, die als experimentell minimal detektierbare Frequenzverschiebung angenommen wird, bei einem Spitze-Probe-Abstand von 0,375 nm erreicht. Eventuelle Relaxationen der Spitze oder der Probe wurden bei diesen Rechnungen nicht berücksichtigt.

---

<sup>†</sup>Es wurden auch einige Experimente auf der isostrukturellen MnO(001)-Oberfläche durchgeführt, die über ähnliche Eigenschaften verfügt wie die NiO(001)-Oberfläche. Siehe dazu Kapitel 5.5.

Einen etwas anderen Ansatz verfolgen Momida und Oguchi in [63]. Sie berechnen die magnetischen Austauschkräfte zwischen einer Fe-Monolage, die als Spitzenmodell dient, und der (001)-Oberfläche eines fünflagigen NiO-Kristalls. Auch hier werden Relaxationseffekte vernachlässigt und alle Atome als ortsfest angenommen. Die Untersuchung zeigt, dass für Spitze-Probe-Abstände unterhalb von etwa 0,34 nm eine messbare direkte magnetische Austauschkraft einsetzt, deren Größe einige zehntel Nanonewton erreicht. Ferner zeigen sich auch auf den Sauerstoffatomen schwache Kraftunterschiede, die auf einen Superaustausch mit den Nickelatomen in der zweiten Atomlage schließen lassen.

In beiden Studien, die sich direkt mit der Messung auf NiO(001) befassen, wird also für sehr kleine Spitze-Probe-Abstände eine Austauschkraft vorhergesagt, die in der Größenordnung einiger zehntel Nanonewton liegt und daher prinzipiell mit heutigen Rasterkraftmikroskopen messbar ist. Infolge der Kurzreichweitigkeit der wirkenden Kräfte ist zu erwarten, dass zunächst der atomare Kontrast einsetzt, bevor bei sehr kleinen Abständen zusätzlich ein magnetischer Kontrast sichtbar wird.

Leider wurden Simulationsrechnungen bislang nur mit stark vereinfachten Spitzen durchgeführt. Die Übertragbarkeit auf reale Spitze-Probe-Systeme bleibt daher fraglich. Insbesondere der Verzicht auf Relaxierungseffekte schränkt die Aussagekraft der Rechnungen ein, da bekannt ist, dass diese besonders für sehr kleine Spitze-Probe-Abstände eine grosse Rolle spielen. Für künftige theoretische Arbeiten wäre also die Modellierung einer realistischen Spitze unter Einbeziehung der Relaxierungseffekte an Spitze und Probe wünschenswert.

## 2.2.2 Experimentelle Arbeiten

Die Untersuchung der NiO(001)-Oberfläche mit einem Rasterkraftmikroskop wurde bereits in einer Reihe von Veröffentlichungen behandelt. So wird die topographische Abbildung mit atomarer Auflösung bei Raumtemperatur in [65–68] thematisiert. Tieftemperaturmessungen wurden ebenfalls durchgeführt, wobei neben der atomar aufgelösten Abbildung der Oberfläche [69] auch Spektroskopiekurven an verschiedenen Atompositionen [34, 48], beziehungsweise Spektroskopiefelder [44, 70] mit lateraler atomarer Auflösung gemessen wurden. Die Detektion magnetischer Austauschkräfte wurde in den genannten Studien anvisiert, allerdings gelang bislang kein eindeutiger Nachweis eines erfolgreichen MAK-M-Experimentes. Zwar kommen die Autoren in [71] und [68] zu dem Schluss, dass dort ein erfolgreicher Nachweis einer

spinsensitiven Messung erbracht wurde, allerdings gibt es einige Gründe, die Zweifel an dieser Aussage aufkommen lassen. Im Folgenden sollen daher diese Arbeiten etwas detaillierter besprochen werden.

In [67, 68, 71] werden Topographiedaten gezeigt, die mit unterschiedlichen Spitzen bei Raumtemperatur gemessen wurden. Es wurden drei Arten von Spitzen verwendet: nickelbeschichtete, eisenbeschichtete und unbeschichtete Siliziumspitzen. Mit allen drei Spitzenarten wurde atomare Auflösung erzielt, wobei allerdings in den Topographiebildern nur die chemische, nicht aber die magnetische Struktur sichtbar ist. Zur weiteren Auswertung verwenden die Autoren ein Mittelungsverfahren, um die Korugationen zwischen benachbarten atomaren Maxima und Minima entlang der  $[110]$ - und  $[1\bar{1}0]$ -Richtungen miteinander zu vergleichen. Wie in Abbildung 2.1 skizziert und in Kapitel 4.1 erläutert, sind die magnetischen Momente an der (001)-Oberfläche entlang einer der beiden genannten Richtungen alle parallel ausgerichtet, während die der entsprechend anderen Richtung eine alternierende Spinausrichtung zeigen. Strukturell und chemisch sind die beiden Richtungen dabei ununterscheidbar. Daher ist nur bei der erfolgreichen Detektion der magnetischen Austauschkraft mit einer Asymmetrie zwischen diesen beiden Richtungen zu rechnen. In ihrer Auswertung erhalten die Autoren jedoch bei allen verwendeten Spitzen eine Asymmetrie, wobei diese bei den magnetisch beschichteten Spitzen größer ist als bei den unbeschichteten und daher nichtmagnetischen Spitzen. Die Abbildung einer Asymmetrie mit nichtmagnetischen Spitzen ist nicht zu erwarten und deutet auf einen systematischen Fehler der Auswertung hin.

Derselbe Datensatz wurde mit einer identischen Auswertung mehrfach veröffentlicht [67, 68, 71], wobei die Deutung der Ergebnisse durch die Autoren sehr unterschiedlich ausfällt. So wird das Ergebnis der Auswertung in der ältesten der drei Veröffentlichungen [71] mit einer erfolgreichen Detektion der kurzreichweitigen magnetischen Wechselwirkungen zwischen einer ferromagnetischen Spitze und einer antiferromagnetischen Probe erklärt, während in einer späteren Publikation [67] als Grund für die Asymmetrie ein möglicher, systematischer Fehler genannt wird, der auf eine asymmetrische Struktur und Orientierung der Spitze zurückzuführen ist und noch weiterer Untersuchungen bedarf. Wenige Monate später wird in einem Artikel in der gleichen Zeitschrift [68] auf Grundlage desselben Datensatzes wiederum das Fazit gezogen, dass eine spinabhängige Messung erfolgreich durchgeführt wurde.

Da in diesen Arbeiten kein spinabhängiger Kontrast in den Rohdaten sichtbar ist und das verwendete Auswerteverfahren einige Fehlerquellen aufweist, durch die die beobachteten Asymmetrien ebenfalls erklärbar wären, sind jedoch Zweifel an dieser Erklärung angebracht. Beispielsweise ist die

Messung der Korrugation anhand einzelner Schnittlinien relativ willkürlich, da sie von der konkreten Position der Schnittlinie abhängt. Eine leicht veränderte Lage der Schnittlinie führt dabei aufgrund des nicht vernachlässigbaren Rauschens bereits zu Unterschieden in der gemessenen Korrugation. Dies ist insbesondere dann problematisch, wenn es, wie im vorliegenden Fall, um sehr kleine Signalunterschiede geht.

Deutlich weniger fehleranfällig und daher methodisch gesehen für eine Auswertung periodischer Signale wesentlich besser geeignet ist ein Nachweis mit Hilfe einer Fourieranalyse der Bilddaten, in der jedes periodische Signal mit einer Amplitude oberhalb des Breitbandrauschens eindeutig als Intensitätsmaximum im Frequenzraum nachgewiesen werden kann (die Fourieranalyse wird im Anhang A.4 näher beschrieben). Auf der (001)-Oberfläche von NiO sollte wegen der unterschiedlichen Größe der strukturellen und magnetischen Oberflächeneinheitenzellen ein Austauschkontrast deutlich von einem rein chemischen Kontrast unterscheidbar sein. Im Gegensatz zum genannten Mittelungsverfahren werden hierbei alle Bildpunkte der Messung verwendet und nicht nur eine beschränkte Auswahl von Punkten entlang bestimmter Schnittlinien. So werden die oben genannten Fehlerquellen vermieden, die alle auf einen menschlichen Einfluss zurückgehen. Zudem ist das Verfahren sehr viel einfacher und schneller durchzuführen als das oben beschriebene Mittelungsverfahren.

Trotz entsprechender Nachfragen an die Autoren bei der Präsentation ihrer Daten auf Konferenzen wurden zu keinem Zeitpunkt Fourierbilder der Topographiedaten gezeigt, um ihre Interpretation der Messergebnisse zu unterstützen. Ein Aspekt, auf den die Autoren ebenfalls nicht eingegangen sind, ist die Möglichkeit einer periodischen Störquelle (zum Beispiel über eine elektrische Einstreuung), die bei entsprechender Phase und Periode ebenfalls zu einem scheinbaren Kontrast führen kann. Ein solches Messartefakt kann beispielsweise durch Rotation der Rasterrichtung oder durch Änderung der Rastergeschwindigkeit ausgeschlossen werden (siehe dazu auch Anhang B). Zusammen mit den oben genannten Unstimmigkeiten, die sich aus der Auswertung ergeben, kann bei den genannten Arbeiten also nicht von einem zweifelsfreien Nachweis einer spinabhängigen Messung gesprochen werden.

### 2.2.3 Experimentelle Anforderungen

Für die angestrebten MAKM-Messungen kann aus den Vorarbeiten eine Reihe von experimentellen Anforderungen abgeleitet werden, die erfüllt sein sollten. Die einzelnen Punkte werden im Anschluss kurz erläutert.

- 1.) Es wird wahre atomare Auflösung erreicht.

- 2.) Das vorderste Spitzenende besteht aus magnetischen Atomen.
- 3.) Die Spins von Spitze und Probe sind möglichst (anti)parallel ausgerichtet.
- 4.) Das magnetische Moment am vordersten Spitzenende ist stabil.

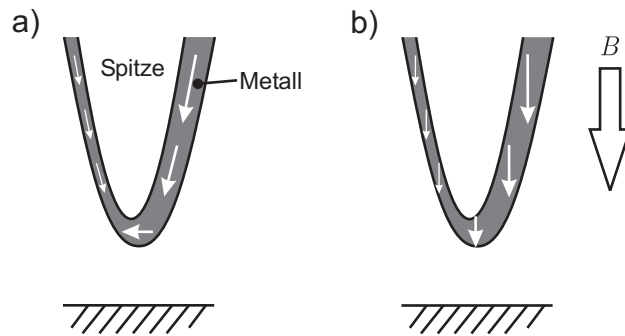
zu 1.): Wahre atomare Auflösung wird dann erzielt, wenn nicht nur die Gitterperiodizität der Oberfläche durch die Messung wiedergegeben wird, wie es beispielsweise bei Messungen im Kontaktmodus mit einem RKM beobachtet wird, sondern auch die korrekte Abbildung von Punktdefekten möglich ist. Die Abbildung kommt dann durch die Wechselwirkungen eines einzelnen Atoms an der Spitze mit der Probenoberfläche zustande. Wegen der dazu notwendigen geringen Spitze-Probe-Abstände ist ein sehr stabiles Mikroskop Voraussetzung für derartige Experimente (siehe Kapitel 2.3).

zu 2.): Für die Messung der magnetischen Austauschkraft ist das vorderste Spitzenatom entscheidend, so dass dieses in jedem Fall magnetisch sein muss, um ein erfolgreiches MAKM-Experiment zu erlauben. Üblicherweise wird dies durch Bedampfen der Spitze mit magnetischem Material erreicht (siehe dazu auch Kapitel 3).

zu 3.): Der direkte Austausch, wie er durch das Heisenberg-Modell beschrieben wird, wird durch ein Skalarprodukt zwischen den beiden wechselwirkenden Spins bestimmt (siehe Gleichung 1.6). Dadurch ergibt sich eine kosinusartige Abhängigkeit der Wechselwirkung von der relativen Ausrichtung der beiden Spins zueinander, so dass die Stärke der Wechselwirkung durch eine (anti)parallele Ausrichtung maximiert werden kann.

zu 4.): Das magnetische Moment am vordersten Spitzenende darf nicht durch die magnetische Austauschwechselwirkung zwischen dem Spitzenatom und den unterschiedlich ausgerichteten Nickelatomen der Probe hin- und hergeklappt werden, da dann kein magnetischer Austauschkontrast zu erwarten ist.

Betrachtet man die bisherigen experimentellen Studien, so wurden beispielsweise in [70] die Punkte 1.) und 2.) mit hoher Wahrscheinlichkeit realisiert. Obwohl zahlreiche Bilder mit atomarer Auflösung und hohem Signal-zu-Rausch-Verhältnis gemessen wurden, war der Nachweis einer erfolgreichen Messung der magnetischen Austauschwechselwirkung dennoch nicht möglich. Ein wesentlicher Grund dafür könnte in den Punkten 3.) und 4.) liegen. Da die Spinausrichtung am vordersten Spitzenende in bisherigen Experimenten nicht kontrolliert werden konnte, ist es möglich, dass die Spins der Spitze und der Probe ungünstige relative Orientierungen zueinander eingenommen haben, so dass eine verschwindende Austauschwechselwirkung resultiert. Auch



**Abbildung 2.2:** Effekt eines äußeren Magnetfeldes auf die Ausrichtung der Magnetisierung der Spitze. a) Ohne äußeres Magnetfeld wird die Magnetisierung der Metallbeschichtung durch die Formanisotropie bestimmt. Die Ausrichtung des Spins am vordersten Spitzeneende ist parallel zur Probenoberfläche. b) Wird ein starkes Magnetfeld von außen angelegt, so richtet sich die Magnetisierung im Idealfall senkrecht zur Probenoberfläche aus. In den durchgeführten Experimenten wurden Hinweise auf Abweichungen von der hier gezeigten Ausrichtung beobachtet. Diese werden eingehend in Kapitel 5.2.6 behandelt.

eine nicht-stabile Orientierung des Spins des vordersten Spitzenatoms wie unter 4.) erläutert, kann für die bisherigen Experimente nicht ausgeschlossen werden.

Um dieses Problem zu vermeiden, steht beim hier verwendeten Mikroskopsystem ein supraleitender Magnet zur Verfügung, der eine magnetische Flussdichte von bis zu 5 T liefern kann. Die Richtung des Magnetfeldes zeigt dabei senkrecht zur Probenebene. Im Idealfall sollte damit eine Ausrichtung der Magnetisierung der Spitze möglich sein, wie sie in Abbildung 2.2 zu sehen ist. Da die magnetische Ausrichtung der Nickelatome im NiO-Gitter immer eine von Null verschiedene Komponente in  $z$ -Richtung, d.h. senkrecht zur Probenoberfläche, besitzt (siehe Kap. 4.1) können auf diese Weise ungünstige Konfigurationen, in denen der Spin des vordersten Spitzenatoms senkrecht zu den Spins der Nickelatome steht, vermieden werden. Außerdem sollte durch das äußere Magnetfeld eine zusätzliche Stabilisierung des Spins an der Spitze erreicht werden, so dass der unter 4.) beschriebene Effekt ebenfalls unterdrückt wird.

Es soll nicht unerwähnt bleiben, dass grundsätzlich eine Messung der magnetischen Austauschkräfte auch ohne ein von außen angelegtes Magnetfeld möglich sein sollte. Dazu wäre es allerdings wünschenswert, die Orientierung des magnetischen Momentes am vordersten Spitzeneende durch geeignete Präparationsmethoden, wie z.B. das Aufbringen von Multilagensystemen aus mehreren magnetischen Lagen, zu kontrollieren. Da bislang keine gesicherten Kenntnisse über eine geeignete Präparation solcher Messspitzen vorliegen, wurde im Rahmen dieser Arbeit dieser Ansatz nicht weiterverfolgt.



## 2.3 Der experimentelle Aufbau

### 2.3.1 Das Tieftemperatur-Rasterkraftmikroskop

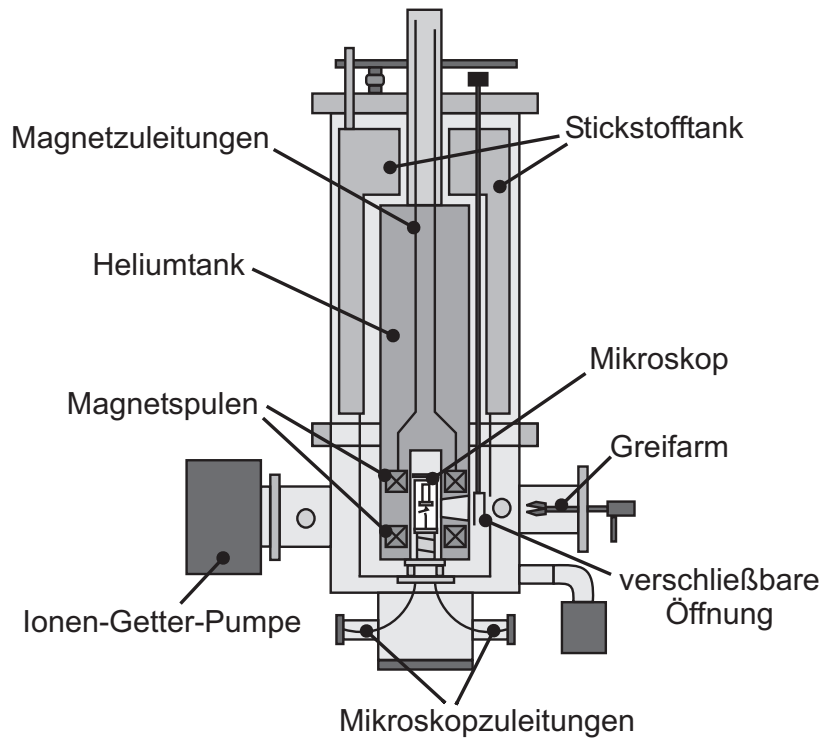
Das in dieser Arbeit verwendete Tieftemperatur-Rasterkraftmikroskop mit dazugehörigem Kryostatsystem wurde bereits im Wesentlichen in [72] und [73] beschrieben. Um das Mikroskop mit Hinblick auf Messungen mit atomarer Auflösung zu optimieren, wurden allerdings einige Veränderungen am Aufbau vorgenommen [74, 75]. Im Folgenden wird ein kurzer Überblick über die verwendete Messapparatur gegeben.

Das Mikroskop wird im Ultrahochvakuum betrieben und ist Teil eines Vakuumkammersystems, in dem typische Methoden der Oberflächenpräparation und -charakterisierung zur Verfügung stehen. So ist zum Beispiel das Heizen, Ar-Ionenätzen oder Bedampfen mit unterschiedlichen Materialien zur Präparation möglich, während zur Oberflächenanalyse niederenergetische Elektronenbeugung (LEED für *low energy electron diffraction*), Augerelektronenspektroskopie (AES) oder Messungen in einem kombinierten Raumtemperatur-RKM/RTM durchgeführt werden können.

Zur Kühlung des Mikroskops dient ein Badkryostatsystem, welches aus einem mit flüssigem Helium gefüllten, zylindrischen Innentank und einem Außentank besteht, der flüssigen oder verfestigten Stickstoff enthält (siehe auch Abbildung 2.3). In den Zwischenräumen zwischen den beiden Tanks sowie im Außenbereich um den Außentank herum herrschen Ultrahochvakuumbedingungen. Die Kryostatkammer steht aufrecht auf dem Experimentiertisch und verfügt zentral im Heliumtank über eine Bohrung, in die das zylinderförmige Mikroskop von unten eingesetzt wird. Es wird direkt an den Heliumtank angeschraubt und erfährt so eine sehr gute thermische Ankopplung an das Heliumbad.

Der Stickstofftank umgibt den Heliumtank und hält ein verspiegeltes Strahlungsschild bei tiefen Temperaturen, um die von außen kommende Wärmestrahlung abzufangen und so den Wärmeeintrag in das Heliumbad zu minimieren. Auf Höhe des Mikroskops befindet sich im Heliumtank ein supraleitender Magnet in Helmholtzanordnung, der eine magnetische Flussdichte von bis zu 5 T senkrecht zur Probenoberfläche erzeugen kann.

Zum Wechsel von Messsonde und Probe steht ein Greifarm zur Verfügung, mit dem von der Seite aus ein Zugriff auf das Mikroskop möglich ist. Dafür gibt es eine verschließbare Öffnung im Strahlungsschild sowie einen entsprechenden Ausschnitt im Stickstoff- und Heliumtank. Das Einsetzen und Herausnehmen von Proben oder Messsonden kann mit Hilfe eines Fernrohres optisch überwacht werden. Nach dem Austausch einer Probe oder Messsonde wird die Öffnung wieder geschlossen, um das Mikroskop gegen die von



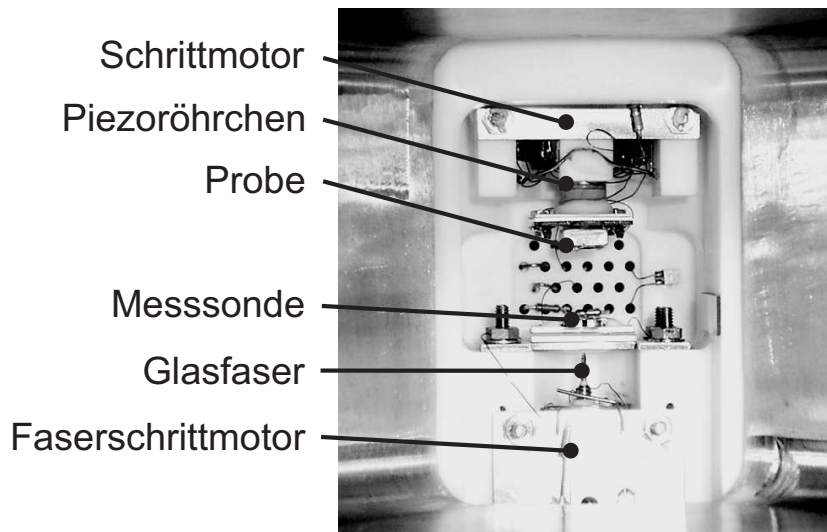
**Abbildung 2.3:** Schnittzeichnung der Kryostatkammer. Stickstoff- und Heliumtank umgeben die zentrale Bohrung, in der sich das Mikroskop befindet. Die beiden Magnetspulen des supraleitenden Magneten liegen oberhalb und unterhalb des Mikroskops. Mit Hilfe des Greifarms ist ein Zugriff auf das Mikroskop von der Seite aus möglich. Zu Reparaturzwecken kann das Mikroskop nach unten aus der Vakuumkammer abgesenkt und entnommen werden. Abbildung entnommen aus [74].

außen einwirkende Wärmestrahlung abzuschirmen. Typischerweise bleibt die Mikroskoptemperatur bei dem gesamten Vorgang unterhalb von ca. 25 K. Innerhalb von etwa einer Stunde wird die Basistemperatur von 8 K und damit das thermische Gleichgewicht des Mikroskops wieder erreicht.

Das Mikroskop im „Hamburg-Design“ basiert auf einem zylindrischen Grundkörper, der aus Macor<sup>†</sup>, einem maschinell bearbeitbaren Keramikwerkstoff, gefertigt wurde (vgl. Abb. 2.4). Bei der Auslegung des Mikroskops wurde eine spiegelsymmetrische Formgebung gewählt, um eine möglichst hohe Stabilität und eine Minimierung von Drifteffekten zu erzielen. Im oberen Teil des Mikroskops wird die Probe kopfüber eingesetzt, so dass die Probenoberfläche nach unten zeigt. Der untere Teil des Mikroskops beherbergt eine Schwalbenschwanzaufnahme für die Messsonde sowie darunter das Fa-

<sup>†</sup>Macor ist ein eingetragener Handelsname der Firma *Corning Inc.*, NY, USA.



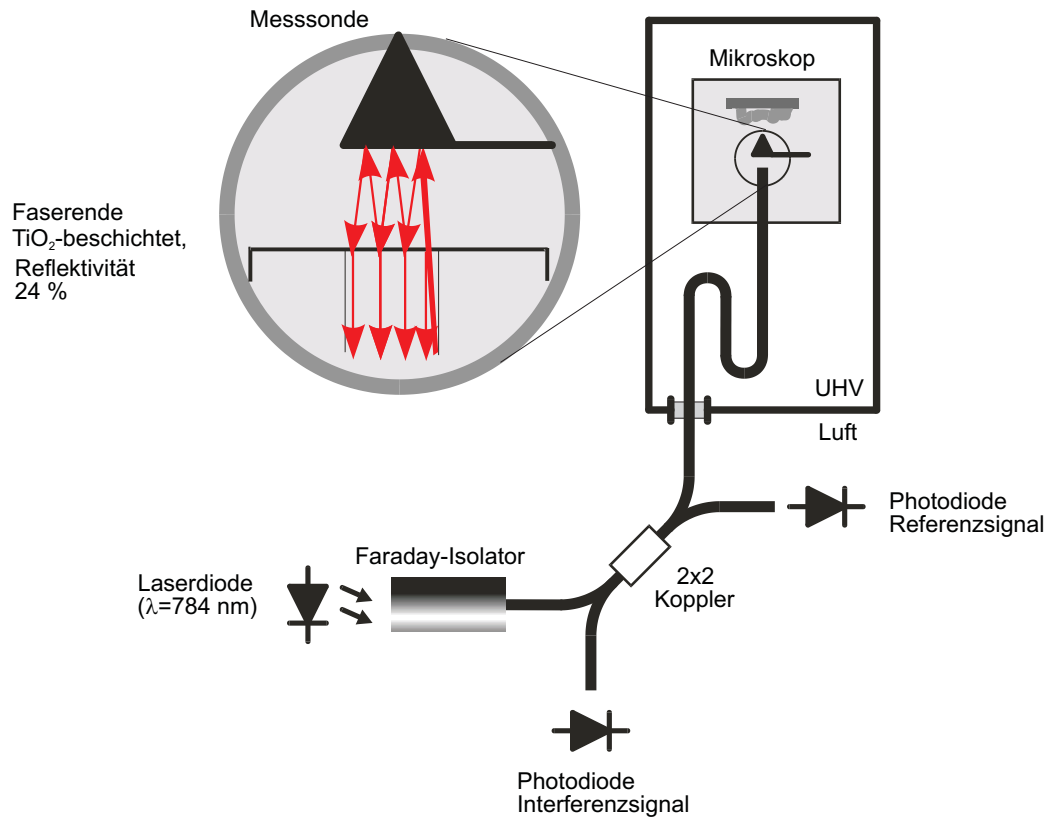


**Abbildung 2.4:** Das Mikroskop im eingebauten Zustand, umgeben von der Metallwandung des Heliumtanks. Die Probe und die Glasfaser wurden zurückgezogen, so dass ein Proben- oder Messsondenwechsel erfolgen kann. Die Probe befindet sich unterhalb des Piezoröhrchens in hängender Position. Die Messsonde ist an einem Halter befestigt und zeigt nach oben. Für den Messbetrieb werden Glasfaser und Probe jeweils mit einem Schrittmotor an die Messsonde herangefahren.

serinterferometer zur Auslenkungsdetektion. Die Grobpositionierung der Probe und der Glasfaser erfolgt jeweils über einen Schrittmotor, der bei einer Schrittweite von einigen hundert Nanometern über einen gesamten Stellweg von mehreren Millimetern verfügt. Damit können die Probe und die Glasfaser zurückgezogen werden, um das Auswechseln von Messsonde oder Probe mittels des Greifarmes zu ermöglichen. Die Rasterbewegung der Probe sowie die Bewegung in vertikaler Richtung während einer Messung werden mit einem röhrenförmigen, piezoelektrischen Stellelement ausgeführt. Die maximale Bildgröße beträgt bei einer Temperatur von etwa 8 K ca.  $1,2 \times 1,2 \mu\text{m}^2$ . Alle in dieser Arbeit vorgestellten Messungen wurden bei der Basistemperatur des Mikroskops aufgenommen.

### 2.3.2 Das faseroptische Interferometer

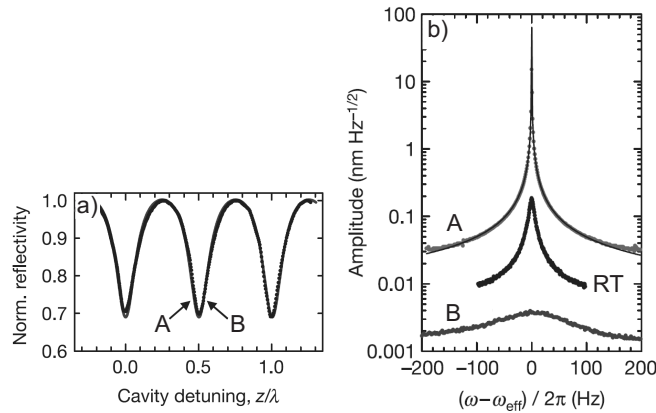
Für die Auslenkungsdetektion wird ein faseroptisches Fabry-Pérot-Interferometer verwendet wie es in [76] beschrieben wurde. Der Aufbau wurde bereits detailliert in [72] und [75] behandelt und ist in Abbildung 2.5 skizziert. Beim Betrieb des Interferometers wird der Federbalken in vielen Fällen bereits allein durch den Einfluss des Laserlichtes zu einer Schwingung bei seiner



**Abbildung 2.5:** Das Fabry-Pérot-Interferometer, welches für die Auslenkungsdetektion verwendet wird. Herzstück ist eine Glasfaser, die mit einem Schrittmotor nah an die Rückseite der Messsonde herangefahren und in die das Licht einer Laserdiode eingekoppelt wird. Ein Teil des einfallenden Lichtstrahles wird direkt am Faserende reflektiert, ohne die Faser zu verlassen, während ein anderer Teil auf die Rückseite des Federbalkens fällt und danach in die Glasfaser zurückreflektiert wird. Wie in der Skizze angedeutet, kommt es auch zu Mehrfachreflexionen zwischen Faserende und Federbalken. Die in die Glasfaser zurückgeworfenen Lichtstrahlen interferieren miteinander und zeigen abhängig vom Abstand zwischen Federbalken und Faserende eine Variation der Intensität an der Photodiode. Das Ende der Glasfaser wurde mit  $\text{TiO}_2$  teildurchlässig beschichtet, um die Reflektivität des Faserendes von etwa 4 % auf ca. 24 % zu erhöhen. Da die Reflektivität des Federbalkens bei ca. 27 % liegt, wird dadurch eine Erhöhung der Sensitivität des Interferometers erreicht [76]. Abbildung nach [75].

Resonanzfrequenz angeregt. Das deutet darauf hin, dass die Auslenkungsdetektion nicht in jedem Fall rein passiv arbeitet, sondern die mechanischen Eigenschaften des Federbalkens beeinflussen kann.

Eine nähere Untersuchung eines vergleichbaren Interferometersystems wurde in [77] durchgeführt. Dabei wurde aus einem goldbeschichteten Siliziumfederbalken und einer ebenfalls mit Gold beschichteten Glasfaser ein Fabry-



**Abbildung 2.6:** Dämpfung eines mechanischen Oszillators durch eingestrahktes Laserlicht. a) zeigt das typische Interferogramm eines Fabry-Pérot-Interferometers. Die reflektierte Intensität hängt periodisch vom Abstand zwischen dem Faserende und dem Federbalken ab. Abhängig von der Wahl des Arbeitspunktes A oder B variiert das Verhalten des Federbalkens. Die mittlere Kurve in b) zeigt das Amplitudenspektrum des Federbalkens bei Raumtemperatur ohne äußere Anregung. Allein durch thermische Anregung schwingt der Federbalken mit seiner Resonanzfrequenz. Wird A als Arbeitspunkt gewählt, so wird die Schwingung verstärkt und die Amplitude wächst an. Am Punkt B wird die Amplitude gedämpft. Die Unterdrückung der thermischen Oszillation entspricht einer Senkung der Temperatur des Federbalkens. Abbildung entnommen aus [77].

Pérot-Interferometer aufgebaut und bei Raumtemperatur unter Vakuumbedingungen getestet. Da der Federbalken im Vakuum nur schwach gedämpft wird, bildet sich bei Raumtemperatur allein durch thermische Anregung eine Resonanzschwingung des Federbalkens aus (siehe Abbildung 2.6 b)). Diese Oszillation kann nun beeinflusst werden, je nachdem, welcher Arbeitspunkt auf dem Interferogramm in Abbildung 2.6 a) gewählt wird. An Punkt B wird die thermisch angeregte Resonanzschwingung des Federbalkens mit steigender Intensität des eingestrahkten Laserlichtes immer stärker unterdrückt. Diese Dämpfung entspricht einer Absenkung der Temperatur des Federbalkens, da die fundamentale thermische Bewegung verhindert wird. Auf diese Weise wird im konkreten Fall in [77] eine Verringerung der Temperatur von Raumtemperatur auf 18 K erzielt. Das geschilderte Verhalten wird dabei mit einem bolometrischen Effekt erklärt.

Ein ähnliches Verhalten wird auch bei dem in dieser Arbeit verwendeten Mikroskop beobachtet. Dabei hat der geschilderte Effekt eine große praktische Relevanz für die Einstellung des Interferometers. So reicht bei vielen Messsonden selbst bei 8 K die thermische Energie bereits aus, um eine starke Oszillation bei der Resonanzfrequenz anzuregen. Der Betrieb auf dieser

Flanke des Interferogramms mit dem Amplitudenregelkreis wird infolge der sehr hohen Güte dadurch häufig unmöglich.

Andere Messsonden zeigen eine höhere intrinsische Dämpfung, so dass es nicht zum thermisch angeregten Aufschwingen kommt. Bei diesen findet man auf den Flanken des Interferogramms unterschiedlich große Güten vor. Zur Verbesserung der Sensitivität kann hier die Flanke mit der höheren Güte gewählt werden, sofern die Schwingung noch sauber vom Amplitudenregelkreis geregelt werden kann. Bei sehr hohen Güten kann die Zeitkonstante der Amplitudenregelung stark anwachsen, so dass diese in der Praxis unbrauchbar sind [50]. Mit der Wahl der Flanke steht somit ein zusätzlicher Parameter zur Verfügung, der zur Optimierung der Messbedingungen gewinnbringend genutzt werden kann.

Die während dieser Arbeit hauptsächlich verwendeten, metallbeschichteten Messsonden zeigen typische Güten zwischen 20.000 und 50.000, aber auch Güten von weit über 100.000 werden beobachtet bei nominell gleich präparierter Messsonde. Die unterschiedlichen Messwerte für die Güte lassen sich auf leicht unterschiedliche Winkel zwischen dem Faserende und dem Federbalken zurückführen, wodurch die Qualität des Hohlraumresonators und damit auch die Güte beeinflusst wird. Durch die von außen angelegten magnetischen Flussdichten von bis zu 5 T wird die Güte dagegen nur wenig beeinträchtigt, so dass man auch hier vergleichbare Werte wie bei 0 T misst. Eine Ausnahme bilden hier die gadoliniumbedampften Messsonden, die eine erhöhte Dämpfung im Magnetfeld zeigen (siehe Kapitel 5.4).

### 2.3.3 Auflösungsgrenzen und Rauschquellen der Messapparatur

In der verwendeten Messapparatur gibt es eine Reihe von Faktoren, durch die die maximal erzielbare Auflösung begrenzt wird. Es existieren beispielsweise einige fundamentale Rauschquellen im System, die nicht vollständig eliminiert werden können. Da bei der vorgestellten Arbeit Messungen auf atomarer Größenskala von zentralem Interesse sind, wurde ein besonderes Augenmerk auf die Rauschoptimierung der Anlage gelegt. Im Folgenden werden nun einige wichtige Rauschquellen und geeignete Maßnahmen zu deren Unterdrückung kurz diskutiert.

#### Mechanische Vibrationen und akustische Störungen

Ein wesentlicher Punkt, um die Messung mit atomarer Auflösung zu ermöglichen, ist die Eliminierung äußerer, mechanischer Störungen. Es ist zu beachten, dass die Abstände zwischen der Spitze und der Probe bei solchen

Messungen sehr klein sind, da die zu messenden Kräfte kurzreichweitiger Natur sind. Aufgrund der starken Abstandsabhängigkeit der Wechselwirkungen zwischen Spitze und Probe sorgt hier ein kleines Abstandsrauschen, welches zum Beispiel durch äußere Vibrationen verursacht wird, bereits zu deutlichen Signaländerungen.

Die Entkopplung der Messapparatur von äußeren mechanischen Vibrationen wie beispielsweise Gebäudeschwingungen oder Trittschall erfolgt in mehreren Stufen. Zum einen verfügt der Laborraum über ein eigenes Betonfundament, so dass der Einfluß von Gebäudeschwingungen minimiert wird. Des Weiteren ist der Experimentiertisch auf Luftdämpfungsfüßen gelagert. Damit besitzt der gesamte Tisch eine Eigenfrequenz von wenigen Hertz und ist aufgrund der großen Masse von über einer Tonne nur schwer durch Vibrationen des Bodens anregbar. Das Luftdämpfungssystem wurde im Rahmen dieser Doktorarbeit überarbeitet und optimiert und weist insgesamt ein Tiefpassverhalten auf, so dass ein Großteil der höherfrequenten Schwingungen bereits stark abgeschwächt wird. Ein weiterer wichtiger Punkt betrifft den Aufbau des Mikroskopkörpers. Dieser wurde aus Macor, einem sehr harten, keramischen Werkstoff gefertigt und zeigt insgesamt ein Hochpassverhalten. Der beschriebene Aufbau sorgt also für eine breitbandige effektive Abdämpfung von Vibrationen, die über den Boden in das System eingetragen werden.

Zusätzlich treten häufig akustische Störungen auf, die ebenfalls in den experimentellen Aufbau einkoppeln können. Obgleich nicht ausnahmslos alle akustischen Störungen vermieden werden können, werden alle vermeidbaren Störquellen vor Beginn einer Messung eliminiert. Um zudem die akustische Anregung des Kryostataußenkörpers abzdämpfen, werden Gummidämpfungselemente verwendet, wie es in [75] beschrieben wurde. Eine weitere potentielle Quelle akustischer Störungen stellt die Rückführungsleitung für das aus dem Kryostaten verdampfte Helium dar. Über sie wird das gasförmige Helium von einer Vielzahl von Experimenten im Institutsgebäude aufgefangen und über ein Rohrleitungssystem zur zentralen Heliumverflüssigungsanlage zurückgeführt. Wird bei einem der angeschlossenen Kryostaten oder an der Verflüssigungsanlage Lärm in das System eingebracht, kann sich die akustische Störung über die Gassäule innerhalb des Rohres fortsetzen und so in die Messung einkoppeln. Zur Vermeidung dieser Störungen wurde ein Schalldämpfer aus Stahlwolle in die Leitung eingesetzt, der die Störungen effektiv dämpft.

Neben diesen äußeren Störungen bildet auch die Kühlung mit flüssigem Stickstoff im Badkryostaten eine wichtige Störquelle. Dabei siedet der flüssige Stickstoff unter starker Blasenbildung, wodurch ein deutliches Rauschen

entsteht. Dieses wird vermieden durch Evakuierung des Stickstofftanks mittels einer Vakuumpumpe, wodurch der flüssige Stickstoff verfestigt wird. Die dazu verwendete Pumpe befindet sich in einem anderen Raum und evakuiert den Kryostaten über einen langen Schlauch, so dass ihr Betrieb keine messbaren Störungen verursacht.

### Elektrische Störungen

In dieser Kategorie sind zwei wichtige Beiträge zu nennen: zum einen Störungen durch Einstreuungen von außen und zum anderen das Rauschen des Hochspannungsverstärkers, mit dem die piezoelektrischen Stellelemente im Mikroskop betrieben werden.

Bei unzureichender Abschirmung von Kabeln und Geräten, die zur Messapparatur dazugehören, können elektromagnetische Wellen, wie sie von Sendemasten, Mobiltelefonen und vielen anderen elektrischen Geräten emittiert werden, für Einstreuungen sorgen. Durch eine konsequente Abschirmung kann ein Großteil dieser elektrischen Störungen unterdrückt werden. So wurden im Rahmen der vorliegenden Arbeit beispielsweise einige wichtige elektrische Leitungen im Mikroskop durch geschirmte Kabel ersetzt, um ein geringeres Rauschen zu erhalten. Ein weiterer wichtiger Punkt betrifft die Eliminierung so genannter Erdschleifen, also der Erdung einer Leitung an verschiedenen Punkten. Dadurch entstehen vor allem Einstreuungen mit der Netzfrequenz (50 Hz) und ihren Vielfachen. Eine solche Erdschleife bestand beispielsweise bei der werksseitigen Konfiguration des Datenerfassungssystems zwischen dem Messcomputer und dem Hochspannungsverstärker.

Eine besonders problematische elektrische Störung ist das Rauschen des Hochspannungsverstärkers. Tritt hier ein Spannungsrauschen auf, so wird dieses durch das piezoelektrische Stellglied in eine reale Bewegung der Probe umgewandelt. Der Abstand zwischen Messsonde und Probe wird somit in Abhängigkeit vom Spannungsrauschen zeitlich variiert. Das Rauschen geht so direkt in den eigentlichen Messprozess ein und führt wiederum zu einem Rauschen der Resonanzfrequenz des Federbalkens. Daher ist es besonders wichtig, einen rauscharmen Hochspannungsverstärker zu verwenden und für eine optimale Abschirmung der Kabel zwischen Verstärker und Mikroskop zu sorgen. Das Spannungsrauschen am Piezoröhrchen liegt größenordnungsmäßig bei etwa 1 mV, was bei einer Piezosensitivität in  $z$ -Richtung von etwa 1 nm/V einem Abstandsrauschen von ca. 1 pm entspricht. Zum Vergleich: Durch chemische Wechselwirkungen entstehen Korngrenzen, die im Bereich von ca. 25 pm (vgl. Kapitel 4.4) liegen. Für die Signalstärken, die auf die deutlich schwächeren magnetischen Austauschwechselwirkungen zurückgehen, sind entsprechend kleinere Werte zu erwarten. Dieses Abstandsrau-

schen hat auch negative Auswirkungen auf die Aufnahme von Spektroskopiekurven. So kann man aus der Steigung von  $\Delta f(z)$ -Kurven, die im Regime der atomaren Auflösung gemessen wurden, ein Frequenzrauschen von einigen zehn mHz abschätzen.

### Thermisches Rauschen und Detektorrauschen

Zusätzlich zu den bereits genannten Rauschquellen gibt es noch zwei weitere Beiträge, die im Folgenden behandelt werden sollen. In vielen Fällen spielt das thermische Rauschen eine wichtige Rolle. In einem realen System erfährt ein Federbalken durch thermische Anregung statistische Auslenkungen. Dadurch wird auch die Frequenzmessung mit einem Rauschen versehen, welches durch die folgende Gleichung beschrieben wird [39]:

$$\delta f_{\text{therm}} = \sqrt{\frac{k_{\text{B}} T B f_0}{\pi c_z A^2 Q_0}} \quad (2.1)$$

Dabei sind  $f_0$ ,  $c_z$ ,  $A$  und  $Q_0$  die Resonanzfrequenz, Federkonstante, Oszillationsamplitude und Güte des frei schwingenden Federbalkens.  $T$  ist die Temperatur bei der gemessen wird,  $B$  ist die Bandbreite des Detektionssystems und  $k_{\text{B}}$  die Boltzmannkonstante. Für eine gegebene Messsonde kann das Rauschen also durch Verwendung einer niedrigen Messtemperatur, großen Amplitude oder kleinen Messbandbreite verringert werden.

Bei der Reduzierung der Bandbreite ist zu beachten, dass dadurch hochfrequente Bildanteile abgeschnitten werden, wodurch das Nutzsignal beeinträchtigt werden kann. Dieser Effekt kann kompensiert werden durch die Verringerung der Rastergeschwindigkeit. In der Praxis ist also ein Kompromiss zu suchen zwischen der einwandfreien Abbildung bei einer praktikablen Rastergeschwindigkeit und einer geringen Bandbreite.

Für typische Werte<sup>†</sup> ergibt sich bei Raumtemperatur ein thermisches Rauschen des Federbalkens von 37 mHz, für die Basistemperatur des Mikroskops ( $T=8$  K) entsprechend 6 mHz.

Neben dem thermischen Rauschen gibt es auch einen Rauschbeitrag des Detektionssystems:

$$\delta f_{\text{Detekt}} = \frac{n_{\text{Detekt}}}{\pi A} B^{3/2} \quad (2.2)$$

Hier ist  $n_{\text{Detekt}}$  die Rauschdichte des Detektionssystems.

---

<sup>†</sup> $B=300$  Hz,  $f_0=160$  kHz,  $c_z=34$  N/m,  $A=\pm 6,3$  nm,  $Q_0=33.000$



Da die beiden Rauschquellen statistisch voneinander unabhängig sind, gilt:

$$\delta f_{\text{th,Det}} = \sqrt{\delta f_{\text{therm}}^2 + \delta f_{\text{Detekt}}^2} \quad (2.3)$$

Um  $\delta f_{\text{th,Det}}$  zu bestimmen, kann das Rauschen eines frei schwingenden Federbalkens gemessen werden, welcher sich in großer Entfernung der Probe befindet. Das gemessene Frequenzrauschen bei tiefen Temperaturen liegt bei etwa 17 mHz (Parameter siehe oben). Es übersteigt also das rein thermische Rauschen deutlich, so dass dieses bei tiefen Temperaturen nicht mehr der auflösungsbegrenzende Faktor ist. Daher wurden sämtliche Komponenten, die zum Detektorrauschen beitragen, sorgfältig optimiert. So wurde die Laserdiode, die für den Betrieb des faseroptischen Interferometers verwendet wird, mit besonderem Augenmerk auf geringes Rauschen ausgewählt. Des Weiteren wird während der Messungen der Abstand zwischen der Glasfaser und dem Federbalken üblicherweise so klein wie möglich gewählt, um den Einfluß des Phasenrauschens der Laserdiode zu minimieren [72]. Zusätzlich wurde durch die Beschichtung des Glasfaserendes mit einer  $\text{TiO}_2$ -Schicht (siehe dazu auch Abbildung 2.5) [75] die Sensitivität des Interferometers erhöht [76]. Ein weiterer wichtiger Faktor ist das Schrotrauschen der Fotodiode, die die Intensitätsänderungen des Laserlichtes aus dem Interferometer in Spannungsänderungen umsetzt. Analog zum thermischen Rauschen, das die Auflösung der Messsonde limitiert, begrenzt das Schrotrauschen die Auflösung eines optischen Detektors.

Die genannten Rauschquellen sind alle für das Erreichen von atomarer Auflösung von Bedeutung, so dass die Messapparatur entsprechend optimiert wurde. Die letztendliche Auflösungsbegrenzung im Bereich sehr kleiner Abstände entsteht offenbar durch Variationen im Spitze-Probe-Abstand, die beim verwendeten System zu einem Großteil auf ein elektrisches Rauschen des Hochspannungsverstärkers zurückzuführen sind.



# Kapitel 3

## Präparation und Charakterisierung der Messspitzen

In der Rasterkraftmikroskopie und insbesondere in der magnetischen Austauschkraftmikroskopie ist die verwendete Messsonde von großer Wichtigkeit für die Abbildungseigenschaften des Mikroskops. Es steht eine Reihe von Möglichkeiten zur Präparation der Messspitzen zur Verfügung, um deren Eigenschaften für die jeweils angestrebten Messungen zu optimieren. Als Test für die Spitzeneigenschaften gibt es einige Charakterisierungsmethoden, die Rückschlüsse auf die Spitzeneigenschaften erlauben. Im Folgenden werden diese Präparations- und Charakterisierungsmethoden diskutiert.

### 3.1 Methoden zur Präparation der Messspitzen

Für die vorliegende Arbeit wurden ausschließlich Si-Messsonden vom Typ PPP-NCL bzw. SSS-NCL der Firma Nanosensors verwendet. Eine tabellarische Übersicht über die Abmessungen dieser Messsonden sowie ihrer typischen Resonanzfrequenzen und Federkonstanten wird in Kapitel 1.2.2 gegeben. Ein wesentlicher Unterschied zwischen den beiden Typen ist der Spitzenradius. So handelt es sich bei Messsonden des Typs SSS-NCL um so genannte superscharfe Spitzen, die einen Spitzenradius von  $< 5$  nm aufweisen, während bei Messsonden vom Typ PPP-NCL der Spitzenradius mit  $< 10$  nm spezifiziert wird. Die Messsonden bestehen aus Silizium, welches zwecks einer höheren elektrischen Leitfähigkeit dotiert wurde. Da die Messsonden nach der Herstellung unter Umgebungsbedingungen transportiert und ge-

lagert werden, entsteht an der Oberfläche des Federbalkens eine isolierende  $\text{SiO}_2$ -Schicht. Leitfähigkeitstests haben gezeigt, dass auch das Siliziummaterial bei den verwendeten tiefen Temperaturen trotz der Dotierung eine sehr geringe elektrische Leitfähigkeit aufweist und praktisch isolierend ist. Insbesondere bei der Abbildung von Isolatoren kann eine schlecht leitende Messsonde zu Problemen führen, da sich an der Spitze dann oft lokalisierte Ladungen befinden, die für unerwünschte langreichweitige elektrostatische Hintergrundkräfte sorgen (siehe dazu auch Kapitel 1.2.3).

Vor der Verwendung der Messsonden für Messungen mit dem Rasterkraftmikroskop gibt es verschiedene Möglichkeiten der Präparation, um die Eigenschaften der Spitzen zu optimieren. Im Folgenden werden unterschiedliche Ansätze zur Präparation der Messspitzen vorgestellt. Zur einfachen Unterscheidung werden die resultierenden Messspitzen in drei Typen eingeteilt.

#### **Typ A: Messspitzen mit abgetragener Siliziumoxidschicht**

Eine übliche Methode, um Oberflächen im UHV zu reinigen, ist das Argonionenätzen. Dieses Verfahren kann verwendet werden, um die native  $\text{SiO}_2$ -Schicht von der Oberfläche der Messsonde abzutragen. Allerdings werden dadurch die Spitzen im vorderen Bereich stumpfer, d.h. der Spitzenradius vergrößert sich. Bei vollständiger Entfernung der  $\text{SiO}_2$ -Schicht erhält man so eine saubere Siliziummessspitze, die über eine erhöhte Reaktivität im Vergleich zum  $\text{SiO}_2$  verfügt, wodurch sich die Abbildungseigenschaften der Spitze auf atomarer Skala bei manchen Probenoberflächen deutlich verbessern. Werden solche Spitzen bei Raumtemperatur verwendet, so werden die unerwünschten elektrostatischen Wechselwirkungen durch den Abtrag der isolierenden  $\text{SiO}_2$ -Deckschicht reduziert. Bei den Messtemperaturen in dieser Arbeit ( $T_{\text{Mik}}=8\text{ K}$ ) ist dieser Effekt eher klein, da die Eigenleitfähigkeit des Siliziummaterials zu gering ist.

Der Abtrag der  $\text{SiO}_2$ -Schicht von einer so genannten superscharfen Spitze (Typ SSS-NCL) mittels Argonionenätzen ist sehr schwierig. Aufnahmen mit einem Transmissionselektronenmikroskop zeigen, dass der vorderste Spitzenbereich dieses Sondentyps im wesentlichen aus  $\text{SiO}_2$  besteht. Bedingt durch den kleinen Öffnungswinkel der Spitzenpyramide kann sich dieser Bereich laut Herstellerinformationen auf eine Länge von bis zu 100 nm erstrecken.

Eine effektivere Methode zur Entfernung der Oxidschicht bei solchen Messspitzen ist das nasschemische Ätzen mit Flußsäure (HF). Die freigelegte Si-Oberfläche wird durch Wasserstoff passiviert, so dass bis zum Einbringen der Messsonde in die UHV-Anlage keine starke Oxidation stattfindet.

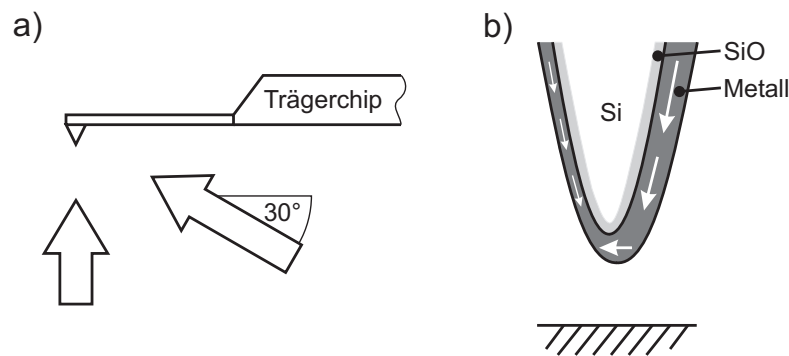
Allerdings ist der Umgang mit Flusssäure sehr gefährlich und mit einem entsprechenden Aufwand verbunden, so dass dieser Ansatz im Rahmen dieser Arbeit nicht weiter verfolgt wurde.

### **Typ B: Entfernung der Oxidschicht und anschließende Metallbeschichtung**

Eine Erweiterung der zuvor besprochenen Methode beinhaltet die Beschichtung einer von der Oxidschicht befreiten Siliziumspitze mit einem Metall. Die Metallschicht wird dazu üblicherweise mit einem Verdampfer, der innerhalb der UHV-Kammer zur Verfügung steht, auf die Spitze aufgebracht. Damit kann eine saubere, metallische Oberfläche mit geringer Adsorbatbelegung hergestellt werden. Bei einer ausreichenden Schichtdicke, d.h. wenn eine geschlossene Schicht die gesamte Messsonde bedeckt, sollten Ladungsprobleme eliminiert werden können, da die metallische Schicht entsprechende Oberflächenladungen auch bei tiefen Temperaturen zuverlässig abfließen lassen kann. Für manche Anwendungsgebiete kann die verwendete Methode allerdings nachteilig sein, da es zu Reaktionen zwischen dem Silizium und manchen Metallen kommen kann. Werden beispielsweise Eisen- oder Nickelfilme mit Schichtdicken von wenigen Nanometern auf eine Siliziumoberfläche aufgebracht, kann es bereits bei Raumtemperatur zur Silizidbildung zwischen dem Film und dem Substrat kommen [78–80]. Dabei tritt eine Durchmischung des aufgetragenen Filmes mit dem Silizium auf, wodurch sowohl strukturelle als auch magnetische Eigenschaften modifiziert werden. Der Metallfilm befindet sich dadurch also in einem magnetisch schlecht definierten Zustand. Es soll nicht unerwähnt bleiben, dass die Beschichtung einer Messsonde mit ferromagnetischen Material in jedem Fall zu einer Vergrößerung des Spitzenradius führt, die im allgemeinen von Nachteil ist. Dieser prinzipielle Nachteil ist für magnetisch sensitive Messungen allerdings unvermeidlich und muss daher in Kauf genommen werden.

### **Typ C: Metallbeschichtung auf unbehandelte Messsonden**

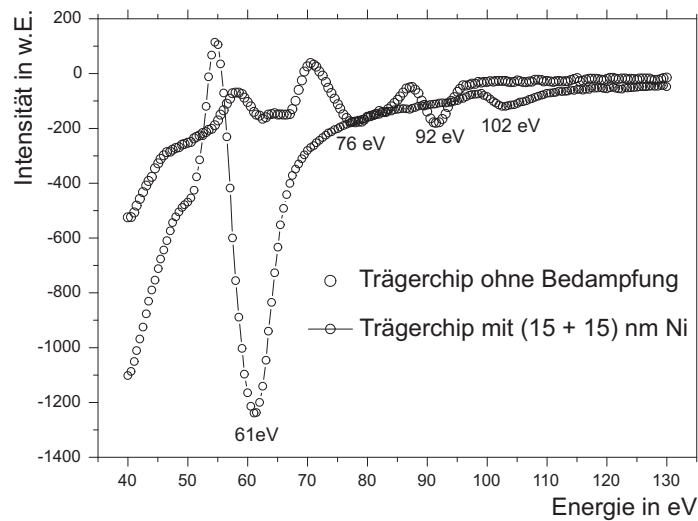
Eine Möglichkeit, die Silizidbildung zu umgehen, bei gleichzeitig guter elektrischer Leitfähigkeit, ist das Aufbringen ferromagnetischen Materials direkt auf eine zuvor unbehandelte Messsonde (siehe Abbildung 3.1). Dabei wirkt die Oxidschicht als Puffer und verhindert die Silizidbildung. Außerdem entfällt die zusätzliche Vergrößerung des Spitzenradius durch das Argonionenätzen.



**Abbildung 3.1:** Schematische Darstellung der Aufdampfwinkel bei der Präparation der Messspitzen vom Typ C. a) Auf die Messsonde wird aus zwei Winkeln ferromagnetisches Material mit Schichtdicken von  $> 10$  nm aufgedampft (siehe Text). Dadurch wird eine hohe Leitfähigkeit der gesamten Messsonde erzielt. Der Bereich, in dem aufgedampft wird, ist so groß, dass der Trägerchip im gleichen Maße wie die Messsonde bedampft wird. b) Ausschnittsvergrößerung des mit einem geschlossenen Film bedeckten vorderen Spitzeneendes. Die  $\text{SiO}_2$ -Schicht wurde vor dem Aufdampfen nicht abgetragen und liegt zwischen der Siliziumspitze und der Metallschicht. Infolge der Formanisotropie ist eine Magnetisierung zu erwarten, die dem Verlauf der Spitzenform folgt (angedeutet durch die Pfeile).

Das ferromagnetische Material wird, wie in Abbildung 3.1 gezeigt, aus zwei Winkeln aufgedampft. Durch Aufdampfen senkrecht zum Federbalken wird sichergestellt, dass sich Material direkt vorne an der Spitze befindet. Durch die zusätzliche Bedampfung aus einem  $30^\circ$ -Winkel entsteht ein durchgehender leitfähiger Film auf einer der Pyramidenseiten. Zur Überprüfung der aufgedampften Schichten wurde mittels Augerelektronenspektroskopie die Filmoberfläche auf dem Trägerchip der Messsonde untersucht (siehe dazu auch Abbildung 3.2). Der Chip besteht aus demselben Material wie die eigentliche Messsonde und wird unter äquivalenten Bedingungen bedampft wie diese. Die Schichtdicke des aufgebracht Materials wird so gewählt, dass kein Ausschlag im Augerelektronenspektrum mehr zu sehen ist, der auf Silizium zurückzuführen ist. Damit kann sowohl eine Silizidbildung als auch eine unvollständige Bedeckung infolge eines Inselwachstums, wie es zum Beispiel für dünne Nickelschichten auf  $\text{Si}(001)$  beobachtet wurde [81], ausgeschlossen werden. In Abbildung 3.2 werden Augerelektronenspektren gezeigt, die vor und nach dem Bedampfen der Oberfläche mit Nickel aufgenommen wurden. Die Aufdampfparameter wurden so eingestellt, dass sie beim senkrechten Aufdampfen auf eine Oberfläche eine Schichtdicke von  $(15 + 15)$  nm Nickel ergeben würden<sup>†</sup>. Es ist zu erwarten, dass eine vollständige Bedeckung des ebenen Si-Chips bereits bei einer geringeren Schichtdicke erreicht werden

<sup>†</sup>Die wahre aufgetragene Schichtdicke zeigt eine sinusartige Abhängigkeit vom Aufdampfwinkel und ist daher nicht einheitlich auf der gesamten Messsonde.



**Abbildung 3.2:** Augerelektronenspektroskopie auf dem Trägerchip einer Messsonde vor und nach dem Bedampfen mit Nickel. Die Ausschläge der Kurve bei 92 eV und 76 eV können auf das reine Silizium des Chips, beziehungsweise auf das im  $\text{SiO}_2$  gebundene Silizium zurückgeführt werden. Nach dem Bedampfen mit (15 + 15) nm Nickel wird das Spektrum bestimmt durch zwei Ausschläge bei 61 eV und 102 eV, die charakteristisch für Nickel sind. Das Spektrum zeigt keine Ausschläge mehr, die auf Si zurückgeführt werden können. Es ist also zu erwarten, dass durch das aufgebraute Nickel zumindestens auf dem Trägerchip ein vollständiger Film entstanden ist.

würde, allerdings sind die geometrischen Verhältnisse am vorderen Spitzenende deutlich ungünstiger. Auch aus diesem Grund wurden zwei Aufdampfwinkel eingestellt. Es zeigt sich, dass bei den verwendeten Aufdampfparametern im Augerelektronenspektrum kein Signal mehr messbar ist, welches dem Silizium zugeordnet werden kann. Die Verhältnisse am vordersten Spitzenende können aufgrund der anderen Geometrie davon abweichen, jedoch geben die gezeigten Messungen einen Anhaltspunkt über die Schichtdicken, die für eine vollständige Bedeckung erforderlich sind. Zudem kann mit der Augerelektronenspektroskopie die Sauberkeit der Filme im Hinblick auf Adsorbatbelegung überprüft werden.

Da die Spitzen des Typs C im Gegensatz zu der bisher besprochenen Präparation vor dem Aufdampfen des ferromagnetischen Materials unbehandelt bleiben, wird die Oberfläche der Spitze und das Spitzenende nicht durch das Argonionenätzen modifiziert. Die dicke metallische Beschichtung erlaubt das Abfließen der Ladungen vom vordersten Spitzenende und verbessert die elektrischen Eigenschaften der Spitze deutlich. Bei einer ausreichend dicken Schicht ist es dabei unerheblich, ob die Siliziumspitze oder die darüberliegende Oxidschicht über eine gute Leitfähigkeit verfügt oder nicht.

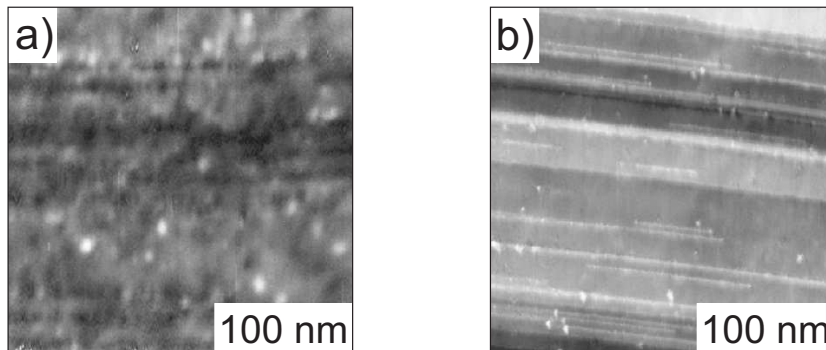
Die erwartete magnetische Ausrichtung des aufgedampften Materials ergibt sich aus der Form des dünnen Filmes. Wird ein ferromagnetisches Metall wie Nickel auf die Spitze aufgebracht, so ist im Spitzenbereich eine Ausrichtung der Magnetisierung zu erwarten, wie sie in Abbildung 3.1 b) abgebildet ist. Da es sich bei der Beschichtung der Spitze um einen dünnen ferromagnetischen Film handelt, folgt die Magnetisierung näherungsweise der Spitzenform, d.h. sie ist fast senkrecht zur Probenoberfläche an den Pyramidenflanken und parallel zur Oberfläche am vorderen Spitzenende.

Bei den in dieser Arbeit vorgestellten Messergebnissen werden die verwendeten Spitzentypen jeweils in der Bildunterschrift angegeben. Dabei wird zum einen der Messsondentyp, also SSS-NCL oder PPP-NCL, genannt und zum anderen die Art und Dicke der Beschichtung. Während beispielsweise „Ni/Si“ für eine Messspitze vom Typ B steht, die mittels Argonionenätzen von der SiO-Schicht befreit und anschließend mit Nickel bedampft wurde, bezeichnet „(15+15) nm Fe/SiO“ eine Spitze vom Typ C, die mit (15+15) nm Eisen aus zwei Richtungen bedampft wurde.

### 3.1.1 Spitzenkollisionen auf der NiO-Oberfläche

Spitzen, die über eine eingeschränkte elektrische Leitfähigkeit verfügen, zeigen häufig ein problematisches Abbildungsverhalten, vor allem bei der Messung auf Isolatoren wie NiO. Davon sind insbesondere Spitzen vom Typ A betroffen, wenn sie für Messungen bei tiefen Temperaturen verwendet werden. In Abbildung 3.3 a) ist ein typisches Bild zu sehen, welches mit einer solchen Spitze aufgenommen wurde. Es zeigt die (001)-Oberfläche von NiO, wobei diese nur sehr unscharf abgebildet wird und auch keine klare Terrassenstruktur zu sehen ist. Die schlechte Abbildungsqualität kann durch lokalisierte Ladungen erklärt werden, die sich an der Spitze befinden und während der Messung nicht abfließen können. Ladungen an der Oberfläche des Nickeloxids, wie sie praktisch immer an den Spaltflächen ionischer Kristalle auftreten, werden stark überhöht abgebildet und führen durch die entstehenden langreichweitigen Kraftbeiträge zu wolkigen, unscharfen Strukturen in den Bildern. Auch durch das Anlegen einer Biasspannung können diese Beiträge nicht völlig eliminiert werden (vgl. Kapitel 1.2.3).

Häufig kann die Situation durch ein absichtliches Hineinfahren der Probe in die Spitze deutlich verbessert werden. In Abbildung 3.3 b) wird ein Bild gezeigt, welches mit der identischen Messsonde wie bei Bild a) auf einem anderen Gebiet derselben Probe aufgenommen wurde. Im Gegensatz zu Bild a) ist in diesem Bild die Terrassenstruktur mit monoatomaren Stufen und einzelnen Adsorbaten klar zu erkennen. Durch das Hineinfahren der Probe

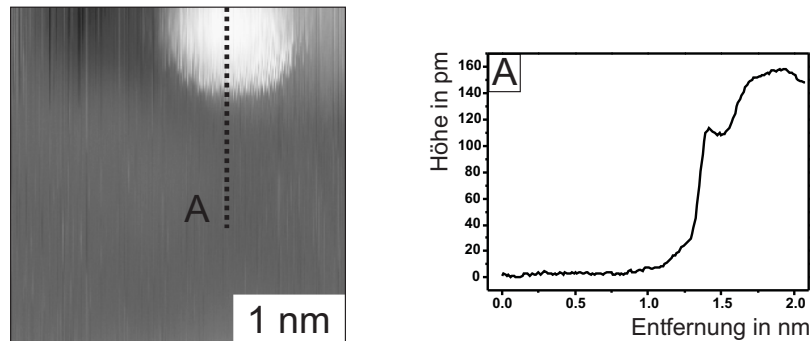


**Abbildung 3.3:** Abbildung der NiO-Oberfläche a) vor und b) nach einer Spitzenkollision. Beide Bilder wurden mit derselben Messsonde, aber auf unterschiedlichen Bereichen einer Probe aufgenommen. Während die Abbildung in Bild a) sehr unscharf ist und keine klare Terrassenstruktur zu erkennen ist, hat sich die Situation durch die Kollision der Spitze mit der Probe deutlich verbessert. In b) sind monoatomare Stufen und einzelne Adsorbate klar erkennbar.

in die Spitze entsteht ein Kontakt und es kommt zum Ausgleich der Ladungen, wodurch die störenden elektrostatischen Wechselwirkungen minimiert werden.

Werden Spitzen vom Typ C verwendet, sind Spitzenkollisionen häufig unnötig, da durch die starke Metallbedampfung eine ausreichend gute Leitfähigkeit der Spitzen erzielt wird. In vielen Fällen kommt es allerdings unabsichtlich zu Spitzenkollisionen. Manchmal treten dabei nur leichte Modifikationen der Spitze auf, so dass sich die Abbildungseigenschaften nicht wesentlich verändern. Charakteristisch für solche Spitzenkollisionen ist der Verlust von Spitzenmaterial, welches sich anschließend auf der Oberfläche wiederfindet. Ein Grund für dieses Verhalten ist in der Geometrie der Anordnung zu suchen. So könnte es beim Kontakt einer beschichteten Spitze mit der Probenoberfläche zur Ausbildung eines Meniskus kommen, so dass durch Adhäsion Teile des Metallfilmes auf die Oberfläche übertragen werden. Ein solches Verhalten wurde auch in Simulationsrechnungen beschrieben [82]. In manchen Fällen scheint es dadurch zu einem Nachschärfen der Spitzen zu kommen, was sich ebenfalls durch dieses Modell erklären lässt. Ein Beispiel für den Materialverlust bei einer Spitzenkollision wird in Abbildung 3.4 gezeigt. Nach einer Spitzenkollision ist auf einem zuvor flachen Gebiet eine etwa 160 pm hohe Erhebung zu sehen. Die Dimension der Erhebung spricht für den Verlust einiger weniger Atome des vordersten Spitzenendes. Es ist zu beachten, dass es sich in diesem Fall um eine Spitzenkollision geringer Intensität handelt. Vielfach treten so starke Änderungen auf, dass eine saubere Abbildung nicht ohne weitere absichtliche Spitzenkollisionen wieder herge-





**Abbildung 3.4:** Abbildung der NiO-Oberfläche nach einer Spitzenkollision. Am oberen Bildrand kam es vor der Aufnahme des gezeigten Bildes zu einer Spitzenkollision, bei der offenbar Material verloren wurde. Vor der Kollision war der hier abgebildete Bereich atomar flach, danach zeigt sich eine Erhebung mit einer Höhe von ca. 160 pm und einem Durchmesser von ca. 2 nm. Messparameter:  $f_0=160.533$  Hz,  $\Delta f=-12$  Hz,  $\gamma=-6,0\cdot 10^{-16}\text{N}\sqrt{\text{m}}$ ,  $A=\pm 3,8$  nm,  $c_z=34$  N/m,  $Q_0=4.700$ ,  $B=4$  T, Messsonde: SSS-NCL, Gd/SiO.

stellt werden kann. In der Mehrzahl aller Fälle gelang atomare Auflösung auf NiO(001) erst nach einer Kollision der Spitze mit der Oberfläche. Außer zur Eliminierung lokalisierter Ladungen auf der Spitze könnte es dadurch auch zu Umstrukturierungen am Spitzenende kommen, die zu einer schärferen Spitze führen, welche für atomare Auflösung geeigneter ist.

Die beschriebene Präparation der Spitze durch gezielte Spitzenkollisionen auf der NiO-Oberfläche hat für die beabsichtigte Messung der magnetischen Austauschwechselwirkung einen entscheidenden Nachteil, da nach einer solchen Kollision nicht mehr sichergestellt werden kann, dass das vorderste Spitzenatom magnetisch ist. Zwar wurde bereits gezeigt, dass dabei typischerweise Material von der Spitze verloren wird, ein Aufsammeln eines Sauerstoffatoms aus der Oberfläche kann dennoch nicht völlig ausgeschlossen werden. Da die magnetische Austauschkraftmikroskopie im wesentlichen auf der Wechselwirkung des vordersten Spitzenatoms mit einem Probenatom basiert, ist zu erwarten, dass dadurch der magnetische Kontrast verschwindet.

### 3.1.2 Spitzenkollisionen auf der Ni(111)-Oberfläche

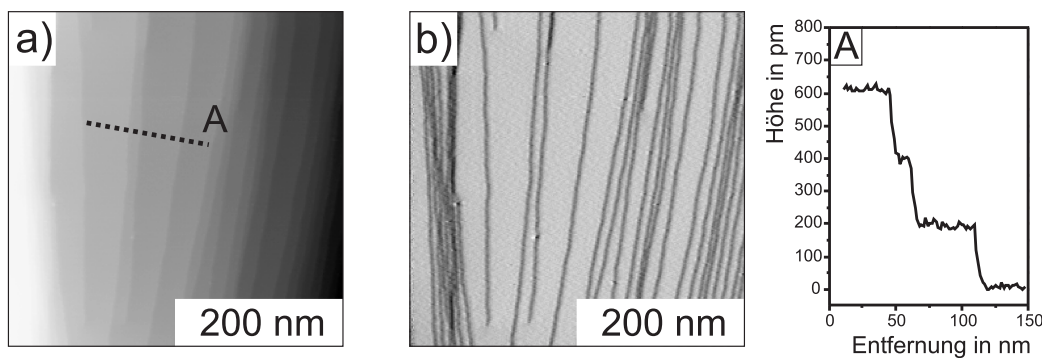
Ein Ansatz, um Kollisionen zwischen Spitze und Probe durchzuführen ohne Gefahr zu laufen, nichtmagnetische Fremdatome aufzusammeln, besteht darin, die Kollisionen auf einer reinen Nickeloberfläche durchzuführen. Im Anschluss an die Präparation einer für atomare Auflösung geeigneten Spitze wird die Probe dann gegen eine NiO-Probe ausgetauscht. Idealerweise sind



mit einer derart präparierten Spitze im weiteren Verlauf des Experiments Kollisionen mit der NiO-Oberfläche zu vermeiden. Nachdem im folgenden Abschnitt zunächst die Präparation einer sauberen Ni(111)-Oberfläche erläutert wird, wird im Anschluss die Präparation der Messsonden auf der Nickeloberfläche diskutiert.

### Präparation der Ni(111)-Oberfläche

Für die Messungen auf Nickel wurde ein Nickel-Einkristall verwendet, der mittels Wolframdraht auf einem Probenhalter befestigt wurde. Die verwendete Oberfläche zeigt eine (111)-Orientierung. Zur Präparation wurde die Oberfläche durch 30-minütiges Argon-Ionenätzen von Adsorbaten gereinigt und anschließend für 40 min bei ca. 900 K geheizt, um das Ausheilen der Oberfläche zu ermöglichen. Durch wiederholte Präparationszyklen kann so zuverlässig eine saubere Oberfläche hergestellt werden. Ein typisches Beispiel für eine so präparierte Oberfläche wird in Bild 3.5 gezeigt. Hier sind praktisch adsorbatfreie Terrassen zu sehen, die von monoatomaren Stufen getrennt werden und deren Breite im Bereich einiger zehn Nanometer liegt. Zudem sind besonders in Bild b) einige Schraubenversetzungen an der Oberfläche zu erkennen. Ist die Oberfläche des Kristalls nach einer entsprechend langen Messzeit mit einer Vielzahl von Adsorbaten belegt, so erhält man durch die oben beschriebene Präparationsmethode wieder eine saubere Oberfläche.

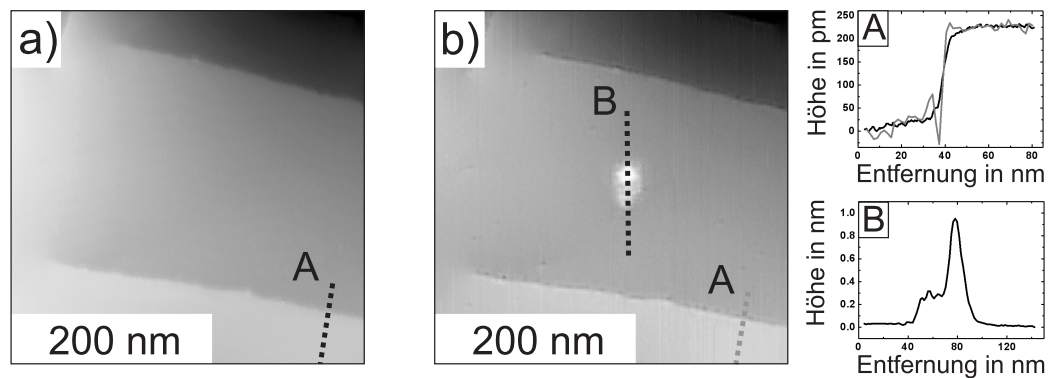


**Abbildung 3.5:** Typisches RKM-Bild nach der Präparation der Ni(111)-Oberfläche. a) zeigt ein Topographiebild, in dem zahlreiche, fast adsorbatfreie, monoatomare Terrassen zu sehen sind, deren Breiten im Bereich einiger 10 nm liegen. Vereinzelt treten auch Stufenbündel auf, wie sie am linken Bildrand zu erkennen sind. Zur Verdeutlichung der Oberflächenstruktur wird in b) ein abgeleitetes Bild von a) gezeigt. Hier sind auch deutlich einige Schraubenversetzungen zu erkennen. Messparameter:  $f_0=193.731$  Hz,  $\Delta f=-3$  Hz,  $\gamma=-2,6 \cdot 10^{-16} \text{ N}\sqrt{\text{m}}$ ,  $A=\pm 5$  nm,  $c_z=50$  N/m,  $Q_0=107.000$ , Messsonde: PPP-NCL, (15+17) nm Ni/SiO.

### Präparation der Spitze auf Ni(111)

Ein Beispiel für eine Präparation der Spitze mittels einer Spitze-Probe-Kollision auf der Ni(111)-Oberfläche wird in Abbildung 3.6 gezeigt. Hier wurde jeweils ein identischer Bereich der Probe vor und nach einer Spitzenkollision abgebildet. Deutlich ist etwa in der Bildmitte von Bild 3.6 b) eine Erhebung auf der Oberfläche zu erkennen. Die Höhe dieses Objektes kann anhand der Schnittlinie B mit ca. 1 nm abgeschätzt werden. Offenbar wurde hier also eine größere Menge Material von der Spitze verloren als in Abbildung 3.4. Durch eine solche Präparation können lokalisierte Ladungen, die im Spitzenbereich vorliegen, abfließen, wodurch die elektrostatischen Wechselwirkungen bei einer anschließenden Messung auf Isolatoroberflächen minimiert werden.

In der Praxis hat sich gezeigt, dass das geschilderte Verfahren relativ aufwendig ist. Insbesondere erfordert es einen Austausch der Proben im Mikroskop. Zudem wird im allgemeinen die Langzeitstabilität der Abbildungseigenschaften der Spitzen durch wiederholte Spitzenkollisionen herabgesetzt. Häufig erhält man dadurch instabile Spitzen, die nicht über einen längeren



**Abbildung 3.6:** Abbildung der Ni(111)-Oberfläche a) vor und b) nach einer Spitzenkollision mit der Probe. Es sind drei monoatomare Terrassen zu sehen, die von zwei Stufenkanten unterbrochen werden, die beide links in Schraubenversetzungen münden. In a) und in b) wurde jeweils eine Schnittlinie über eine monoatomare Stufe gelegt (A), womit die Flankensteilheit vor und nach der Spitzenkollision verglichen werden kann. Die Schnittlinie des Bildes b), die grau dargestellt ist, zeigt dabei eine höhere Flankensteilheit, was auf eine schärfere Spitze schließen lässt. In Bild b) wird mittig auf der Terrasse eine Erhebung beobachtet, die ca. 1 nm hoch ist (siehe Schnitt B). An dieser Stelle fand die Kollision der Spitze mit der Probe statt, wobei offenbar Spitzenmaterial verloren wurde. Messparameter:  $f_0=158.604$  Hz,  $A=\pm 2,5$  nm,  $c_z=34$  N/m,  $Q_0=46.000$ , a)  $\Delta f=-15$  Hz,  $\gamma=-3,9 \cdot 10^{-16}$  N $\sqrt{\text{m}}$ , b)  $\Delta f=-15$  Hz,  $\gamma=-3,9 \cdot 10^{-16}$  N $\sqrt{\text{m}}$ . Messsonde: SSS-NCL, (3+1) nm Ni/Si.

Zeitraum brauchbar sind. In vielen Fällen verliert die Spitze nach einigen Kollisionen mit der Probe komplett ihre Eignung für die Oberflächenabbildung, so dass die Messsonde ausgetauscht werden muss.

## 3.2 Charakterisierung der Spitze im Rasterkraftmikroskop

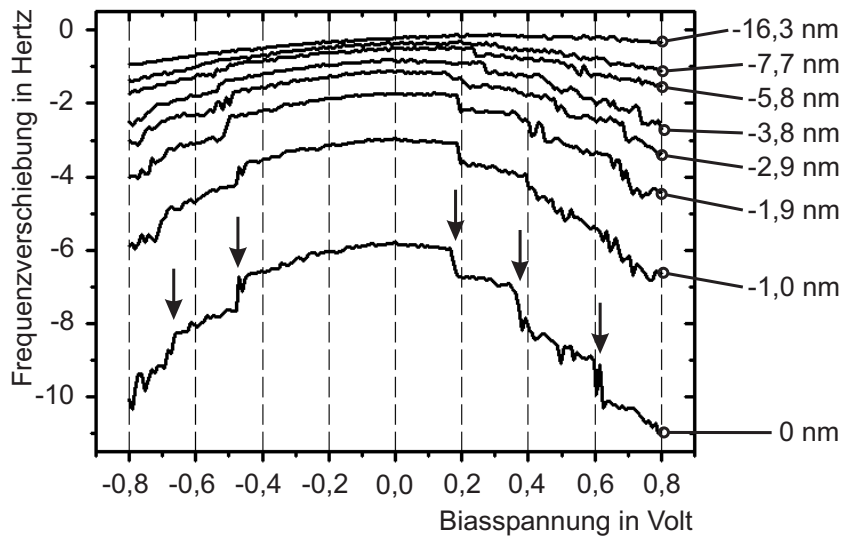
Im Folgenden werden einige Methoden beschrieben, die verwendet werden können, um verschiedene Eigenschaften der Messsonden zu charakterisieren. Eine Charakterisierung der Spitzeneigenschaften ist erforderlich, um die Präparationsmethoden, wie sie in den vorangegangenen Unterkapiteln beschrieben wurden, zu bewerten und zu optimieren. Insbesondere mit Hinblick auf die angestrebte Messung der magnetischen Austauschkräfte ist es wichtig, eine geeignete Präparationsmethode zu finden, die reproduzierbar zu brauchbaren Messspitzen führt.

### 3.2.1 Strukturelle Charakterisierung der Spitze

Ein wichtiger Gradmesser für die Schärfe der Spitze ist die Messung der Flankensteilheit von monoatomaren Stufen, also deren scheinbare Breite in Topographiebildern. Dies wird in Abbildung 3.6 demonstriert. Hier werden monoatomare Terrassen auf der Ni(111)-Oberfläche abgebildet, in die Schnittlinien senkrecht zur Verlaufsrichtung der Stufenkanten eingezeichnet wurden. Aus diesen Linienprofilen kann die Flankensteilheit ausgemessen werden. Für das Bild a) liegt die Breite der Flanke zwischen einem Punkt bei 20% und einem bei 80% des Maximalwertes bei ca. 4 nm, während für b) ein Wert von ca. 1,7 nm gemessen wird, was auf eine schärfere Spitze schließen lässt. Bei vielen Spitzen ist die scheinbare Breite der Stufen größer, so dass dann von einem stumpferen Spitzenende ausgegangen werden kann. Mit manchen Spitzen werden Stufenkanten und Adsorbate doppelt dargestellt, was auf eine Doppelspitze schließen lässt. Solche Spitzen sind für die Abbildung wenig geeignet und können durch gezielte Spitze-Probe-Kollisionen bearbeitet werden, wodurch in manchen Fällen die Abbildungsqualität verbessert werden kann.

### 3.2.2 Elektrische Eigenschaften der Spitze

Neben den strukturellen Eigenschaften der Messspitze können auch ihre elektrischen Eigenschaften durch Messungen auf der Nickeloberfläche untersucht werden. Dabei findet man bei manchen Spitzen ein ungewöhnliches Verhalten



**Abbildung 3.7:**  $\Delta f(U_{\text{Bias}})$ -Kurven, die mit einer Spitze, die über lokalisierte Zustände verfügt, in verschiedenen Abständen oberhalb eines sauberen und atomar glatten Bereichs der Nickelprobe aufgenommen wurden. Die unterste Kurve wurde bei einer Frequenzverschiebung von  $\Delta f_{\text{Soll}} = -5,5$  Hz aufgezeichnet. Für die weiteren Kurven wurde die Probe um den angegebenen Betrag zurückgezogen. Deutlich sind bei der unteren Kurve die durch Pfeile markierten sprunghaften Änderungen in der Frequenzverschiebung zu erkennen. Bei größeren Abständen sind die Sprünge weniger klar erkennbar und die Sprunghöhen nehmen ab bis sie schließlich bei einem Abstand von 7,7 nm zur ersten Kurve komplett verschwinden. Treten solche Sprünge oberhalb einer metallischen Probe auf, so kann daraus auf die Existenz von lokalisierten Zuständen an der Spitze geschlossen werden. Messparameter:  $f_0 = 152.917$  Hz,  $A = \pm 1,3$  nm,  $c_z = 31$  N/m,  $Q_0 = 122.300$ , Messsonde: SSS-NCL, (3+1) nm Ni/Si.

in  $\Delta f(U_{\text{Bias}})$ -Kurven, wie es in Abbildung 3.7 demonstriert wird. In dieser Abbildung werden  $\Delta f(U_{\text{Bias}})$ -Kurven gezeigt, die bei verschiedenen Messabständen oberhalb eines sauberen und atomar glatten Bereiches der Nickeloberfläche gemessen wurden. Die unterste Kurve wurde bei einer Frequenzverschiebung von  $\Delta f = -5,5$  Hz aufgenommen, während für alle weiteren Kurven der Spitze-Probe-Abstand um den angegebenen Betrag vergrößert wurde. Durch Pfeile sind sprunghafte Änderungen der Kurve markiert, die sowohl bei positiven als auch bei negativen Biasspannungen auftreten. Auch bei größeren Abständen werden diese Sprünge bei vergleichbaren Biasspannungen beobachtet, allerdings nimmt die Stärke der Frequenzänderung ab. Bei großen Abständen (-7,7 nm und -16,3 nm) sind keinerlei Sprünge mehr in der Kurve erkennbar.

In der Literatur finden sich unterschiedliche Erklärungsmodelle für solche diskreten Signaländerungen. Die Sprünge werden dabei durch Einzelelektro-

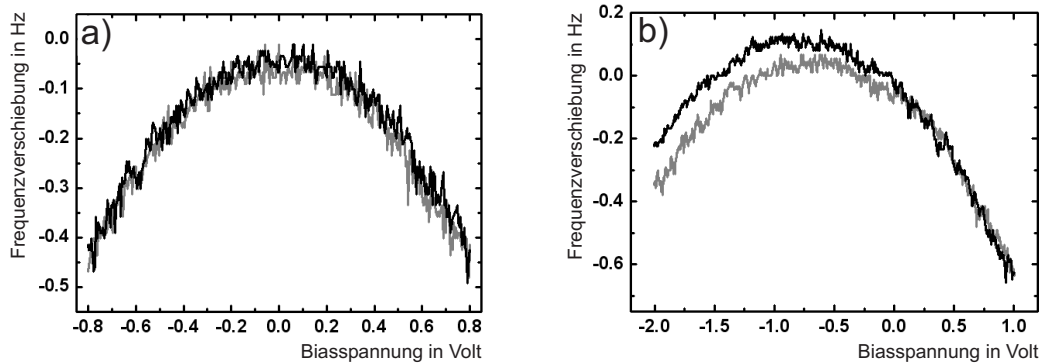
nenprozesse erklärt, durch die sich die gemessenen Kraftwechselwirkungen in diskreter Weise ändern. Dabei spielen Tunnelprozesse zwischen Spitze und Probe, aber auch Lade- und Entladevorgänge auf der Probenoberfläche eine wichtige Rolle.

So wurden z.B. für leitfähige Spitzen oberhalb einer isolierenden Probe Einzelelektronentunnelprozesse zwischen Spitze und Probe nachgewiesen [83], durch die lokalisierte Zustände in der Probenoberfläche besetzt wurden. Durch die angelegte Biasspannung können bei kleinen Spitze-Probe-Abständen von  $\leq 3$  nm einzelne Elektronen von der Spitze in die Probe tunneln, die bei umgekehrter Polarität der Biasspannung auch wieder zurück tunneln können. Da die Ladungen auf der Probenoberfläche nicht abfließen können, entsteht durch die zusätzliche elektrostatische Wechselwirkung ein sprunghafter Anstieg oder Abfall in der Stärke der Wechselwirkung.

Ähnliche Effekte kommen zu Stande, wenn Spitzen verwendet werden, an deren Ende sich ein isolierter Metallcluster befindet. Bei Messungen auf metallischen Oberflächen wurde nachgewiesen, dass einzelne Elektronen von der Probe in den Cluster hineintunneln können, um anschließend dort zu verbleiben [84, 85].

Diskrete Signaländerungen wurden auch beim Laden oder Entladen von lokalisierten Zuständen einer Probe beobachtet. In einer frühen Arbeit, in der der Entladevorgang einer geladenen, isolierenden Probe untersucht wurde, konnte bereits gezeigt werden, dass in einem solchen Experiment der Nachweis der Kraftwechselwirkungen einzelner Elektronen möglich ist [86]. In einer anderen Arbeit wurden die Auf- und Entladevorgänge in Quantenpunkten an der Oberfläche einer Probe untersucht [87]. Allgemein erwartet man für solche Prozesse, die ausschließlich in der Probe stattfinden, eine Ortsabhängigkeit des Effektes und ein vollständiges Verschwinden der beobachteten Sprünge in den  $\Delta f(U_{\text{Bias}})$ -Kurven bei entsprechend großen Spitze-Probe-Abständen.

Da bei der Untersuchung, die in Abbildung 3.7 behandelt wird, die Kurven oberhalb einer sauberen und atomar glatten Ni(111)-Oberfläche gemessen wurden, können lokalisierte Zustände an der Probenoberfläche eindeutig ausgeschlossen werden. Auch die beschriebenen Tunnelprozesse kommen als Erklärung nicht in Frage, da auch bei größeren Abständen, für die keine Tunnelprozesse zwischen Spitze und Probe zu erwarten sind, Sprünge in den  $\Delta f(U_{\text{Bias}})$ -Kurven auftreten. Die Sprünge in den Kurven können daher auf lokalisierte Zustände am Spitzenende zurückgeführt werden, die durch die angelegte Biasspannung in Einzelelektronenprozessen besetzt werden. Die Wechselwirkung mit der Probenoberfläche dient hier dem Nachweis dieser Lade- und Entladevorgänge. Da die elektrostatische Wechselwirkung langreichweitig ist, können diese Vorgänge deutlich von Tunnelprozessen zwischen Spitze und Probe unterschieden werden. Eine solche Untersuchung des Spit-



**Abbildung 3.8:** Hystereseverhalten bei  $\Delta f(U_{\text{Bias}})$ -Kurven, die mit schlecht leitfähigen Messsonden gemessen wurden. In a) werden zwei Kurven gezeigt, wobei die eine während einer Rampe von  $U_{\text{Bias,Start}}=-0,8$  V nach  $U_{\text{Bias,Ende}}=+0,8$  V und die andere auf dem Rückweg nach  $U_{\text{Bias,Start}}$  gemessen wurde. Beide Kurven liegen deckungsgleich aufeinander, so dass auf eine gute Leitfähigkeit der Spitze geschlossen werden kann. b)  $\Delta f(U_{\text{Bias}})$ -Kurven bei schlecht leitenden Messsonden zeigen häufig ein Hystereseverhalten zwischen dem Hin- (schwarze Linie) und dem Rückweg (graue Linie) der Kurve, wie es hier sichtbar wird. Es sind  $U_{\text{Bias,Start}}=-2,0$  V und  $U_{\text{Bias,Ende}}=+1,0$  V. Messparameter: a)  $f_0=158.995$  Hz,  $\Delta f_{\text{Soll}}=-1$  Hz,  $A=\pm 6,7$  nm,  $c_z=34$  N/m,  $Q_0=27.700$ , Messsonde: SSS-NCL, (15+15) nm Fe/Si, b)  $f_0=159.802$  Hz,  $\Delta f_{\text{Soll}}=-1$  Hz,  $A=\pm 62,5$  nm,  $c_z=34$  N/m,  $Q_0=291.900$ , Messsonde: SSS-NCL, (15+15) nm Fe/Si.

zenzustandes ist auch auf Isolatoren möglich, allerdings muss dabei streng genommen zusätzlich die Ortsabhängigkeit der Sprünge in den  $\Delta f(U_{\text{Bias}})$ -Kurven überprüft werden.

Aus der Existenz von Sprüngen in  $\Delta f(U_{\text{Bias}})$ -Kurven auf sauberen Metalloberflächen kann also direkt auf eine schlecht leitende Spitze geschlossen werden, die über lokalisierte Zustände verfügt. Im vorliegenden Fall befindet sich vermutlich trotz einer Metallbeschichtung zu wenig leitfähiges Material am Spitzenende.

Ein anderer Hinweis auf eine schlechte Leitfähigkeit der Spitze ist die Existenz einer Hysterese in manchen  $\Delta f(U_{\text{Bias}})$ -Kurven, die auf der Nickeloberfläche gemessen wurden (siehe Abbildung 3.8 b)). Als Test wird die Biasspannung dafür von einem Anfangswert  $U_{\text{Bias,Start}}$  zu einem Endwert  $U_{\text{Bias,Ende}}$  gefahren und anschließend wieder zurück, wobei für beide Richtungen eine  $\Delta f(U_{\text{Bias}})$ -Kurve aufgenommen wird. Tritt eine Hysterese zwischen den beiden Richtungen auf, so liegt offenbar eine schlechte elektrische Leitfähigkeit der Spitze vor, wodurch sich die Ladungen erst mit einer gewissen Zeitverzögerung entsprechend der angelegten Biasspannung umverteilen. Spitzen, die eine gute Leitfähigkeit aufweisen, zeigen keinerlei Hysterese, wie es in Abbildung 3.8 a) zu sehen ist.



Spitzen, bei denen die  $\Delta f(U_{\text{Bias}})$ -Kurven die beschriebenen charakteristischen Sprünge beziehungsweise eine Hysterese zeigen, erweisen sich als wenig geeignet für die Abbildung der isolierenden NiO-Oberfläche. Das Erscheinungsbild der  $\Delta f(U_{\text{Bias}})$ -Kurven kann also als wichtiges Kriterium für die elektrische Charakterisierung der Messspitze verwendet werden.

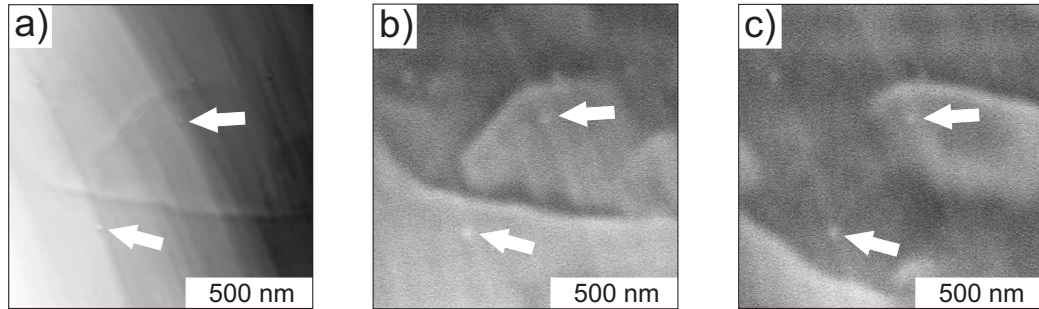
Betrachtet man Messungen bei tiefen Temperaturen, so kann man aus der guten elektrischen Leitfähigkeit einer Spitze auf eine durchgehende und ausreichend dicke Metallschicht an der Spitze schließen. Eine ferromagnetisch beschichtete Spitze des Typs C, die bei tiefen Temperaturen eine gute elektrische Leitfähigkeit aufweist, verfügt daher mit hoher Wahrscheinlichkeit über ein Spitzenende, welches aus magnetischen Atomen gebildet wird. Diese Feststellung ist insbesondere dann wichtig, wenn die Eignung einer Spitze für die magnetische Austauschkraftmikroskopie bewertet werden soll.

### 3.2.3 Magnetische Charakterisierung der Spitze

Auch die magnetostatischen Eigenschaften der Spitze können bis zu einem gewissen Grad auf der Nickeloberfläche untersucht werden. So ist es mit magnetischen Spitzen möglich, das Mikroskop als Magnetkraftmikroskop zu betreiben. Eine entsprechende Messreihe wird in Abbildung 3.9 vorgestellt. Dazu wird der Topographieregelkreis ausgeschaltet und in einem geeigneten konstanten Abstand oberhalb der Oberfläche gemessen (siehe dazu auch [73]). Durch magnetostatische Wechselwirkungen zwischen der Spitze und der Probe entsteht im Frequenzverschiebungskanal ein Abbild der magnetischen Domänenstruktur der Ni(111)-Oberfläche.

Abbildung 3.9 a) zeigt ein Topographiebild der Nickeloberfläche mit zahlreichen monoatomaren Stufen. Die beiden Pfeile markieren Adsorbate auf der Oberfläche, die auch in den magnetkraftmikroskopischen Bildern in b) und c) zu sehen sind. In b) und c) ist die Terrassenstruktur der Oberfläche nur schwach zu sehen, während der magnetische Kontrast der verschiedenen Domänen klar zu erkennen ist. Um den magnetischen Ursprung des Kontrastes nachzuweisen, wurde das äußere Magnetfeld von 0 T in a) auf 25 mT in b) erhöht. Dadurch ändert sich der Bildkontrast, so dass es sich hier tatsächlich um magnetische Strukturen handelt, die über die langreichweitigen magnetostatischen Wechselwirkungen mit der ferromagnetisch beschichteten Spitze interagieren.

Eine solche magnetische Abbildung mit der beobachteten Signalstärke lässt auf eine magnetische Spitze schließen, die über ein klar ausgeprägtes ferromagnetisches Streufeld verfügt. Damit kann allerdings keine Aussage über die Natur des Atoms am vordersten Spitzenende gemacht werden. Da hier



**Abbildung 3.9:** Abbildung der Ni(111)-Oberfläche, aufgenommen mit einer nickelbeschichteten Spitze. a) zeigt ein Topographiebild bei  $\Delta f = -1$  Hz und  $B = 0$  T, b) ein MKM-Bild bei  $B = 0$  T und c) ein MKM-Bild bei  $B = 25$  mT. In a) ist deutlich die Terrassenstruktur zu sehen, welche von einem magnetischen Signal überlagert wird. Durch die Messung im Magnetkraftmikroskopiemodus wird das magnetische Signal in b) und c) vom Topographiesignal getrennt. Allerdings sind die mit den Pfeilen markierten Adsorbate sowie die Stufenstruktur auch in den beiden MKM-Bildern schwach erkennbar. In Abhängigkeit vom angelegten Magnetfeld ändert sich die abgebildete Domänenstruktur, so dass damit der magnetische Ursprung des Signals in b) und c) eindeutig belegt wird. Messparameter:  $f_0 = 152.403$  Hz,  $A = \pm 5$  nm,  $c_z = 31$  N/m,  $Q_0 = 44.000$ , Messsonde: PPP-NCL, (10+10) nm Ni/SiO. a)  $\Delta f = -1$  Hz,  $\gamma = -6,9 \cdot 10^{-17} \text{N}\sqrt{\text{m}}$ , b) Spitze-Probe-Abstand: 19 nm, c) Spitze-Probe-Abstand: 24 nm.

nur die langreichweitige magnetostatische Wechselwirkung gemessen wird, spielt die Art oder die Ausrichtung des vordersten Spitzenatoms für den beobachteten Kontrast praktisch keine Rolle.

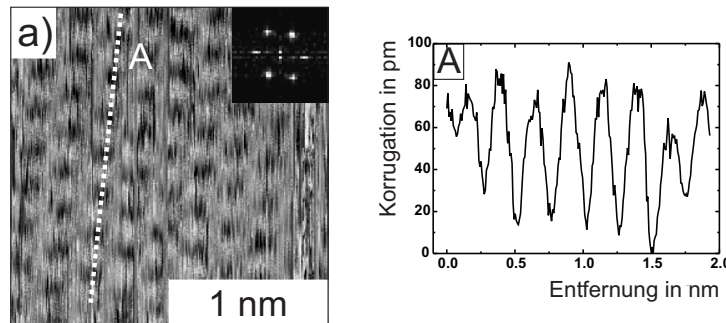
### 3.2.4 Atomare Auflösung auf der Ni(111)-Oberfläche

Wie bereits erläutert, kann durch die gezielte Kollision der Spitze häufig die Abbildungsqualität deutlich verbessert werden. Mit einer so präparierten Spitze konnte auch erstmalig atomare Auflösung auf der Ni(111)-Oberfläche erzielt werden, wie es in Abbildung 3.10 zu sehen ist<sup>†</sup>.

Abbildung 3.10 a) zeigt klar die in einer dreizähligen Symmetrie angeordneten Atome an der Oberfläche. Das Topographiebild zeigt dabei den Kontrast invertiert, so dass die Nickelatome nicht als Erhebungen, sondern als Vertiefungen dargestellt werden. Bemerkenswert sind dabei das große Rauschen von etwa 20 pm und die hohe Korrugation von ca. 60 pm. Üblicherweise werden dagegen auf Metalloberflächen Korrugationen im Bereich von unter

<sup>†</sup>Während andere Metalloberflächen wie Ag(111), Cu(111) bzw. Cu(100) bereits mittels eines Rasterkraftmikroskops mit atomarer Auflösung abgebildet werden konnten [88–90], ist bislang keine entsprechende Studie für Ni(111) aus der Literatur bekannt.





**Abbildung 3.10:** Atomare Auflösung auf Ni(111). Die hexagonale Struktur ist im Topographiebild in a) klar zu erkennen. Die gezeigte Schnittlinie zeigt eine Korrugation von ca. 60 pm. Das Bild zeigt ein sehr hohes Rauschniveau. Vermutlich bestand am unteren Umkehrpunkt der Federbalkenoszillation ein mehratomiger Kontakt zwischen der Spitze und der Probenoberfläche, so dass zwar die Gitterperiodizität wiedergegeben wird, einzelne Fehlstellen aber nicht abgebildet werden können. Messparameter:  $f_0=151.441$  Hz,  $\Delta f=-20,6$  Hz,  $\gamma=-1,2 \cdot 10^{-14} \text{ N}\sqrt{\text{m}}$ ,  $A=\pm 20$  nm,  $c_z=31$  N/m,  $Q_0=26.500$ , Messsonde: SSS-NCL, Si.

15 pm gemessen. Der Grund für die kleine zu erwartende Signalstärke liegt in der schwachen räumlichen Modulation der totalen Ladungsdichte oberhalb von Metalloberflächen, die hier kontrastgebend ist.

Da keine Punktdefekte abgebildet werden, ist unklar, ob die vorliegende Messung tatsächlich im attraktiven Nichtkontakt-Bereich der Spitze-Probe-Wechselwirkung entstanden ist. Die unerwartet hohe Korrugation sowie das sehr hohe Rauschniveau während der Messung sprechen eher für eine Messung, bei der am unteren Umkehrpunkt der Oszillation des Federbalkens eine mehratomige Kontaktfläche zwischen der Spitze und der Probe entstanden ist. Eine solche mehratomige Kontaktfläche kann durch starke langreichweitige attraktive Kräfte zwischen Spitze und Probe zustande kommen, wodurch die Gesamtkraft immer noch anziehend sein kann, während die vordersten Spitzenatome bereits starke repulsive Kräfte erfahren. Dadurch wird zwar die Gitterperiodizität sowie die Symmetrie richtig wiedergegeben, aber wahre atomare Auflösung, also die Abbildung einzelner atomarer Punktdefekte, ist damit oftmals nicht möglich.



# Kapitel 4

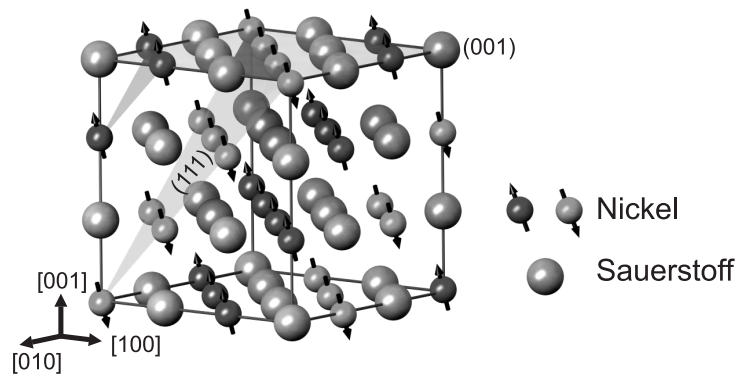
## Topographische Untersuchung der NiO(001)-Oberfläche

Bevor in Kapitel 5 auf die Experimente zur magnetischen Austauschkraftmikroskopie eingegangen wird, wird zunächst die Topographiemessung auf der NiO(001)-Oberfläche behandelt. Zuerst wird die Präparation der Proben erläutert, bevor die Abbildung von Defekten auf der Oberfläche beschrieben wird. Des Weiteren werden der atomare Kontrast im Topographie- sowie im Dissipationssignal thematisiert und die Auswirkungen von Spitzenwechseln auf den Kontrast auf atomarer Größenskala behandelt.

### 4.1 Eigenschaften von Nickeloxid

Nickeloxid ist ein Antiferromagnet mit einer Néeltemperatur von  $T_{\text{Néel}}=525$  K und einer Gitterkonstanten von  $a=417$  pm [91]. Die elektrische Leitfähigkeit ist sehr gering, da es sich bei NiO um ein klassisches Beispiel für einen Mott-Isolator handelt. Bei der Bildung von NiO findet ein Ladungstransfer vom Nickel zum Sauerstoff statt, so dass ein wesentlicher Anteil der Bindungen ionischer Natur ist.

Einige wichtige Eigenschaften des Nickeloxids lassen sich aus den elektronischen Gegebenheiten des Nickels und des Sauerstoffs ableiten. Die Elektronenkonfiguration ist dabei für Nickel  $[\text{Ar}] 3d^8 4s^2$  und für Sauerstoff  $[\text{He}] 2s^2 2p^4$ . Die chemische Bindung zwischen Sauerstoff- und Nickelatomen wird bestimmt durch die  $p$ - und  $s$ -Elektronen, welche weiter in das Vakuum hinausragen als die lokalisierten  $3d$ -Elektronen. Die  $3d$ -Schale wiederum ist nicht vollständig abgesättigt und besitzt zwei ungepaarte Elektronen, die die magnetischen Eigenschaften des Nickeloxids bestimmen. So kann die antiferromagnetische Kopplung der Nickelatome im Nickeloxid durch einen Super-



**Abbildung 4.1:** Schematische Darstellung eines NiO-Kristalls. An der (001)-Oberfläche sind sowohl Nickel- als auch Sauerstoffatome vertreten. Die magnetischen Momente der Nickelatome sind innerhalb der (111)-Ebene ferromagnetisch gekoppelt, wobei zwischen benachbarten (111)-Ebenen wiederum eine antiferromagnetische Kopplung herrscht. An der (001)-Oberfläche des Kristalls sind daher die magnetischen Momente der Nickelatome entlang der  $[110]$ -Richtungen parallel zueinander ausgerichtet, während entlang der  $[1\bar{1}0]$ -Richtungen eine alternierende Anordnung der Momente auftritt [58].

austausch z.B. entlang der  $\langle 100 \rangle$ -Richtungen zwischen den  $3d$ -Elektronen des Nickels erklärt werden, der über die  $2p$ -Elektronen des Sauerstoffs vermittelt wird (vgl. dazu auch Kapitel 1.1.2). Durch die starke Lokalisierung der  $3d$ -Elektronen entsteht eine große Bandlücke von etwa 3,8 eV [91], so dass NiO zu den Isolatoren gezählt wird.

Die Kristallstruktur entspricht der Natriumchloridstruktur und ist zusammen mit der magnetischen Struktur in Abbildung 4.1 dargestellt. An der (001)-Oberfläche sind demnach sowohl Nickel- als auch Sauerstoffatome vertreten. Die magnetischen Momente der Nickelatome sind innerhalb der (111)-Ebene parallel zueinander ausgerichtet. Zwischen den einzelnen (111)-Ebenen dagegen gibt es eine antiferromagnetische Kopplung, so dass insgesamt also eine  $AF_2$ -Ordnung vorliegt. Als Konsequenz sind an der (001)-Oberfläche entlang der  $[110]$ -Richtungen die magnetischen Momente der Nickelatome parallel ausgerichtet, während sie entlang der  $[1\bar{1}0]$ -Richtungen alternierend angeordnet sind. Die magnetischen Momente zeigen dabei in eine der zwölf möglichen  $\langle 211 \rangle$ -Richtungen.

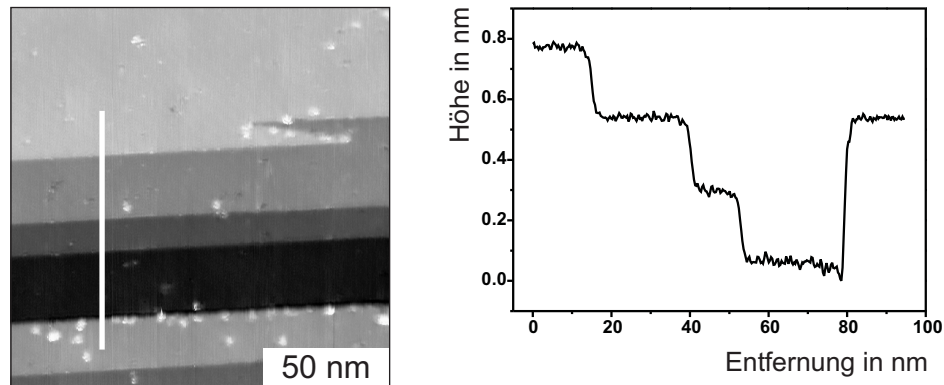
Für die Ausrichtung der magnetischen Momente an der Oberfläche finden sich in der Literatur unterschiedliche Angaben. So wurde für NiO-Filme der Dicken 10-80 nm, die auf ein MgO(001)-Substrat aufgebracht wurden, eine senkrechte Ausrichtung der Spins an der Oberfläche gefunden [92]. Für die Oberfläche von NiO-Einkristallen, wie sie auch in der vorliegenden Arbeit verwendet wurden, ergab eine Studie mit linearem Röntgendiffraktions, dass die Ausrichtung der magnetischen Momente an der Oberfläche nicht von der

Ausrichtung im Festkörper abweicht [93]. Daraus ergibt sich, dass die magnetischen Momente an der Oberfläche in jedem Fall eine deutliche *out of plane*-Komponente aufweisen. So ist der Winkel zwischen der (001)-Oberfläche und dem magnetischen Moment für acht der zwölf  $\langle 211 \rangle$ -Richtungen etwa  $29,2^\circ$  und für die anderen vier Richtungen etwa  $60,8^\circ$ . Dementsprechend beträgt die *out of plane*-Komponente 44,3% bzw. 81,6% des Gesamtmomentes.

Strukturell gesehen zeigt die (001)-Oberfläche keine Rekonstruktion. Dafür ist eine leichte Relaxation der Oberflächenlage von etwa 1,5 % in Richtung des Kristalls festzustellen. Außerdem tritt ein geringes *rumpling* auf, wobei das Nickel-Untergitter der ersten Lage um  $\leq 10$  pm in Richtung Vakuum verschoben wird [94]. Daraus folgt, dass sowohl auf dem Nickel-Untergitter als auch auf dem Sauerstoff-Untergitter alle Gitterplätze voneinander chemisch und strukturell ununterscheidbar sind. Die chemische Oberflächeneinheit zelle und die magnetische Oberflächeneinheit zelle zeigen eine  $(1 \times 1)$ - bzw. eine  $(2 \times 1)$ -Symmetrie. Sie fallen somit nicht zusammen und unterscheiden sich klar voneinander. Daher kann durch eine Abbildung der Periodizität der magnetischen Einheit zelle direkt auf die erfolgreiche Detektion einer Austauschwechselwirkung geschlossen werden (siehe auch Kapitel 2.1).

## 4.2 Präparation der NiO(001)-Oberfläche

Für die Präparation einer sauberen NiO(001)-Oberfläche bietet sich das Spalten eines entsprechend vorbereiteten Einkristalls innerhalb der UHV-Kammer an. In der vorliegenden Arbeit wurden dafür quaderförmige NiO-Einkristalle mit einer Grundfläche von ca.  $2 \times 2$  mm<sup>2</sup> verwendet, die mit Hilfe einer Säge mit einer Sollbruchstelle versehen wurden [95]. Für die weiteren Schritte zur Präparation der NiO-Kristalle kamen verschiedene Verfahren zum Einsatz, wobei mit der im Folgenden beschriebenen Prozedur die besten Ergebnisse erzielt wurden. Damit die Kristallprobe auch innerhalb der Vakuumkammer handhabbar ist, wurde sie mittels eines Lötverfahrens, wie es in [75] beschrieben wird, auf einem Probenhalter aus Tantal befestigt. Über ein Cu/Ag-Lot wird hier eine dauerhafte Verbindung hergestellt, die auch beim Heizen unter UHV-Bedingungen nicht ausgast. Dies ist besonders wichtig, da die Probe nach dem Spalten auf Temperaturen von etwa  $200^\circ\text{C}$  gebracht wird. Dadurch wird ein besseres Abfließen lokalisierter Ladungen, die beim Spaltprozess entstehen, ermöglicht. Wird zur Befestigung des Kristalls dagegen ein typischer UHV-tauglicher Zweikomponentenklebstoff verwendet, so kann es bei erhöhten Temperaturen zum Ausgasen verschiedener, flüchtiger Bestandteile des Klebstoffes kommen, wodurch die Adsorbatbelegung der Oberfläche steigt. Zwar ist eine perfekte NiO(001)-Oberfläche inert, jedoch



**Abbildung 4.2:** Übersichtsbild der Topographie mit dazugehöriger Schnittlinie. Deutlich sind die monoatomaren Terrassen zu sehen, deren Stufenkanten vornehmlich parallel zueinander entlang der [100]-Richtung verlaufen. Die Terrassenbreite liegt im Bereich einiger zehn Nanometer. Es sind zahlreiche Adsorbate zu sehen, die sich bevorzugt an den Stufenkanten anlagern. Das Bild wurde etwa 24 h nach dem Spalten aufgenommen. Messparameter:  $f_0=191.597$  Hz,  $\Delta f=-1,3$  Hz,  $\gamma=-1,1 \cdot 10^{-16} \text{N}\sqrt{\text{m}}$ ,  $A=\pm 5$  nm,  $c_z=49$  N/m, Messsonde: PPP-NCL, Ni/Si.

tritt bei realen Spaltflächen häufig eine große Zahl von Punkt- und Liniendefekten auf, an denen sich Adsorbate bevorzugt anlagern. Bei der Messung auf einer adsorbatbelegten Oberfläche erhöht sich das Risiko, durch eine Kollision mit einem großen Adsorbat eine Spitzenmodifikation zu erhalten. Zum einen kann die Spitze dadurch unbrauchbar werden und zum anderen kann danach nicht mehr ausgeschlossen werden, dass durch die Kollision nichtferromagnetische Fremdatome an das vorderste Spitzenende gelangt sind. Somit wird die Durchführung eines kontrollierten MAKM-Experimentes durch eine adsorbatarme Oberfläche deutlich erleichtert.

Um die Anzahl der Adsorbate zu minimieren, sollte während des Spaltens und des Heizens der Probe auf einen besonders guten Druck in der Präparationskammer der UHV-Anlage geachtet werden. Zur Verbesserung der Vakuumbedingungen wird im Vorfeld der Präparation eine Titan-Sublimationspumpe eingesetzt. Zusätzlich wird während der gesamten Präparation eine Kühlfalle an der Ionengetterpumpe der Präparationskammer mit flüssigem Stickstoff betrieben. Typische Drücke liegen dabei im Bereich von  $2 \cdot 10^{-8}$  Pa.

Die noch ungespaltene Kristallprobe wird in die Schleuse der Vakuumkammer eingesetzt und diese üblicherweise über Nacht abgepumpt und mit einer Temperatur von ca.  $120^\circ\text{C}$  ausgeheizt. Anders als bei den Innenwänden der Schleuse reicht die verwendete Temperatur offenbar nicht aus, um die Probe auf ihrem Probenhalter vom Wasserfilm zu befreien, der unter Umge-

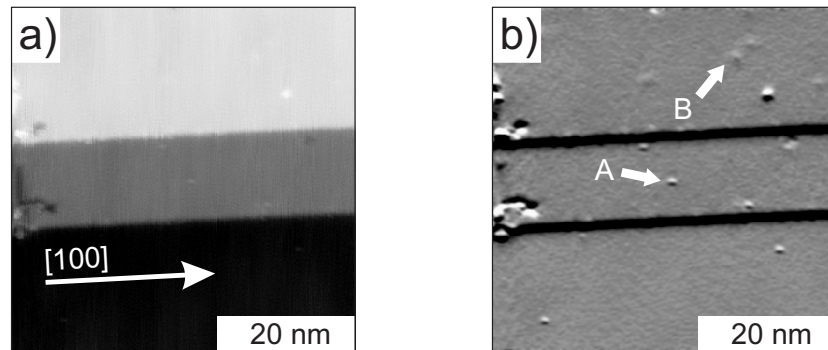
bungsbedingungen adsorbiert wurde. Daher wird die Probe vor dem Spalten in eine Widerstandsheizung eingesetzt und typischerweise für einige Stunden auf eine Temperatur von etwa 200-230°C gebracht. Nach dem Abkühlen des Kristalls wird dieser in der Schleuse gespalten und direkt im Anschluss wiederum in der Widerstandsheizung für ca. 15 min auf 200-220°C geheizt. Dadurch erhöht sich die elektrische Leitfähigkeit der Probe und elektrische Ladungen, die durch den Spaltprozess an der Oberfläche eines solchen ionischen Kristalls entstehen, können leichter abfließen. Anschließend wird unverzüglich ein Transfer in das Mikroskop vorgenommen, der unter den gegebenen Bedingungen in unter zehn Minuten durchgeführt werden kann. Wird das Mikroskop bei tiefen Temperaturen betrieben, so wirkt die Oberfläche des Kryostaten wie eine große Kühlfalle, so dass im Mikroskop mit sehr guten Vakuumbedingungen zu rechnen ist. Daher lassen sich neu präparierte Proben normalerweise über mehrere Tage oder sogar über mehrere Wochen untersuchen, bevor eine zu große Adsorbatdichte eine sinnvolle Messung verhindert.

In Abbildung 4.2 wird ein RKM-Bild der Oberfläche gezeigt, wie es in der Regel nach der Präparation beobachtet wird. Durch das Spalten des Kristalls sind glatte terrassierte Oberflächen entstanden, die durch Stufen mit der Höhe der halben Gitterkonstanten voneinander getrennt sind. Die Breite dieser Terrassen liegt häufig im Bereich einiger zehn Nanometer und sie werden vornehmlich begrenzt durch Stufenkanten entlang der [100]-Richtungen. Auf der Oberfläche befinden sich einige Adsorbate, die sich zumeist an den Stufenkanten angelagert haben.

### 4.3 Untersuchung von Defekten

Neben den erwähnten Adsorbaten werden auch zahlreiche Defekte auf den flachen Terrassen abgebildet. In Abbildung 4.3 ist neben der Topographie auch ein Ableitungsbild der Topographie dargestellt. Dadurch werden Stufen und insbesondere noch deutlich kleinere topographische Objekte, die sonst kaum erkennbar sind, hervorgehoben. Neben den monoatomaren Stufen kann auf den Terrassen zwischen zwei verschiedenen Objekttypen unterschieden werden, die im Bild mit A und B bezeichnet werden. Die mit A bezeichneten Objekte zeigen eine relativ scharf begrenzte asymmetrische Form mit lateralen Dimensionen von ca.  $1,1 \times 1,6 \text{ nm}^2$  und einer scheinbaren Höhe von etwa 30 pm. Die mit B bezeichneten Objekte sind mit einer scheinbaren Höhe von ca. 16 pm und einem Durchmesser von etwa 1,4 nm deutlich kontrastärmer. Dabei ist zu beachten, dass die Messung der lateralen Dimensionen eines solchen Objektes von der Form der Spitze abhängt, während die Höhenmessung





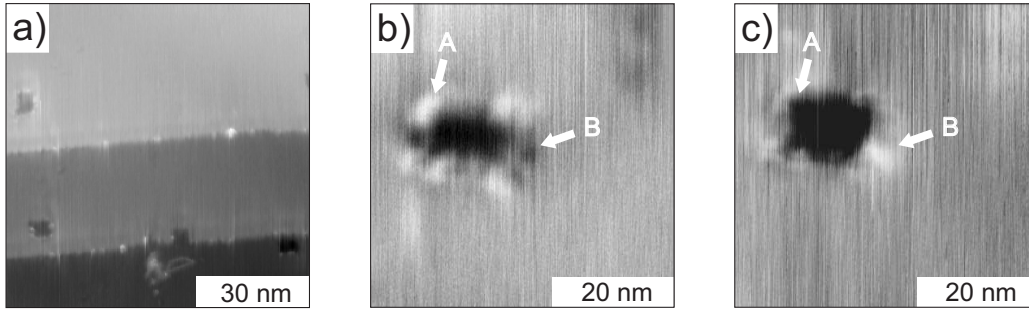
**Abbildung 4.3:** Topographiebild a) und das dazugehörige abgeleitete Bild b) monoatomarer Stufen. Die Stufenkanten laufen entlang der  $\langle 100 \rangle$ -Richtungen. Die Oberfläche ist praktisch adsorbatfrei aber es sind zahlreiche Defekte sichtbar (Defektdichte ca.  $1 \cdot 10^{16} \text{m}^{-2}$ ). Auf den Terrassen kann zwischen zwei Objekttypen unterschieden werden (A und B), die erst im Ableitungsbild deutlich hervortreten. Das rechte Bild wurde zur Rauschunterdrückung mit einem Tiefpass gefiltert. Messparameter:  $f_0 = 191.597 \text{ Hz}$ ,  $\Delta f = -1.9 \text{ Hz}$ ,  $\gamma = -1.6 \cdot 10^{-16} \text{ N}\sqrt{\text{m}}$ ,  $A = \pm 5 \text{ nm}$ ,  $c_z = 49 \text{ N/m}$ , Messsonde: PPP-NCL, Ni/Si.

auch bei einer relativ stumpfen Spitze einen verlässlichen Wert liefern sollte. Aufgrund ihrer Dimensionen kann man davon ausgehen, dass es sich bei den beobachteten Erhebungen nicht um Adsorbate handelt, wie eine einfache Abschätzung zeigt. So zeigt das Massenspektrum des Restgases typischerweise die Moleküle  $\text{H}_2$ ,  $\text{CO}$ ,  $\text{CO}_2$  und  $\text{H}_2\text{O}$ , die damit die wahrscheinlichsten Adsorbate darstellen. Die van der Waals-Durchmesser, die einen groben Anhaltspunkt über die zu erwartenden Dimensionen eines Adsorbates geben, liegen dafür bei über  $200 \text{ pm}^\dagger$ . Ein weiterer Hinweis darauf, dass es sich hier nicht um Adsorbate handelt, ergibt sich daraus, dass die Objekte offenbar nicht vermehrt an Stufenkanten zu finden sind, sondern gleichverteilt erscheinen. Diese Hinweise deuten auf intrinsische Defekte als Erklärung hin. Beispielsweise kann es sich um Fremdatome in der obersten Atomlage handeln oder aber um lokalisierte Ladungen wie sie bei Fehlstellen und Farbzentren auftreten. Auch Ladungen unterhalb der Oberfläche können infolge der Polarisierung des umgebenden Kristallgitters zu solchen Kontrasten führen.

Ein anderer Defektyp, der ebenfalls häufig anzutreffen ist, sind Fehlstelleninseln. Diese sind in Abbildung 4.4 a) zu sehen. Es handelt sich hier um Defekte, die normalerweise eine Monolage tief sind und in diesem Fall eine laterale Dimension von ca.  $7,5 \times 4,5 \text{ nm}^2$  aufweisen. Auf der mittleren Terrasse befindet sich eine solche Fehlstelleninsel direkt an der Stufenkante. In direkter Nachbarschaft dieser Fehlstelle ist eine schleifenartige Struktur auf der untersten Terrasse zu sehen. Dabei handelt es sich möglicherweise nicht

<sup>†</sup> $D_{\text{vdW}}(\text{H}_2) = 220 \text{ pm}$ ,  $D_{\text{vdW}}(\text{H}_2\text{O}) = 280 \text{ pm}$ ,  $D_{\text{vdW}}(\text{C}) = 340 \text{ pm}$ ,  $D_{\text{vdW}}(\text{O}) = 304 \text{ pm}$





**Abbildung 4.4:** Leerstelleninseln auf der NiO-Oberfläche. Das Topographiebild a) zeigt drei monoatomare Terrassen, deren Stufenkanten entlang der [100]-Richtung verlaufen. Zudem werden auf den Terrassen einige Fehlstelleninseln abgebildet und auf der untersten Terrasse ist eine schleifenartige Struktur zu sehen. In b) und c) werden zwei Topographiebilder einer Fehlstelleninsel einer anderen Probe gezeigt. Die Biasspannung wird dabei von  $U_{\text{Bias}}=0$  V im Bild b) zu  $U_{\text{Bias}}=1,5$  V in c) verändert. Deutlich ist zu erkennen, dass sich der Kontrast im Randbereich des Defektes ändert in Abhängigkeit der Biasspannung. So wechselt er an Position A von hell nach dunkel, während bei B ein Wechsel von dunkel nach hell stattfindet. Messparameter: a)  $f_0=164.989$  Hz,  $\Delta f=-2$  Hz,  $\gamma=-1,4\cdot 10^{-15}\text{N}\sqrt{\text{m}}$ ,  $A=\pm 22,5$  nm,  $c_z=36$  N/m,  $Q_0=103.000$ ,  $B=5$  T, Messsonde: PPP-NCL, (15+15) nm Fe/SiO. b) und c):  $f_0=204.023$  Hz,  $A=\pm 10,0$  nm,  $c_z=56$  N/m,  $Q_0=51.000$ , b)  $\Delta f=-2,3$  Hz,  $\gamma=-6,0\cdot 10^{-16}\text{N}\sqrt{\text{m}}$ , c)  $\Delta f=-9,2$  Hz,  $\gamma=-2,4\cdot 10^{-15}\text{N}\sqrt{\text{m}}$ , Messsonde: PPP-NCL, (5+25) nm Ni/Si.

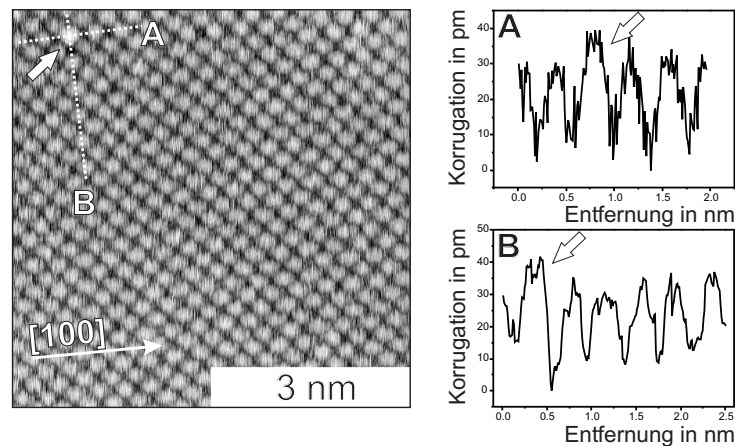
um Fremdadorbate, sondern um Adsorbatinseln, die sich aus dem Material der Leerstelleninseln während des Spaltvorganges gebildet haben. Solche Strukturen, wie auch ähnliche Fehlstelleninseln, wurden auch auf (001)-Spaltflächen des isostrukturellen MgO gefunden [96].

Die Ränder der Fehlstelleninseln zeigen häufig eine unregelmäßige Helligkeitsverteilung. In Abb. 4.4 b) und c) wurde eine Fehlstelleninsel einer anderen NiO-Probe bei verschiedenen Biasspannungen untersucht. Hier zeigt sich eine Modulation der Helligkeit im Randbereich des Defektes. Bei Variation der Biasspannung (Bild b) wurde mit  $U_{\text{Bias}}=0$  V und c) mit  $U_{\text{Bias}}=1,5$  V aufgenommen) ändert sich der Kontrast an Punkt A von hell nach dunkel während er bei B von dunkel nach hell übergeht. Dieses Verhalten lässt sich mit der Existenz von lokalisierten Ladungen im Randbereich der Fehlstelle erklären. Da das metallische Spitzenende durch die angelegte Biasspannung unterschiedlich geladen ist, ändert sich die Stärke und das Vorzeichen der elektrostatischen Wechselwirkung mit den lokalisierten Ladungen entsprechend. Dadurch kommt es in topographischen Abbildungen bei einer Variation der Biasspannung zu scheinbaren Höhenänderungen.

## 4.4 Atomare Auflösung

Mit einer geeigneten Messsonde, deren Spitzenende durch ein einziges Atom gebildet wird, ist auch die Abbildung der atomaren Struktur an der (001)-Oberfläche von NiO möglich. In Abbildung 4.5 wird ein entsprechendes Topographiebild zusammen mit zwei Schnittlinien gezeigt. Das Bild zeigt ein regelmäßiges, quadratisches Gitter, das der strukturellen (1×1)-Oberflächeneinheit zelle entspricht. Dabei ist zu beachten, dass nur eine Atomart als Erhebung angezeigt wird.

Aus Arbeiten von Castell *et al.* [97] ist bekannt, dass die totale Ladungsdichte oberhalb der Sauerstoffatome größer ist als oberhalb der Nickelatome (siehe dazu auch Abbildung 6.9). Geht man davon aus, dass die kurzreichweitige chemische Wechselwirkung dort am größten ist, wo die Elektronendichte groß ist, können die Maxima dem Sauerstoffuntergitter zugeordnet werden. Zudem ist die chemische Affinität zwischen Sauerstoff und Eisen größer als zwischen Nickel und Eisen [98]. Daher werden bei Verwendung von metallischen Spitzen nur die Sauerstoffatome als Maxima abgebildet und die Nickelatome erscheinen dunkel [44]. Dieser Befund wird durch theoretische Rechnungen gestützt, nach denen metallische Spitzen bzw. reine Siliziumspitzen



**Abbildung 4.5:** Topographiebild der NiO(001)-Oberfläche mit atomarer Auflösung. Es ist nur eine Atomsorte als Erhebung sichtbar, die andere wird als Minimum dargestellt. In der linken oberen Ecke ist ein Fremdatom im Kristallgitter zu sehen. Das Fremdatom erscheint um etwa 6 pm erhöht gegenüber den anderen Atomen. Die Schnittlinien A und B zeigen eine Korrugation von ca. 25 pm bei einem Rauschen von etwa 4 pm. Da die Schnittlinie B annähernd parallel zur schnellen Rasterrichtung verläuft, ist hier das Rauschen niederfrequenter als in der Schnittlinie A. Beim Bild handelt es sich um ungefilterte Rohdaten. Messparameter:  $f_0=164.986$  Hz,  $\Delta f=-11$  Hz,  $\gamma=-4,3 \cdot 10^{-15} \text{N}\sqrt{\text{m}}$ ,  $A=\pm 15$  nm,  $c_z=36$  N/m,  $Q_0=103.000$ ,  $B=5$  T, Messsonde: PPP-NCL, Fe/SiO.

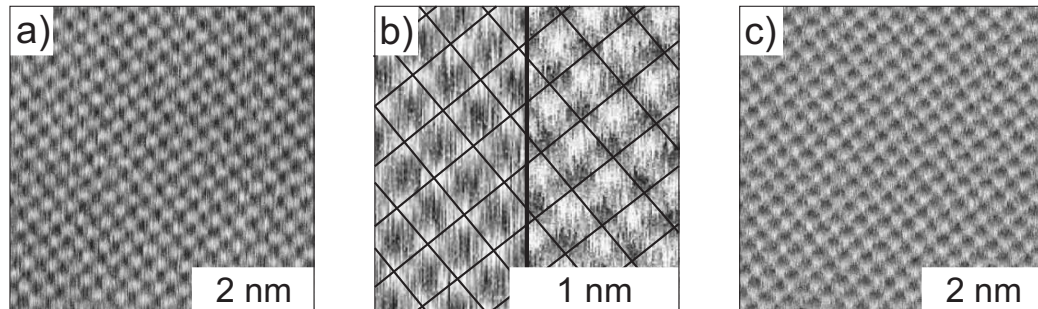
generell die Sauerstoffatome als Maxima abbilden. Wird jedoch ein Cluster aus der Oberfläche von der Spitze aufgesammelt, so dass ein Sauerstoffatom das vorderste Spitzenatom bildet, ist auch eine Abbildung möglich, bei der die Nickelatome der Oberfläche als Erhebungen dargestellt werden. Ein solcher Kontrast wurde für die Abbildung der MgO(001)-Oberfläche vorhergesagt, die mit dem Sauerstoffatom einer MgO-Spitze abgebildet wird.

Die beiden Schnittlinien A und B zeigen eine Korrugation von etwa 25 pm zwischen den Minima und Maxima, bei einem RMS-Rauschen von ca. 4 pm. Die Schnittlinie A verläuft etwa im rechten Winkel zur schnellen Rasterrichtung, so dass während der Bildaufnahme zwischen dem ersten und letzten Punkt der Linie deutlich mehr Zeit vergeht als bei der Schnittlinie B. Dadurch erscheint das Rauschen in der Schnittlinie A höherfrequenter als bei der Linie B.

In der linken oberen Ecke des Bildes, am Kreuzungspunkt der beiden Schnittlinien, ist ein Maximum zu erkennen, welches heller erscheint als die anderen Maxima des Bildes. Hierbei handelt es sich vermutlich um ein Fremdatom, welches in das Kristallgitter eingebaut wurde und das um etwa 6 pm gegenüber den anderen Maxima erhöht erscheint. Die Abbildung eines solchen Punktdefektes zeigt, dass hier nicht nur die Gitterperiodizität wiedergegeben wird, sondern wahre atomare Auflösung erzielt wird.

## 4.5 Dissipativer Kontrast

In vielen Fällen wird bei Messungen, bei denen die Oberfläche mit atomarer Auflösung abgebildet wird, auch im Dissipationskanal ein entsprechendes Signal mit atomarer Auflösung aufgezeichnet. In Abbildung 4.6 wird eine Messung gezeigt, bei der sowohl im Topographiekanal (Bild a)) als auch im Dissipationskanal (Bild c)) die atomar aufgelöste Abbildung der Oberfläche klar zu erkennen ist. Wie im Topographiekanal wird auch im Dissipationsbild nur eine Atomsorte als Maximum abgebildet. Allerdings erscheinen die beiden Bilder lateral gegeneinander verschoben, wie es in Abbildung 4.6 b) zu erkennen ist. Das Bild zeigt jeweils einen vergrößerten Ausschnitt aus Bild a) und c), wobei die linke Hälfte des Bildes b) das Topographiebild und die rechte Hälfte das Dissipationsbild zeigt. Die Position der Maxima im Topographiebild ist dabei nicht identisch mit der Position der Maxima im Dissipationsbild. Dies wird verdeutlicht durch das eingezeichnete Gitter, welches an die Maxima des Topographiebildes angepasst wurde. Die beobachtete laterale Verschiebung kann nicht auf einen Regelfehler zurückgeführt werden, da unabhängig von der Rasterrichtung eine solche relative Verschiebung zwischen Topographie- und Dissipationskanal auftritt. Da die Maxima



**Abbildung 4.6:** Atomare Auflösung im Topographie- und Dissipationskanal. Bild a) zeigt ein Topographiebild der Oberfläche mit atomarer Auflösung. In Bild c) ist das Dissipationsbild zu sehen, welches parallel zu a) aufgezeichnet wurde und ebenfalls deutlich die atomare Auflösung zeigt. In b) wird ein Bild dargestellt, welches aus Ausschnitten aus a) und c) zusammengesetzt wurde. Das eingezeichnete Gitter zeigt, dass die Bildmaxima des Topographiebildes in der linken Hälfte nicht an denselben Gitterpositionen liegen wie die Maxima im Dissipationsbild, das in der rechten Bildhälfte dargestellt wird. Die Maxima im Dissipationskanal können damit den Nickelatomen zugeordnet werden. Messparameter:  $f_0=164.989$  Hz,  $\Delta f=-11,5$  Hz,  $\gamma=-8,2\cdot 10^{-15}$  N $\sqrt{\text{m}}$ ,  $A=\pm 22,5$  nm,  $c_z=36$  N/m,  $Q_0=103.000$ ,  $B=5$  T, Messsonde: PPP-NCL, (15+15) nm Fe/SiO.

in den Topographiebildern bereits im vorangegangenen Abschnitt den Sauerstoffatomen zugeordnet werden konnten, werden demzufolge im Dissipationskanal die Nickelatome als Maxima dargestellt. Bei der Messung oberhalb der Nickelatome wird also mehr Energie dissipiert als bei der Messung oberhalb der Sauerstoffatome.

Eine mögliche Erklärung dafür ist der geringere Messabstand, der zwischen dem vordersten Spitzenatom und den Nickelatomen herrscht. Der Abstand wird bestimmt durch den Topographieregelkreis, der die Frequenzverschiebung durch Regelung des Abstandes auf einem konstanten Wert hält. Im hier betrachteten Fall variiert die  $z$ -Position des piezoelektrischen Stillelementes von Nickel zu Sauerstoff um ca. 15 pm. Nominell ist der Abstand des vordersten Spitzenatoms über den Nickelatomen also 15 pm geringer als über den Sauerstoffatomen. Hinzu kommt das „rumpling“, wodurch ein Unterschied von 25 pm resultiert. Die Änderung des tatsächlichen Abstandes kann davon aber aufgrund von Relaxierungseffekten der Spitzen- oder Probenatome, deutlich abweichen. Insbesondere kann die Relaxierung über den Nickel- und Eisenatomen verschieden sein. Da die dissipierte Energie im allgemeinen bei kleineren Spitze-Probe-Abständen größer wird, erwartet man also ein stärkeres Dissipationssignal über den Nickelatomen.

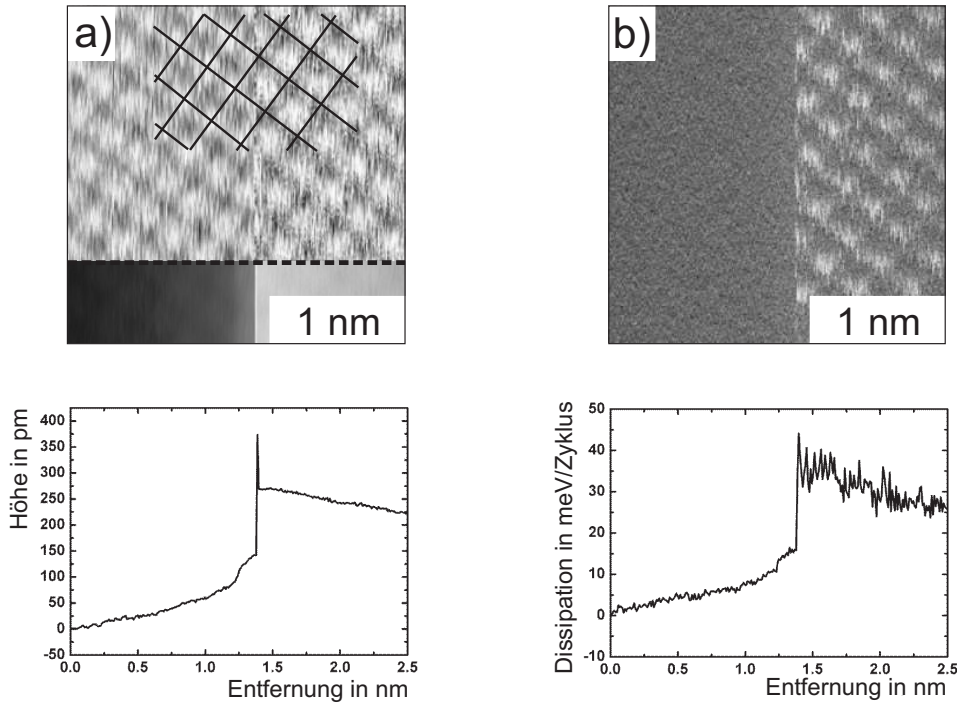
## 4.6 Kontraständerungen durch Spitzenwechsel

Neben der Abstandsabhängigkeit zeigt der Dissipationskontrast auch eine starke Abhängigkeit vom Zustand der Spitze. Manche Messspitzen weisen während einer Messung Instabilitäten auf, die durch Spitzenwechsel verursacht werden. Dabei kommt es zu Umkonfigurationen im Bereich der vordersten Spitzenatome, die sich durch sprunghafte Änderungen der Abbildungseigenschaften bemerkbar machen. In Abbildung 4.7 wird ein Beispiel für einen solchen Spitzenwechsel gezeigt. Dabei ist in Bild 4.7 a) das Topographiebild und in Bild b) der Dissipationskanal zu sehen, wobei die langsame Rasterrichtung von rechts nach links verläuft. Im unteren Bereich des Bildes a) wird ein Teil des Rohdatenbildes gezeigt, bei dem im wesentlichen ein starker, diskreter Übergang von hell nach dunkel festzustellen ist. Da die atomare Auflösung bei einem solchen Bildkontrast nur schlecht erkennbar ist, wurde das Bild mittels eines Linienabgleiches aufbereitet, wie es im oberen Teil von a) zu sehen ist (siehe dazu auch Anhang A.2). Hier zeigt sich klar die atomare Auflösung, die auf dem gesamten Bildbereich erzielt wird. Auch im Rohdatendissipationsbild, das in Bild b) dargestellt ist, ist eine starke Kontraständerung zu erkennen. An derselben Rasterlinie, bei der im Rohdatentopographiebild ein starker Kontrastwechsel auftritt, ändert sich auch der Kontrast im Dissipationsbild. Die rechte Hälfte des Bildes, die vor dem Spitzenwechsel aufgenommen wurde, zeigt atomare Auflösung, während im linken Bildbereich nur das Grundrauschen des Dissipationskanals zu sehen ist. Bemerkenswert ist hier, dass im Gegensatz zu der starken Änderung im Dissipationssignal die Korrugation im Topographiebild fast unbeeinflusst vom Spitzenwechsel bleibt. Allerdings ist anhand des eingezeichneten Gitters in Bild a) eine laterale Verschiebung im Topographiebild zwischen der Situation vor und nach dem Spitzenwechsel zu erkennen. Eine solche Verschiebung lässt darauf schließen, dass entweder während des Spitzenwechsels das vorderste Spitzenatom seine Position verändert hat oder aber eine Umkonfiguration aufgetreten ist, durch die ein anderes Atom an das Ende der Spitze gelangt ist.

Unterhalb der beiden Bilder sind gemittelte Schnittlinien dargestellt, die durch Mittelung über alle Bildzeilen der Rohdatenbilder entstanden sind. Dadurch ist keine atomare Korrugation in den Schnittlinien zu sehen, sondern nur der generelle Trend des Signals entlang der langsamen Rasterrichtung.

Ausgehend vom rechten Bildrand, ist im Verlauf der Schnittlinie ein leichter linearer Anstieg des Topographiesignals zu sehen, der durch Drifteffekte oder äußere Störungen verursacht werden könnte (siehe dazu auch Anhang C). Folgt man dem weiteren Verlauf der Schnittlinie, erscheint am Ort des Spitzenwechsels zunächst ein scharfer Ausschlag nach oben, bevor die





**Abbildung 4.7:** Spitzwechsel während der Bildaufnahme. In Bild a) wird ein Topographiebild der NiO-Oberfläche mit atomarer Auflösung dargestellt. Der Bereich unterhalb der gestrichelten Linie zeigt die Rohdaten. Im oberen Teil des Bildes wurde ein Linienabgleich vorgenommen, um die Atome besser sichtbar zu machen (siehe auch A.2). Das eingezeichnete Gitter verdeutlicht, dass infolge des Spitzwechsels die laterale Position der Maxima leicht verschoben erscheint gegenüber dem ursprünglichen Zustand. Unterhalb des Bildes ist eine Schnittlinie dargestellt, die durch Mittelung über das gesamte Rohdatenbild erstellt wurde. Deutlich ist hier die sprunghafte Änderung des Topographiesignals zu erkennen. Bild b) zeigt das Dissipationsbild welches parallel zur Topographie aufgenommen wurde. Auch hier ist eine sprunghafte Kontraständerung zu erkennen wobei nur im rechten Bereich des Bildes atomare Auflösung auftritt. Die Schnittlinie unterhalb des Dissipationsbildes zeigt die mittlere Schnittlinie des Rohdatendissipationsbildes. Bildparameter:  $f_0=164.989$  Hz,  $\Delta f=-10$  Hz,  $\gamma=-3,9\cdot 10^{-15}\text{N}\sqrt{\text{m}}$ ,  $A=\pm 15$  nm,  $c_z=36$  N/m,  $Q_0=103.000$ ,  $B=0$  T, Messsonde: PPP-NCL, (15+15) nm Fe/SiO.

Höhe sprunghaft auf einen Wert sinkt, der etwa 130 pm unterhalb des vorherigen Niveaus liegt. Im Anschluss ist ein sanfter Abfall des Höhensignals zu erkennen, der ebenfalls auf Störeffekte zurückgeführt werden kann (siehe Anhang C). Ein ähnliches Verhalten zeigt auch die gemittelte Schnittlinie über das Dissipationsbild. Auch hier ist ein sprunghafter Rückgang der Signalstärke am Ort des Spitzwechsels zu sehen.

Das beobachtete Verhalten kann zum Beispiel wie folgt erklärt werden. Da wahre atomare Auflösung erreicht wird, wird die Abbildung durch das vor-

derste Spitzenatom dominiert. Das Auftreten des atomaren Kontrastes zu Bildbeginn im Dissipationskanal sowie der beobachtete Spitzenwechsel sprechen für ein relativ schwach gebundenes vorderstes Spitzenatom, durch das die hysteresebedingte Dissipation, wie sie in Kapitel 1.2.7 beschrieben wurde, begünstigt wird. Der scharfe Ausschlag im Topographiesignal zeigt, dass der Regelkreis die abrupt eingetretene Störung nicht augenblicklich ausgleichen kann. Der effektive Höhengsprung von ca. 130 pm im Topographiesignal deutet darauf hin, dass die Spitze leicht verkürzt wurde und der Regelkreis die Verkürzung der Spitze durch ein Nachregeln auf eine kleinere Höhe aufgefangen hat. Es ist hier zu beachten, dass die Topographie der Spannung entspricht, die an das Piezoelement angelegt wird, sie also nur bei einer sich nicht verändernden Spitze ein Maß für den Spitze-Probe-Abstand ist. Da der Atomradius eines Eisenatoms bei ca. 125 pm liegt, erscheint es als wahrscheinlich, dass ein einzelnes Atom für den veränderten Kontrast gesorgt hat. Die sprunghafte Änderung des Topographiesignals spricht dafür, dass das zuvor schwach gebundene Atom am Spitzenende seine Position geändert hat und beispielsweise seitlich zur Flanke der Spitzenpyramide weggesprungen ist. Da sich das neue vorderste Spitzenatom im allgemeinen nicht an der gleichen lateralen Position wie das alte befindet, erscheint das atomare Gitter der Oberfläche infolge der Spitzenmodifikation lateral versetzt. Die Spitzenänderung wird im Dissipationskanal als Verschwinden des atomaren Kontrastes erkennbar. Dieses Verhalten lässt sich im Bild der hysteresebedingten Dissipation wie folgt erklären. Während zu Bildbeginn das vorderste Spitzenatom schwach gebunden war und dadurch die Energiedissipation begünstigt wurde, wird die Abbildung nach dem Spitzenwechsel durch ein stärker gebundenes Atom dominiert, so dass ein deutlicher Rückgang des Dissipationskontrastes entsteht.

Der in Abbildung 4.7 gezeigte Spitzenwechsel zeigt exemplarisch die Wichtigkeit der Konfiguration der vordersten Spitzenatome für die Abbildung. In der Praxis gibt es zahlreiche Ausprägungen von Spitzenumkonfigurationen. So gibt es Spitzenwechsel, bei denen die atomare Auflösung vollständig verloren geht und sie nur durch kontrollierte Spitzenkollisionen wiederhergestellt werden kann. In anderen Fällen tritt ein Kontrastwechsel ausschließlich im Dissipationssignal auf, während das Topographiesignal keinerlei Änderung aufweist. Zur Detektion von Spitzenwechseln ist daher auch das Dissipationssignal geeignet.





# Kapitel 5

## Experimente zur magnetischen Austauschkraftmikroskopie

Im vorliegenden Kapitel werden Ergebnisse von Messungen gezeigt, die auf den (001)-Oberflächen der Antiferromagneten NiO bzw. MnO durchgeführt wurden. Gelingt auf diesen Oberflächen neben der Auflösung der chemischen (1×1)-Einheitszelle auch die Abbildung der magnetischen (2×1)-Einheitszelle<sup>†</sup>, so kann daraus auf die erfolgreiche Messung der magnetischen Austauschwechselwirkung zwischen der Spitze und der Probe geschlossen werden (siehe Kapitel 2.1).

In den folgenden Abschnitten werden zunächst die verwendeten Messsonden beschrieben, bevor eine Diskussion der Messergebnisse folgt. Insbesondere werden Daten vorgestellt, in denen bei Verwendung von eisenbeschichteten Spitzen, die magnetische Einheitszelle auf der NiO-Oberfläche abgebildet werden konnte (siehe Kapitel 5.2). Dabei wird auch der Einfluss des Spitzenzustands auf die Abbildung eingehend besprochen. Des Weiteren werden Messungen präsentiert, bei denen Nickel- bzw. Gadoliniumbeschichtungen für die Spitzen verwendet wurden (siehe Kapitel 5.3 bzw. Kapitel 5.4). Mit solchen Messspitzen konnten aber ausschließlich die chemischen Einheitszellen abgebildet werden. Auch bei Messungen auf der MnO(001)-Oberfläche mit eisenbeschichteten Spitzen konnte die magnetische Einheitszelle nicht abgebildet werden (vgl. Kapitel 5.5).

---

<sup>†</sup>Die magnetischen Eigenschaften von NiO bzw. MnO werden in Kap. 4.1 bzw. in Kap. 5.5.1 beschrieben.

## 5.1 Die verwendeten Messsonden

In Kapitel 2.2.3 wurden bereits die experimentellen Anforderungen beschrieben, die zur Durchführung eines erfolgreichen MAKM-Experimentes erforderlich sind. Mit den in Kapitel 3 beschriebenen Charakterisierungsmethoden ist es möglich, geeignete Spitzen für ein solches Experiment auszuwählen. Es hat sich gezeigt, dass so genannte superscharfe Spitzen (SSS-NCL) des Präparationstyps C (siehe Kapitel 3.1) im allgemeinen über gute strukturelle und elektrische Eigenschaften verfügen. Insbesondere gelang es in einigen Fällen, mit solchen Spitzen ohne vorherige Spitzenkollision, atomare Auflösung zu erzielen (siehe Kapitel 5.3 bzw. Kapitel 6). Das Abbildungsverhalten der Spitzen ist dabei über einen längeren Zeitraum stabil und die  $\Delta f(U_{\text{Bias}})$ -Kurven zeigen kein Hystereseverhalten oder Sprünge, so dass davon ausgegangen werden kann, dass das vorderste Spitzenende von magnetischen Atomen gebildet wird (siehe Kapitel 3.2.2). Es ist daher zu erwarten, dass sich diese Messsonden gut für MAKM-Experimente eignen.

In Tabelle 5.1 sind einige Materialparameter der Ferromagneten Fe, Ni und Gd aufgeführt, die zur Beschichtung der Messsonden verwendet wurden. Zur Ausrichtung der magnetischen Momente der Spitze wurde mittels des supraleitenden Magneten eine Flussdichte oberhalb der magnetischen Sättigungspolarisation des verwendeten magnetischen Materials angelegt (siehe dazu auch Kap. 2.2.3). Die verwendeten magnetischen Flussdichten betragen hier 1 T für nickelbeschichtete, 3 T für gadoliniumbeschichtete und 5 T für eisenbeschichtete Spitzen. Die magnetischen Momente des NiO-Kristalls bleiben davon unbeeinflusst, da bei den verwendeten Flussdichten die Energie weit unterhalb der Zeeman-Energie liegt, die für ein Aufbrechen der antiferromagnetischen Ordnung erforderlich wäre. Die experimentellen Messergebnisse unterstreichen die große Wichtigkeit eines starken äußeren Magnetfeldes, da selbst bei einer Flussdichte von 5 T Anzeichen dafür gefunden wurden, dass die magnetischen Momente der vordersten Spitzenatome nicht vollständig ausgerichtet werden (siehe Abschnitt 5.2.6). Im Vorfeld der in diesem Kapitel vorgestellten Messungen, die mit eisenbeschichteten Messspitzen durchgeführt wurden, kam es zu kleinen unabsichtlichen Spitzenkollisionen mit der NiO-Oberfläche, bei denen mit hoher Wahrscheinlichkeit einige wenige Atome vom vordersten Spitzenende auf die Probe übergegangen sind (vgl. dazu Abbildung 3.4).

Alle im Folgenden diskutierten Messungen wurden im CA-Modus, also bei konstanter Schwingungsamplitude aufgenommen (vgl. Kapitel 1.2.1). Zur Kontrolle der Amplitudenregelung wurden grundsätzlich die Amplitudenbilder mit aufgezeichnet. In allen Messungen, die im vorliegenden Kapitel auf der (001)-Oberfläche von NiO durchgeführt wurden, war in den Amplituden-

	$M_{\text{Sat}}$	$m_s$	$T_{\text{Curie}}$
Fe	1,74 T	2,22 $\mu_{\text{B}}$	1043 K
Ni	0,51 T	0,61 $\mu_{\text{B}}$	631 K
Gd	2,01 T	7,1 $\mu_{\text{B}}$	292 K

**Tabelle 5.1:** Parameter der verwendeten Beschichtungsmaterialien. Es werden die Sättigungsmagnetisierung  $M_{\text{Sat}}$  bei 0 K, das magnetische Moment  $m_s$  bei 0 K und die Curie-temperatur  $T_{\text{Curie}}$  angegeben [31].

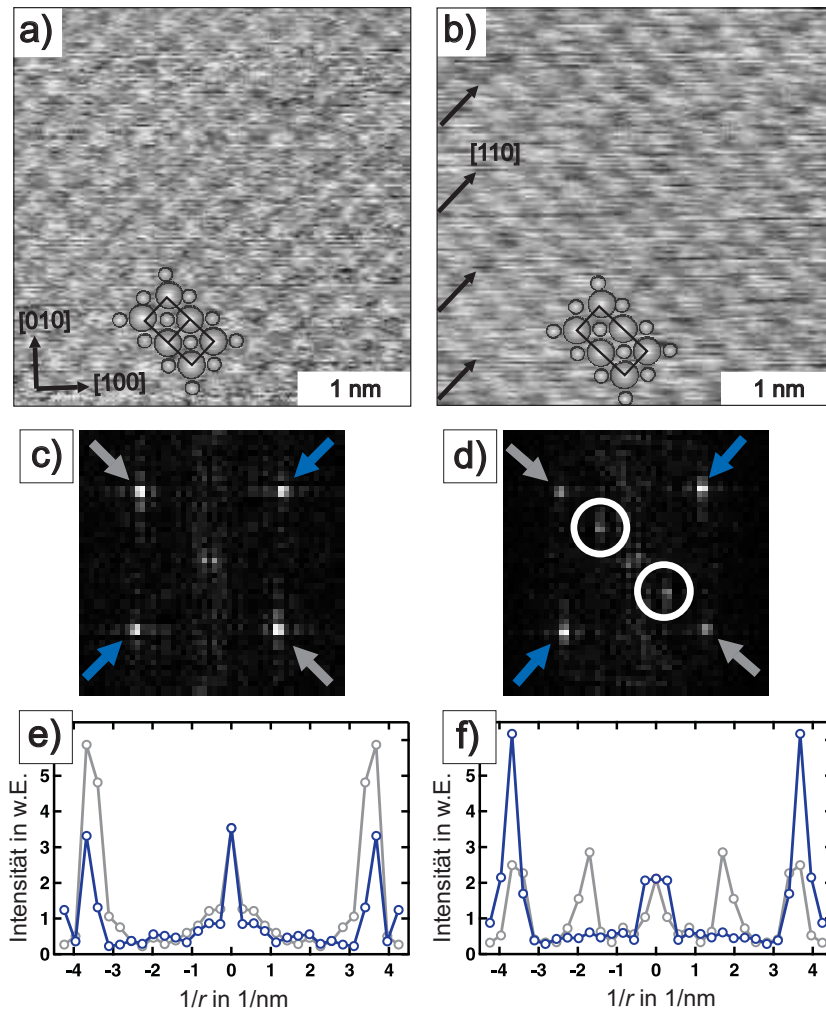
bildern kein atomarer Kontrast zu sehen, so dass daraus geschlossen werden kann, dass in allen Fällen bei einem gut eingestellten Amplitudenregelkreis gearbeitet wurde.

## 5.2 Magnetischer Austauschkontrast auf NiO(001)

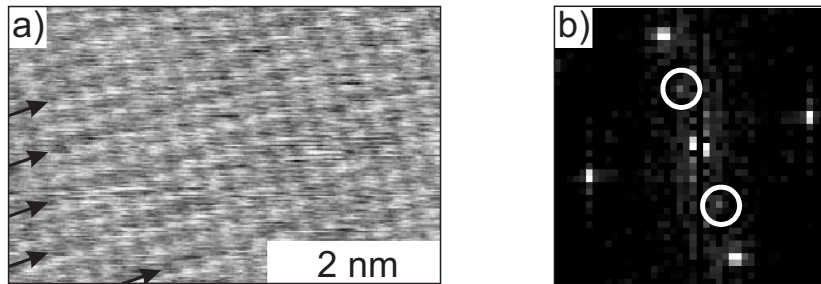
In Abbildung 5.1 werden zwei Topographieaufnahmen gezeigt, die bei unterschiedlichen Spitze-Probe-Abständen mit derselben eisenbeschichteten Spitze gemessen wurden. Bild a) wurde bei einer Frequenzverschiebung von  $\Delta f = -22$  Hz aufgenommen und zeigt die Oberfläche mit atomarer Auflösung. Wie in Abbildung 4.5 werden auch hier nur die Sauerstoffatome als Maxima abgebildet. Dementsprechend werden die Nickelatome als Minima dargestellt. In Abbildung c) ist das zu a) dazugehörige Fourierspektrum zu sehen. Die vier Maxima des Spektrums korrespondieren dabei mit der chemischen ( $1 \times 1$ )-Einheitszelle.

Abbildung 5.1 b) wurde direkt im Anschluss von Bild a) bei  $\Delta f = -23,4$  Hz aufgenommen. Zwischen den beiden Bildern wurde die Messung nicht unterbrochen und die Spitze blieb dabei unverändert. Infolge der Änderung der Frequenzverschiebung wurde vom Regelkreis der Abstand zwischen Probe und Messsonde um ca. 30 pm verringert. Die reale Annäherung zwischen dem vordersten Spitzenatom und dem untersuchten Probenatom kann allerdings infolge von Relaxierungseffekten deutlich von diesem Wert abweichen.

Das Bild zeigt zusätzlich zur atomar aufgelösten Oberfläche noch eine Überstruktur. Wie durch die Pfeile angedeutet, erscheint hier jede zweite Nickelreihe entlang der [110]-Richtung dunkler als die dazwischenliegenden Nickelreihen. Diese Überstruktur ist auch im dazugehörigen Fourierspektrum in d) in Form zweier zusätzlicher Maxima klar zu erkennen. In e) und f) sind zwei Schnittlinien dargestellt, die entlang der Diagonalen der Fourierspektren



**Abbildung 5.1:** Atomare Auflösung mit magnetischem Austauschkontrast auf der (001)-Oberfläche von NiO. Bild a) wurde bei  $\Delta f = -22,0$  Hz aufgenommen und zeigt eine atomar aufgelöste Abbildung der chemischen Einheitszelle der NiO(001)-Oberfläche, vergleichbar mit der Aufnahme in Abbildung 4.5. Bild c) zeigt das dazugehörige Fourierbild mit vier Maxima, die die chemische ( $1 \times 1$ )-Oberflächeneinheitszelle im reziproken Raum repräsentieren. In e) werden zwei Schnittlinien entlang der Diagonalen im Fourierbild gezeigt. Bild b) wurde bei  $\Delta f = -23,4$  Hz aufgenommen. Zusätzlich zur chemischen Einheitszelle ist hier eine Supermodulation zu erkennen, die jede zweite Nickelreihe entlang der [110]-Richtung dunkler erscheinen lässt (angedeutet durch die Pfeile). Im dazugehörigen Fourierbild in d) erscheinen dementsprechend zwei zusätzliche Maxima. In f) ist zu sehen, dass die Maxima nur auf einer der beiden Diagonalen vorkommen und deutlich über dem Rauschniveau liegen. Sie liegen genau auf halber Strecke zwischen den äußeren Maxima und dem Ursprung des Fourierbildes und korrespondieren daher mit der magnetischen ( $2 \times 1$ )-Oberflächeneinheitszelle. Messparameter:  $f_0 = 158.995$  Hz,  $A = \pm 6,7$  nm,  $c_z = 34$  N/m,  $Q_0 = 27.700$ ,  $B = 5$  T, a)  $\Delta f = -22,0$  Hz,  $\gamma = -2,6 \cdot 10^{-15} \text{ N}\sqrt{\text{m}}$ , b)  $\Delta f = -23,4$  Hz,  $\gamma = -2,7 \cdot 10^{-15} \text{ N}\sqrt{\text{m}}$ , Messsonde: SSS-NCL, (15+15) nm Fe/SiO.



**Abbildung 5.2:** Topographiebild, das direkt nach Bild 5.1 aufgenommen wurde. Hier wurde die Rasterrichtung um  $30^\circ$  gedreht, um eine äußere Oszillation als Quelle der Supermodulation auszuschließen. Die Supermodulation ist im Bild a) klar zu erkennen. In Analogie zu Abbildung 5.1 zeigen Pfeile die dunklen Nickelreihen an. Das Fourierbild b) zeigt neben den vier Punkten der chemischen Einheitszelle auch die beiden Zusatzmaxima, die sich ebenfalls um  $30^\circ$  mitgedreht haben. Ein solches Verhalten ist bei einem Messartefakt durch Einkopplung einer äußeren Oszillation nicht zu erwarten, so dass ein solcher Messartefakt hier ausgeschlossen werden kann. Messparameter:  $f_0=158.995$  Hz,  $\Delta f=-23,40$  Hz,  $\gamma=-2,7 \cdot 10^{-15} \text{N}\sqrt{\text{m}}$ ,  $A=\pm 6,7$  nm,  $c_z=34$  N/m,  $Q_0=27.700$ ,  $B=5$  T, Messsonde: SSS-NCL, (15+15) nm Fe/SiO.

gezogen wurden. Hier wird deutlich, dass die zusätzlichen Maxima nur auf der einen Diagonalen auftreten. Ihre Position liegt genau mittig zwischen dem Ursprung und den Maxima der chemischen Einheitszelle. Die Intensität der Zusatzmaxima liegt dabei klar oberhalb des Rauschniveaus des Spektrums.

Die beobachtete  $(2 \times 1)$ -Überstruktur entspricht genau dem erwarteten Ergebnis für einen Kontrast, der durch die magnetische Austauschkraft verursacht wird. Im Folgenden soll nun diskutiert werden, ob ein Messartefakt zu einem solchen Kontrast führen könnte, ohne dass eine Detektion der magnetischen Austauschkraft vorliegt.

### 5.2.1 Ausschluss oszillatorischer Rauschquellen

Koppeln äußere periodische Störungen in den Messprozess ein, so kann ebenfalls eine streifenweise Modulation im Bild entstehen. Bei entsprechend ungünstiger Frequenz- und Phasenlage, könnte eine ähnliche Modulation des Bildes entstehen, wie sie in Abbildung 5.1 zu sehen ist. Eine solche Störung wäre auch im Fourierspektrum nicht unterscheidbar von einer Messung der magnetischen Austauschkraft. Daraus wird deutlich, dass ein Ausschließen eines solchen Messartefaktes von großer Wichtigkeit ist für den Nachweis einer erfolgreichen Detektion der Austauschwechselwirkung. Daher wurde in diesem Fall der Bildbereich nach der Aufnahme von Bild 5.1 bei ansonsten unveränderten Aufnahmeparametern um  $30^\circ$  rotiert. Wie in Abbildung 5.2 zu sehen, erscheinen auch nach der Rotation des Bildes die Streifen entlang

der [110]-Richtung des Kristalls. Wäre eine periodische Störung die Ursache der Streifen im Bild, würden diese ihre Orientierung relativ zum Bildrahmen durch eine Rotation des Bildbereiches nicht ändern, da diese Störung nicht auf eine Spitze-Probe-Wechselwirkung zurückgeht (siehe dazu auch Anhang B). Der beschriebene Messartefakt kann somit zweifelsfrei ausgeschlossen werden.

### 5.2.2 Ausschluss eines Spitzenartefaktes

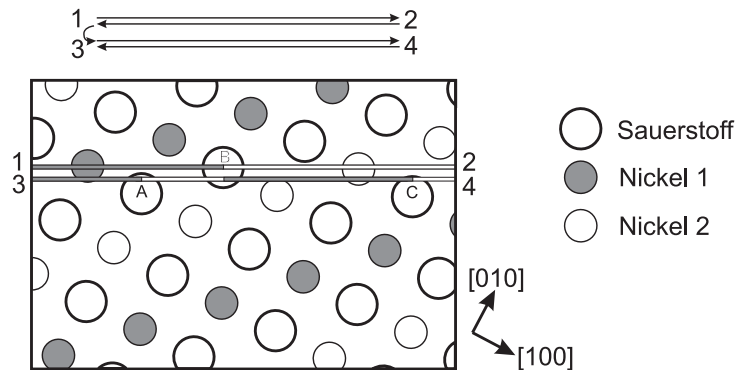
Ein anderer, häufig beobachteter Messartefakt wird durch nicht-ideale Spitzen verursacht, bei denen nicht ausschließlich ein einziges vorderstes Spitzenatom die Abbildung dominiert. So führen beispielsweise Doppelspitzen dazu, dass Adsorbate oder Stufenkanten in RKM-Bildern doppelt dargestellt werden. Im Folgenden soll nun geklärt werden, ob die Abbildung der chemischen Einheitszelle mit einer unregelmäßig geformten Spitze zu einer Supermodulation des Bildes führen kann, wie sie in Abbildung 5.1 gezeigt wurde. Dabei wird zunächst eine statische Spitze angenommen, die sich während des Ab-rasterns einer statischen Oberfläche nicht verändert.

Anders als bei den Stufenkanten und Adsorbaten, die oben als Beispiel genannt wurden, wird bei den hier besprochenen Messungen ein periodisches Gitter abgebildet. Es ist bereits bekannt (vergleiche Kapitel 4.1), dass jeder Gitterpunkt des Nickelgitters chemisch und strukturell ununterscheidbar ist. Damit ist auch die Abbildung der Nickelatome mit einer statischen Spitze ununterscheidbar, unabhängig davon, welches Nickelatom betrachtet wird. Es spielt dabei insbesondere auch keine Rolle, welche konkrete Form die Spitze aufweist, da sich auch die Umgebung um den Nickelplatz herum für verschiedene Nickelplätze gleicht. Bei den Messungen, die in den Abbildungen 5.1 und 5.2 vorgestellt werden, ist dagegen ein Höhenunterschied zwischen benachbarten Nickelreihen zu beobachten, so dass also strukturell und chemisch gleiche Nickelatome unterschiedlich dargestellt werden. Eine statische Spitze, bei der sich die Konfiguration der vordersten Spitzenatome nicht mit der Zeit ändert, kann demzufolge ein solches Verhalten nicht erklären.

Betrachtet man nun ein Spitze-Probe-System, bei dem es aufgrund der wirkenden Kräfte zu reversiblen Relaxationen an der Probenoberfläche und an der Spitze kommt, so gilt das gleiche Symmetrieargument wie oben. Wirken keine magnetischen Kräfte, so sind die Relaxationseffekte über jedem Nickelatom gleich, so dass auch damit die Messdaten in Abbildung 5.1 und 5.2 nicht erklärt werden können.

Der einzige Fall, der prinzipiell zu einer Supermodulation führen könnte, betrifft eine Spitze, die während der Rasterbewegung zwischen verschiedenen Zuständen hin- und herschaltet. Dabei kann eine schaltende Spitze, bei





**Abbildung 5.3:** Prinzipskizze zum Ausschluss eines dynamischen Spitzenartefaktes. Hier wird ein Modell der NiO-Oberfläche gezeigt, wobei die Orientierung in etwa der des Gitters in Abbildung 5.2 entspricht. Wie in den Messdaten weisen die Nickelatome zwei Helligkeitsstufen auf. Die Pfeilskizze im oberen Teil der Zeichnung demonstriert, wie während der Rasterbewegung die Probe mit der Spitze abgefahren wird. Ausgehend von einer bistabilen Spitze, die an jedem Sauerstoffatom schaltet, zeigen die Graustufen der beiden Rasterlinien, die in das Gitter eingezeichnet wurden, den momentanen Schaltzustand der Spitze. Bei 1 bildet die Spitze Nickelatome dunkel ab, während sie durch einen Schaltprozess bei B am Punkt 2 in den Zustand „hell“ gewechselt ist. Auf dem Rückweg nach 1 schaltet die Spitze bei B wieder zurück nach „dunkel“. Auf der Linie von 3 nach 4 finden am Atom A und am Atom B zwei Schaltprozesse statt, so dass die angenommene bistabile Spitze die Nickelatome zwischen B und C dunkel abbilden würde und nicht hell, wie es aus den Messdaten hervorgeht. Die experimentell gewonnenen Daten können mit dem hier angeführten Modell einer bistabilen Spitze demnach nicht erklärt werden.

der die Schaltrate nur eine Funktion der Zeit ist, leicht durch Variation der Rastergeschwindigkeit oder des Rasterwinkels identifiziert werden. Die Verhältnisse sind dabei ähnlich wie bei der zuvor beschriebenen periodischen Störung, so dass eine solche Spitze hier auszuschließen ist.

Beispielhaft für einen Schaltprozess, der durch die Oberflächenstruktur verursacht wird, erfolgt nun eine Diskussion einer Spitze, die auf dem Maximum eines Sauerstoffatoms schaltet. Bei einem solchen Prozess müsste also die Spitze an einem Sauerstoffatom von Zustand „hell“ nach „dunkel“ schalten und am nächsten Sauerstoffatom von „dunkel“ nach „hell“. Es würde also ein identischer Schaltprozess (beispielsweise von „hell“ nach „dunkel“) nur bei jedem zweiten strukturell identischen Sauerstoffatom stattfinden. Daher ist es fraglich, ob eine solche Spitze in der Realität überhaupt existiert. Zudem erscheint es aus geometrischen Überlegungen als sehr unwahrscheinlich, dass eine Spitze dieser Art für den beobachteten Kontrast sorgen könnte. Dieses Argument kann anhand von Abbildung 5.3 verstanden werden. Hier wird die Abbildung einer NiO(001)-Oberfläche mit einer bistabilen Spitze simuliert, die auf den Sauerstoffatomen zwischen zwei Abbildungszuständen hin- und

herschaltet. Ist das abgebildete Atomgitter gegenüber dem Bildrahmen rotiert, wie es zum Beispiel in Abbildung 5.2 der Fall ist, kann demnach eine bistabile Spitze nicht für den beobachteten Kontrast sorgen, weil es während des zeilenweisen Rasterns vorkommt, dass zwischen einem hellen und einem dunklen Nickelatom entweder kein Schaltprozess oder direkt nacheinander zwei Schaltprozesse stattfinden, so dass der Spitzenzustand und die Abbildung nicht mehr in Phase zueinander sind. Eine solche geometrische Argumentation kann in ähnlicher Form auch für andere Fälle geführt werden.

Aus diesen Überlegungen heraus, und da ein vergleichbarer Kontrast wie in Abbildung 5.1 oder Abbildung 5.2 mehrfach auf verschiedenen Proben mit unterschiedlichen Messsonden reproduziert werden konnte (siehe Kapitel 5.2.5, Kap. 5.2.6 und Kap. 5.2.7), erscheint es als sehr unrealistisch, dass eine wie auch immer geartete „exotische“ Spitze für den gezeigten Kontrast verantwortlich ist.

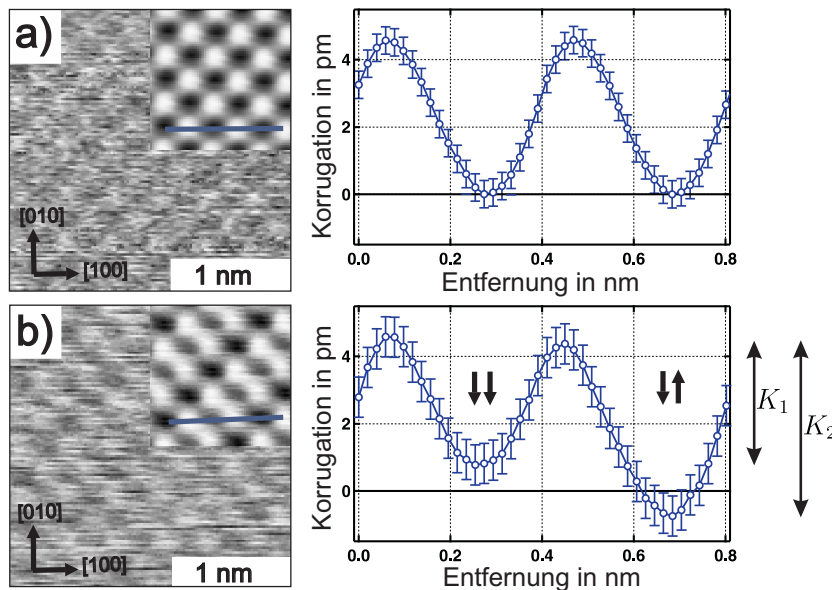
Die Supermodulation, die in den gezeigten Bildern bereits in den Rohdaten sichtbar ist, kann daher auf die erfolgreiche Detektion der magnetischen Austauschkraft zurückgeführt werden, so dass hier die chemische Einheitszelle zusammen mit der magnetischen Einheitszelle abgebildet werden konnte. Diese Messungen stellen damit den ersten eindeutigen Nachweis eines erfolgreichen MAK-M-Experimentes dar.

### 5.2.3 Quantifizierung des Kontrastes

Um die Kontraste der Topographiebilder aus Abbildung 5.1 verlässlich auszumessen, wurde ein Mittelungsverfahren angewendet, welches das Signal-zu-Rausch-Verhältnis verbessert. Dabei wird mittels einer Software ein Gitter, das entweder auf der chemischen oder der magnetischen Einheitszelle basiert, an das Topographiebild angepasst, und es wird über alle verfügbaren Einheitszellen des Bildes gemittelt, so dass man eine einzelne, gemittelte Einheitszelle erhält (vgl. Anhang A.3). Ist  $N$  die Zahl der Einheitszellen über die gemittelt wird, so wird durch dieses Verfahren das RMS-Rauschen um den Faktor  $\sqrt{N}$  verbessert. Im hier vorgestellten Fall wird bei der Mittelung über die magnetischen Einheitszellen damit das RMS-Rauschen von  $\pm 2,7$  pm um den Faktor neun auf  $\pm 0,3$  pm gesenkt. Die Bestimmung der Signalhöhen und Kontraste des Ursprungsbildes kann über diese gemittelte Einheitszelle mit einer höheren Genauigkeit erfolgen.

Ein solches Mittelungsverfahren wurde zur Auswertung der Signalhöhen der beiden Bilder a) und b) aus Abbildung 5.1 verwendet. Das Ergebnis ist in Abbildung 5.4 a) und b) zu sehen. Darin sind neben Ausschnitten aus dem Originalbild jeweils oben rechts gemittelte Bilder dargestellt. Diese wurde





**Abbildung 5.4:** Quantifizierung des chemischen und magnetischen Kontrastes in den Bildern aus Abbildung 5.1. Die Bilder a) und b) zeigen Ausschnitte aus den Topographiebildern aus Abbildung 5.1 a) und b). Rechts oben in a) und b) werden Bilder dargestellt, die jeweils aus einer gemittelten chemischen (a) bzw. magnetischen (b) Einheitszelle zusammengesetzt wurden (siehe dazu auch Anhang A.3). Die Schnittlinien zeigen Schnitte durch die gemittelten Einheitszellen und wurden verwendet, um die Signalhöhen auszumessen. Deutlich ist bei b) sowohl im Bild als auch in der Schnittlinie die zusätzliche Modulation der Minima zu sehen, die auf die magnetische Austauschwechselwirkung zwischen Spitze und Probe zurückgeht. Die Modulation der Maxima liegt im Bereich des Fehlerbalkens und ist daher nicht signifikant. In der Schnittlinie bei b) wurden Pfeile eingezeichnet, die für den Fall einer ferromagnetischen Austauschwechselwirkung die relative magnetische Orientierung der Spitze zur Probe angeben. Die verschiedenen Signalunterschiede werden mit  $K_1$  und  $K_2$  bezeichnet. Da es verglichen mit der Zahl der magnetischen Einheitszellen eine größere Anzahl von chemischen Einheitszellen gibt, ist der Fehlerbalken in a) kleiner als in b). Messparameter siehe Abbildung 5.1.

aus den gemittelten Einheitszellen erstellt (siehe dazu Anhang A.3), wobei im Fall von Bild a) die chemische Einheitszelle und bei b) die magnetische Einheitszelle der Mittelung zu Grunde lag. Dabei wurde in a) über die chemische Einheitszelle gemittelt, da in Abbildung 5.1 weder im entsprechenden Topographiebild (a)) noch im Fourierbild (c)) ein Hinweis auf die Abbildung der magnetischen ( $2 \times 1$ )-Oberflächeneinheitszelle gefunden wurde.

Neben den Bildern werden jeweils die Schnittlinien durch die gemittelte Einheitszelle gezeigt. Für das Bild a) wird hier ein chemischer Kontrast von ca. 4,5 pm gemessen. Die Schnittlinie des Bildes b) zeigt zusätzlich die Supermodulation der gemittelten Einheitszelle. Im Gegensatz zu den Maxima zeigen hier die Minima einen klaren Signalhöhenunterschied, der

durch die magnetische Austauschwechselwirkung verursacht wird. Dadurch tritt oberhalb der Nickelatome je nach relativer Spinausrichtung eine attraktive oder repulsive Wechselwirkung zusätzlich zur chemischen Wechselwirkung auf. Da die Frequenzverschiebung auf einen konstanten Sollwert  $\Delta f_{\text{Soll}}$  geregelt wird, entsteht durch die zusätzlichen Kraftbeiträge der magnetischen Austauschwechselwirkung eine Höhenmodulation über den unterschiedlich ausgerichteten Nickelatomen. So weist das globale Minimum in der Schnittlinie der Abbildung 5.4 b) einen Höhenunterschied zum Maximum von  $K_2 = |\text{Ni}\uparrow\text{-O}| \approx 5,2$  pm auf, während für das globale Minimum ein kleinerer Höhenunterschied von  $K_1 = |\text{Ni}\downarrow\text{-O}| \approx 3,7$  pm gemessen wird. Die Art der magnetischen Kopplung zwischen Spitze und Probe lässt sich experimentell an dieser Stelle nicht ableiten. Theoretische Rechnungen sagen allerdings eine ferromagnetische Kopplung voraus [63], so dass eine parallele Ausrichtung der Spitzen- und Probenmagnetisierung also eine attraktive magnetische Austauschwechselwirkung zur Folge hat. Daraus kann geschlossen werden, dass beim globalen Minimum in der Schnittlinie zu Abbildung 5.4 b) eine antiparallele Konfiguration der Spins von Probe und Spitze vorliegt. Zur Verdeutlichung wurden die relativen Spinorientierungen von Spitze und Probe in die Schnittlinie eingetragen.

Der magnetische Austauschkontrast auf den Nickelatomen  $K_{\text{mag,Ni}}$  entspricht dem Höhenunterschied der beiden Minima und kann wie folgt definiert werden:

$$K_{\text{mag,Ni}} = |\text{Ni}\downarrow - \text{Ni}\uparrow| \quad (5.1)$$

Im vorliegenden Fall ergibt sich daraus ein magnetischer Austauschkontrast von  $K_{\text{mag,Ni}} \approx 1,5$  pm. Eine andere Möglichkeit, den magnetischen Kontrast zu definieren, besteht in der Bestimmung der Asymmetrie. Dazu wird der magnetische Kontrast mit dem chemischen Kontrast normiert, um eine bessere Vergleichbarkeit zwischen verschiedenen Messungen zu erzielen. Die Asymmetrie kann wie folgt definiert werden:

$$A_{\text{mag}} = \frac{|K_1 - K_2|}{|K_1 + K_2|} \quad (5.2)$$

Setzt man die gemessenen Werte ein, so erhält man im vorliegenden Fall als Asymmetrie:  $A_{\text{mag}} \approx 16$  %. Es ist zu beachten, dass die angegebene Formel

nur dann gilt, wenn lediglich eine der beiden Atomsorten eine Supermodulation zeigt. Um den chemischen Kontrast zu bestimmen, kann die folgende Formel verwendet werden. Danach gilt:

$$K_{\text{chem}} = \frac{1}{2}(|\text{Ni}\downarrow - \text{O}\downarrow| + |\text{Ni}\uparrow - \text{O}\uparrow|) \quad (5.3)$$

Die Pfeile symbolisieren jeweils die unterschiedlichen Ausrichtungen der Spins der Atome. Gleichung 5.3 wurde so definiert, dass sie auch dann gültig ist, wenn zusätzlich zum Kontrast auf den Nickelatomen auch ein Kontrast auf den Sauerstoffatomen gemessen wird. Da im konkreten Fall kein Kontrastunterschied auf den Sauerstoffatomen vorliegt, gilt hier  $\text{O} = \text{O}\uparrow = \text{O}\downarrow$ . Die Größe des chemischen Kontrastes beträgt in diesem Fall also  $K_{\text{chem}} \approx 4,5$  pm. Zusammenfassend ist festzustellen, dass durch die Verkleinerung des Spitze-Probe-Abstandes von Abbildung 5.1 a) nach b) bei etwa gleichbleibendem chemischen Kontrast ein magnetischer Kontrast von  $K_{\text{mag,Ni}} \approx 1,5$  pm auf den Nickelatomen entstanden ist, während auf den Sauerstoffatomen keine Supermodulation auftritt.

Die beobachtete Abstandsabhängigkeit der Supermodulation entspricht den Erwartungen aus theoretischen Rechnungen. So wurde in [63] ein messbares Einsetzen der magnetischen Austauschwechselwirkung für Abstände unterhalb von etwa 340 pm vorhergesagt. Eine Erklärung dieser Abstandsabhängigkeit lässt sich aus der elektronischen Struktur des Nickeloxides ableiten. So sind für größere Entfernungen die  $2p$ -Elektronen des Sauerstoffs kontrastgebend, da diese weiter in das Vakuum hinausragen und den Hauptanteil an der totalen Ladungsdichte ausmachen. Die  $3d$ -Elektronen des Nickels, die die magnetischen Spins tragen, sind dagegen stärker lokalisiert und zeigen erst bei sehr kleinen Abständen einen signifikanten Überlapp mit dem vordersten Spitzenatom.

Verglichen mit anderen Messungen ist der chemische Kontrast in den oben vorgestellten Messungen sehr gering. Andere typische Bilder (wie zum Beispiel in Abbildung 4.5) zeigen Korrugationen im Bereich von etwa 20 bis 30 pm. Auch in anderen Messungen, in denen ein magnetischer Austauschkontrast sichtbar wurde, wurde ein kleiner chemischer Kontrast von weniger als 13 pm gemessen (siehe dazu auch Kapitel 5.2.7).

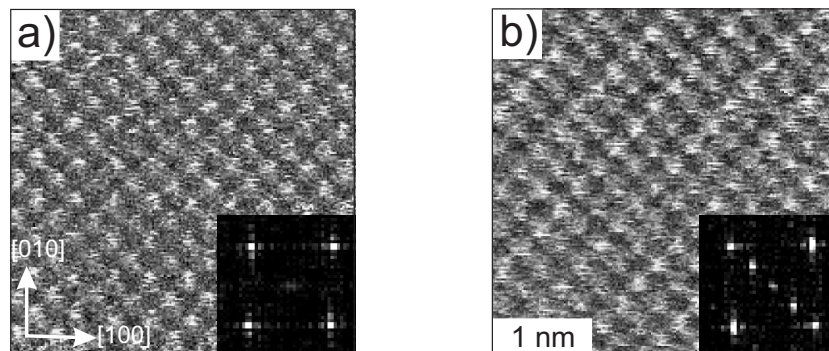
Eine Erklärung dafür könnte darin liegen, dass bei der Abbildung mit einem größeren chemischen Kontrast auch eine stärkere chemische Wechselwirkung zwischen Probe und Spitze auftritt. Bei sehr kleinen Abständen werden dadurch Spitzenmodifikationen wahrscheinlicher und eine Annäherung bis in den Bereich der magnetischen Austauschwechselwirkung ist dann nicht mehr möglich. Sehr scharfe Spitzen dagegen zeigen insgesamt einen schwächeren Kontrast, da die chemische Wechselwirkung relativ schwach ist und es ist

daher eventuell eher möglich, das vorderste Spitzenatom in den Wechselwirkungsbereich der magnetischen Austauschkräft anzunähern, ohne die Spitze durch eine starke chemische Wechselwirkung strukturell zu beschädigen.

### 5.2.4 Dissipativer Kontrast

Bei allen Messreihen, in denen bislang ein magnetischer Austauschkontrast im Topographiesignal detektiert wurde, zeigte auch der Dissipationskanal die atomare Auflösung an der Oberfläche mit der entsprechenden Supermodulation. Dagegen ist die atomare Auflösung der chemischen Einheitszelle im Topographiesignal häufig möglich, ohne dass ein Kontrast im Dissipationsignal auftritt (siehe dazu auch Abbildung 5.16 a) und d)). Offenbar tritt bei der Annäherung der Probe an die Spitze zunächst der atomar aufgelöste Kontrast im Topographiekanal auf, bevor dann bei kleineren Abständen auch im Dissipationssignal die atomare Modulation sichtbar wird (siehe dazu auch Kapitel 6.6.2). Das Auftreten eines dissipativen Kontrastes bei MAKM-Experimenten wird also durch den kleinen Spitze-Probe-Abstand erklärbar.

In Abb. 5.5 werden zwei Dissipationsbilder gezeigt, die parallel zu den Bildern a) und b) in Abbildung 5.1 aufgenommen wurden. Deutlich ist in beiden Bildern die atomar aufgelöste Oberfläche zu sehen, wobei auch hier nur eine Atomsorte als Erhebung dargestellt wird. Das Dissipationssignal ist über den Nickelatomen stärker als über den Sauerstoffatomen, so dass erstere in den Bildern hell dargestellt werden. Zusätzlich zum chemischen

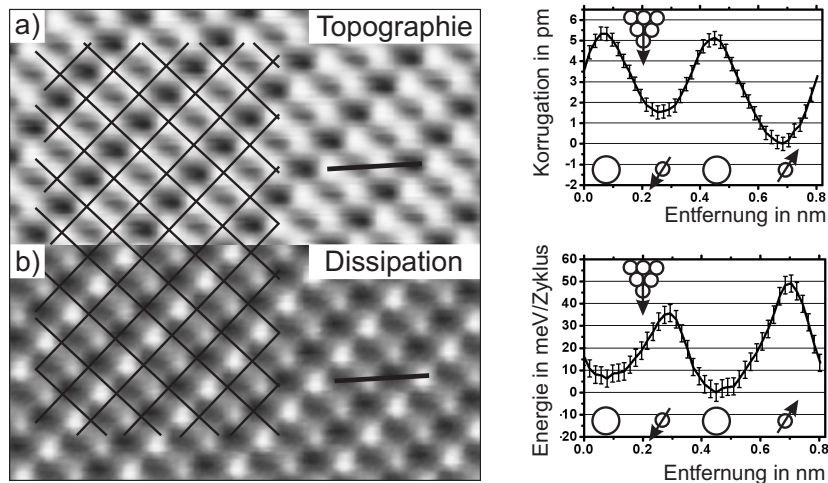


**Abbildung 5.5:** Magnetischer Austauschkontrast im Dissipationskanal  $a_{\text{exc}}(x, y)$ . Die beiden gezeigten Dissipationsbilder wurden parallel zu den Topographiebildern in Abbildung 5.1 aufgenommen. Bild a) wurde bei  $\Delta f = -22$  Hz und Bild b) bei  $\Delta f = -23,4$  Hz gemessen. Bild a) und b) wurden bei derselben Rasterrichtung aufgenommen wie in Abbildung 5.1 a) und b). Bild a) zeigt klar atomaren Kontrast, in Bild b) und dem dazugehörigen Fourierbild ist deutlich die Supermodulation zu sehen. Die Nickelatome werden in den Dissipationsbildern hell dargestellt. Messparameter siehe Abbildung 5.1.

Kontrast ist in Bild b) ein deutlicher Supermodulationskontrast erkennbar. Auch im Dissipationskanal ist der Supermodulationskontrast also erst bei sehr kleinen Abständen sichtbar. Diese Beobachtung wird verständlich, wenn man beachtet, dass der Messabstand über den Nickelatomen deutlich kleiner ist als über den Sauerstoffatomen und damit eher über den Nickelatomen mit einer höheren Dissipation zu rechnen ist (siehe dazu auch Kapitel 1.2.7 bzw. Kapitel 4.6).

Zur Auswertung der Signalstärken kann auch bei den Dissipationsbildern dasselbe Mittelungsverfahren verwendet werden, das bereits in Abbildung 5.4 zum Einsatz gekommen ist. Damit die Gitterperiodizität klar erkennbar ist, kann aus der gewonnenen mittleren Einheitszelle ein neues Bild konstruiert werden (siehe Anhang A.3). In Abbildung 5.6 werden zwei auf diese Art gewonnene Bilder gezeigt. Die obere Bildhälfte wurde aus dem Topographiebild aus Abbildung 5.1 b) erstellt, die untere Bildhälfte entstammt dem Dissipationsbild aus Abbildung 5.5 b).

Beim Vergleich der beiden Bilder a) und b) stellt das Dissipationsbild in etwa eine invertierte Darstellung des Topographiebildes dar. Dementsprechend ist an Gitterplätzen, an denen viel Energie dissipiert wird, im To-



**Abbildung 5.6:** Korrelation zwischen Topographie- und Dissipationsbild. a) Zur Verdeutlichung der Supermodulation wurde die durch Mittelung über alle magnetischen Einheitszellen des Topographiebildes aus Abbildung 5.1 b) gewonnene mittlere Einheitszelle zu einem Bild zusammengesetzt (vgl. Abbildung 5.4 b)). b) Analog wurde das Dissipationsbild aus Abbildung 5.5 b) verarbeitet. Neben der bildlichen Darstellung werden Schnittlinien gezeigt, die an äquivalenten Positionen des Gitters aufgenommen wurden. Während im Topographiesignal ausschließlich zwischen den Nickelatomen ein signifikanter Höhenunterschied festzustellen ist, wird beim Dissipationssignal auch auf den Sauerstoffatomen ein Kontrastunterschied gemessen.

pographiebild ein dunkler Kontrast zu sehen, was einem geringen Spitze-Probe-Abstand entspricht. Damit entsprechen die hellen Atome im Dissipationskanal den Nickelatomen, wodurch sich auch die deutlich erkennbare Supermodulation der hellen Atomreihen erklärt.

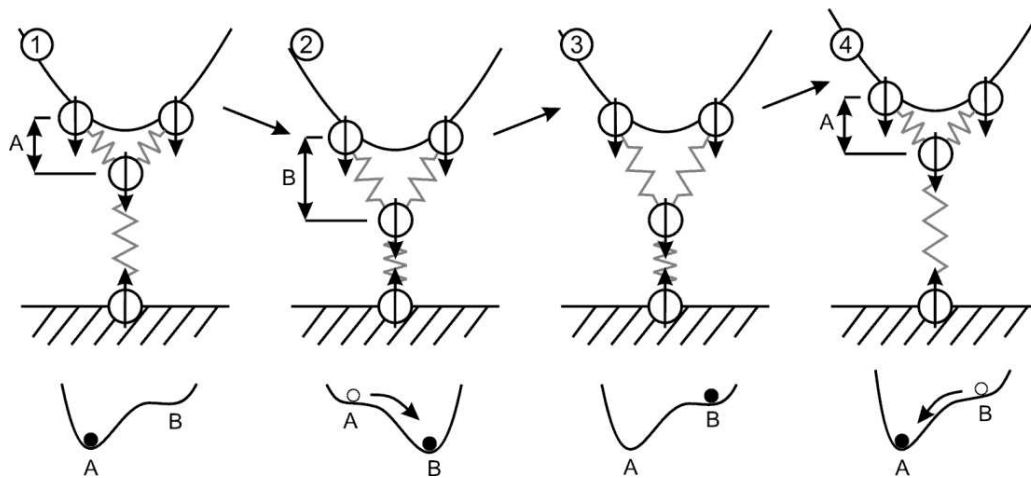
Zwischen dem Topographiesignal und dem Dissipationssignal wird eine kleine laterale Abweichung beobachtet, die für andere Proben bereits aus der Literatur bekannt ist. Diese Abweichung erklärt sich daraus, dass der topographische und der dissipative Abbildungsmechanismus auf unterschiedliche physikalische Prozesse zurückgehen, die an unterschiedlichen Orten im vorderen Bereich der Spitze lokalisiert sein können.

Neben der bildlichen Darstellung werden in Abbildung 5.6 auch zwei Schnittlinien durch die gemittelten Einheitszellen gezeigt. Dabei ist zwischen den Nickelatomen sowohl bei der Topographie- als auch bei der Dissipationsschnittlinie ein deutlicher Signalunterschied zu erkennen. Im Dissipationskanal beträgt der Kontrastunterschied 13,3 meV/Schwingungszyklus. Im Gegensatz zum Topographiekanal ist im Dissipationssignal auch über den Sauerstoffatomen ein signifikanter Signalunterschied von 6,2 meV/Schwingungszyklus zu sehen.

Die Dissipation auf den unterschiedlichen Sauerstoffplätzen unterscheidet sich also, obwohl der Messabstand annähernd konstant bleibt. Damit kann es sich hier nicht ausschließlich um eine scheinbare Dissipation durch unterschiedliche Messabstände handeln. Das weist darauf hin, dass ein zusätzlicher dissipativer Kontrastmechanismus existiert, der auf die magnetische Austauschwechselwirkung zurückgeht. Dass der Kontrast auf den Sauerstoffatomen auftritt, ist ein Hinweis auf einen möglichen Superaustauschmechanismus, der zwischen dem Nickelatom unterhalb des Sauerstoffatoms an der Oberfläche und dem Spitzenatom zu Stande kommt. Es ist zu erwarten, dass auch der dissipative Kontrast über den Nickelatomen zumindestens zum Teil durch Austauschwechselwirkungen entsteht und nicht nur auf eine scheinbare Dissipation infolge unterschiedlicher Messabstände zurückgeht. Für eine nähere experimentelle Untersuchung wären Messungen bei konstantem Spitzen-Proben-Abstand, also bei ausgeschaltetem Topographieregelkreis, wünschenswert, da dadurch die klare Trennung zwischen abstandsabhängigem Dissipationseffekt und echten Dissipationsprozessen möglich wird. Bisher liegen solche Messungen nicht vor und es ist möglich, dass bei einer solchen Messung der erforderliche sehr kleine Spitze-Probe-Abstand für eine Detektion der magnetischen Austauschwechselwirkung nicht erreicht werden kann.

Ein Erklärungsmodell für einen dissipativen Kontrastmechanismus, der auch auf die magnetische Austauschwechselwirkung zwischen Spitze und Probe sensitiv ist, wird in Abbildung 5.7 gegeben und erläutert. Es wird dabei





**Abbildung 5.7:** Schematische Darstellung eines dissipativen Kontrastmechanismus, der auch auf die magnetische Austauschwechselwirkung sensitiv ist. Das gezeigte Modell ist eine Erweiterung des in Abbildung 1.12 beschriebenen Modells. Als Beispiel ist hier eine Spitze gezeigt, deren magnetisches Moment nach unten zeigt, während das Moment eines Probenatoms antiparallel dazu angeordnet ist. Der Ablauf ist analog wie in Abbildung 1.12, allerdings wird die Potentiallandschaft des vordersten Spitzenatoms durch die magnetische Austauschwechselwirkung modifiziert. In Abhängigkeit von der relativen Ausrichtung der magnetischen Momente der Spitzen- und Probenatome zueinander wird die Lage und Art der Potentialminima unterschiedlich ausfallen. So kann sich z.B. die Sprunghöhe von A nach B ändern und der Spitze-Probe-Abstand, bei dem die Sprünge des Spitzenatoms auftreten, ebenfalls variieren. Die dissipierte Energie ist also auch von der magnetischen Austauschwechselwirkung abhängig.

eine hysteresebedingte Dissipation beschrieben, bei der die Form und Größe der Hystereseschleife durch die magnetische Austauschwechselwirkung zwischen den interagierenden Spitzen- und Probenatomen modifiziert wird. Die dissipierte Energie unterscheidet sich somit für unterschiedliche relative Ausrichtungen zwischen den magnetischen Momenten von Spitze und Probe. Zur Vereinfachung des Modells wurden Relaxierungseffekte der Oberfläche vernachlässigt und es wurde eine Ausrichtung der magnetischen Momente angenommen, die senkrecht zur Oberfläche liegt.

Neben dem beschriebenen Mechanismus gibt es weitere Erklärungsansätze für einen dissipativen magnetischen Austauschkontrast. So kann durch die Wechselwirkung von präzedierenden Spins an Spitze und Probe eine Energiedissipation entstehen. Durch die magnetische Austauschwechselwirkung interagieren die beiden Spins miteinander und es kann zu Frequenzänderungen der Präzession kommen, die abhängig von der relativen Ausrichtung der beiden Spins sind. Über den Nickelatomen unterschiedlicher Spinausrich-

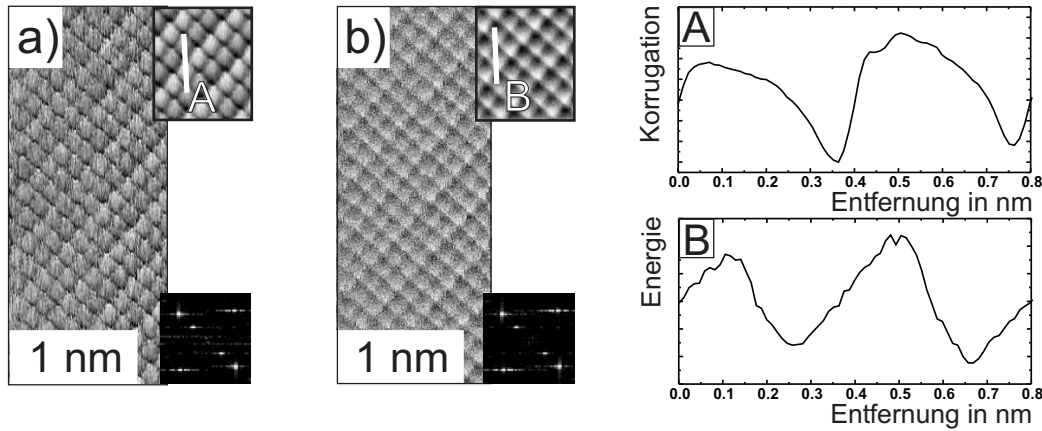
tung kommt es so zu einer ungleichen Änderung der Spin-Präzession und es entsteht eine Energiedissipation, die sensitiv auf die magnetische Austauschwechselwirkung ist.

Eine andere Möglichkeit betrifft die Anregung von Spinwellen (Magnonen) im Proben- oder Spitzenmaterial. Durch eine solche Anregung könnte ebenfalls Energie dissipiert werden. Allerdings ist der erwartete Energieübertrag klein, da die beteiligten Frequenzen sehr unterschiedlich sind. So liegt die Frequenz des Federbalkens in der Größenordnung von 100 kHz, wobei die Magnonen bei sehr viel höheren Frequenzen im THz-Bereich auftreten. In Relation zur Magnonenfrequenz ist die Bewegung des Federbalkens also quasistatisch und ein direkter Energieübertrag erscheint unwahrscheinlich. Um die genannten Erklärungsmodelle abschließend zu bewerten, ist eine weitere Analyse mittels theoretischer Simulationsrechnungen erforderlich. Da diese bislang nicht zur Verfügung stehen, können nur die genannten qualitativen Erklärungen gegeben werden.

### **5.2.5 Magnetischer Austauschkontrast auf den Nickel- und den Sauerstoffatomen**

Im folgenden Abschnitt werden Messergebnisse besprochen, die mit einer anderen Messsonde erzielt wurden als die bisher behandelten Bilder. Die verwendete Spitze zeigt dabei einige Auffälligkeiten, die zuvor nicht beobachtet wurden. Abbildung 5.8 zeigt ein Topographiebild (Bild a)) und das parallel dazu gemessene Dissipationsbild (Bild b)), die beide mit dieser Spitze aufgenommen wurden. In beiden Bildern ist die atomare Struktur mit einer zusätzlichen Supermodulation klar zu erkennen. In den dazugehörigen Fourierbildern ist die Supermodulation ebenfalls in Form zusätzlicher Maxima gut sichtbar. Die entsprechende Supermodulation wurde auch bei den Bildern beobachtet, die auf dem Rückweg der gezeigten Messungen entstanden, so dass eine oszillatorische Rauschquelle als Ursache für die gemessene Supermodulation ausscheidet (siehe auch Anhang B). Dies wird bestätigt durch eine testweise Rotation des Rasterbereiches, bei der ebenfalls eine Supermodulation gemessen wurde, wie sie für den magnetischen Austauschkontrast zu erwarten ist. In der rechten oberen Bildecke von Abbildung 5.8 wurden jeweils einige gemittelte magnetische Einheitszellen zusammengefügt, um die Supermodulation besser sichtbar zu machen und um eine qualitative Analyse zu erlauben (vergleiche dazu auch Anhang A.3). Die Quantifizierung der Kontraste wird im weiteren Verlauf des Kapitels vorgenommen. In der gemittelten Darstellung wird besonders deutlich, dass die einzelnen Atome im Topographiebild anders erscheinen als in den zuvor gezeigten Bildern. So ist



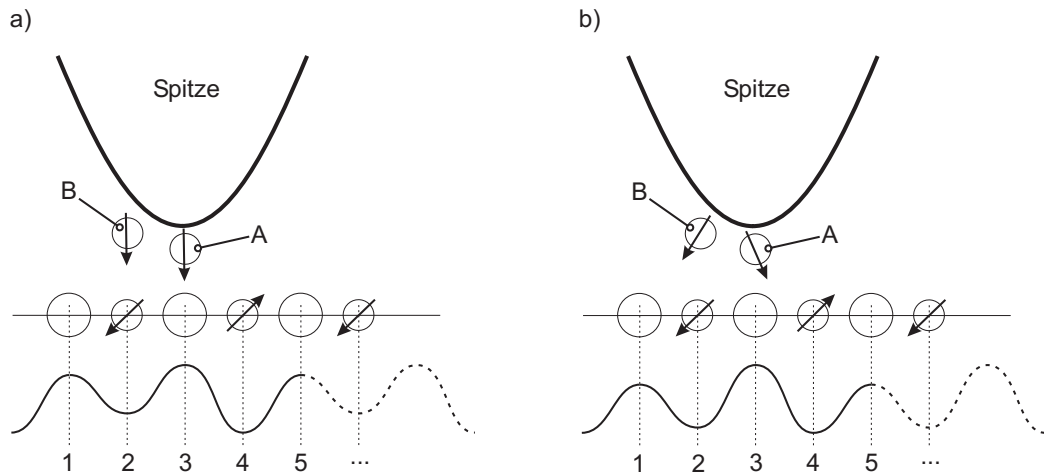


**Abbildung 5.8:** Abbildung der chemischen und der magnetischen Einheitszelle im Topographiekanal (Bild a) und im Dissipationsbild (Bild b)). In beiden Bildern ist klar die Supermodulation zu erkennen, die auf die magnetische Austauschwechselwirkung zurückzuführen ist. Auch die Fourierbilder zeigen die zu erwartenden Zusatzmaxima. In der rechten oberen Ecke der Bilder wurden gemittelte Einheitszellen zusammengefügt, um die Supermodulation besser sichtbar zu machen. Die Schnittlinien beziehen sich jeweils auf die gemittelte Einheitszelle und zeigen das qualitative Verhalten der Abbildung. Auffällig ist das leicht quadratische und abgeflachte Erscheinungsbild der Maxima in Bild a), beziehungsweise in der gezeigten Schnittlinie. Beide Schnittlinien zeigen eine Supermodulation sowohl auf den Maxima, als auch auf den Minima. Eine nähere Analyse erfolgt in Abbildung 5.10. Messparameter:  $f_0=158.891$  Hz,  $\Delta f=-20,5$  Hz,  $\gamma=-2,2 \cdot 10^{-15} \text{ N}\sqrt{\text{m}}$ ,  $A=\pm 6,3$  nm,  $c_z=34$  N/m,  $Q_0=54.700$ ,  $B=5$  T, Messsonde: SSS-NCL, (15+15) nm Fe/SiO.

die Form der Maxima nicht kreisrund, sondern leicht quadratisch verzerrt. Betrachtet man die Schnittlinie des Topographiekanal, so zeigen sich hier abgeflachte Maxima und schmale Minima. Dabei ist die Supermodulation nicht nur auf den atomaren Minima, sondern auch auf den Maxima zu sehen, die den Sauerstoffatomen zuzuweisen sind.

Es ist zu beachten, dass eine Supermodulation, auch wenn sie auf den Nickel- und den Sauerstoffatomen zugleich auftritt, nicht auf ein Spitzenartefakt zurückgeführt werden kann. Die Argumente, die in Kapitel 5.2.2 gegeben wurden, treffen auch hier zu. Der entscheidende Punkt ist, dass strukturell identische Atome unterschiedlich abgebildet werden, was mit einem strukturellen Spitzenartefakt realistischerweise nicht erklärt werden kann.

Die beobachtete Verzerrung der Atome ist dagegen eindeutig auf die Spitze zurückzuführen. Der beobachtete Kontrast könnte dabei zum Beispiel folgendermaßen erklärt werden. Das vorderste Spitzenatom verfügt nur über schwache Bindungen zu den anderen Spitzenatomen und ist daher innerhalb gewisser Grenzen innerhalb der  $xy$ -Ebene beweglich. Da oberhalb der Sauerstoffatome eine stärkere Wechselwirkung zwischen der Probe und dem



**Abbildung 5.9:** Erklärungsmodell für die Entstehung eines magnetischen Abbildungsfehlers. In a) und in b) sind beide Atome an der Spitze (A und B) an der Abbildung beteiligt. Es wird jeweils die Spitze oberhalb der NiO-Oberfläche gezeigt, wobei hier nur die oberste Atomlage skizziert wurde. Unten wird der Verlauf des Topographiesignals angezeigt. Während in a) die Spins der Atome A und B parallel zueinander und senkrecht zur Oberfläche ausgerichtet sind, findet man in b) eine andere Konfiguration vor. Unter der Annahme, dass eine ferromagnetische Austauschwechselwirkung zwischen der Spitze und den Probenatomen vorliegt, entstehen so die gezeigten Topographielinien (siehe Text). Insbesondere entsteht auch über den Sauerstoffatomen ein magnetischer Kontrast, der bei der Konfiguration in b) größer sein kann als auf den Nickelatomen.

vordersten Spitzenatom herrscht, wird das Spitzenatom bevorzugt von den Sauerstoffatomen angezogen. Nähert sich das Spitzenatom während der Rasterbewegung dem Sauerstoffatom, so wird es lateral in die Richtung des Sauerstoffatoms gezogen. Auch nach dem Überqueren des Sauerstoffatoms wird das Spitzenatom innerhalb einer bestimmten Entfernung weiter in die Richtung des bereits überquerten Sauerstoffatoms gezogen. Dadurch erhöht sich die Aufenthaltsdauer des Spitzenatoms oberhalb des Sauerstoffatoms und es entsteht die beobachtete, abgeflachte und quadratisch verzerrte Form der Atome.

Die zusätzliche Supermodulation auf den Sauerstoffatomen kann durch die folgenden Effekte erklärt werden. Es könnte über das Sauerstoffatom der Oberfläche eine Superaustauschwechselwirkung zwischen dem Fe-Atom an der Messspitze und dem Nickelatom in der zweiten Atomlage des NiO-Gitters stattfinden, die für den beobachteten Kontrast sorgen würde. Auch ein magnetisches Moment des Sauerstoffs könnte für den Kontrast auf den Sauerstoffatomen sorgen. So wurde beispielsweise in [63] ein magnetisches Moment von  $0,07 \mu_B$  für die Sauerstoffatome der NiO(001)-Oberfläche berechnet.

Es könnte sich auch um einen magnetischen Abbildungsfehler handeln. Ein Beispiel dafür wird in Abbildung 5.9 gegeben. Die Abbildung zeigt exemplarisch zwei mögliche Spitzenkonfigurationen, bei denen die Abbildung nicht allein durch das vorderste Spitzenatom A zustande kommt, sondern auch vom Atom B ein wesentlicher Beitrag geliefert wird. In a) sind die Atome A und B parallel zum von außen angelegten Feld ausgerichtet, d.h. senkrecht zur Probenoberfläche. Das Bild zeigt die Spitze an der Position 3 oberhalb der Oberfläche. An dieser Stelle wechselwirkt das vorderste Spitzenatom A mit dem Sauerstoffatom an der Oberfläche. Daraus resultiert eine starke attraktive Wechselwirkung, die als Erhebung im Topographiesignal umgesetzt wird. Aufgrund der schwächeren Wechselwirkungen über den Nickelatomen (Position 2 und 4) entstehen dort entsprechend die Minima im Topographiesignal. Durch die geringe vertikale Distanz zwischen Atom A und Atom B ist während der Abbildung des Sauerstoffatoms an der Position 3 auch eine magnetische Austauschwechselwirkung zwischen dem Atom B und dem Nickelatom bei 2 möglich, so dass ein zusätzlicher attraktiver Beitrag entsteht. Entsprechend entsteht an der Position 5 eine zusätzliche repulsive Kraft zwischen dem Nickelatom bei 4 und dem Atom B, so dass zwischen den beiden Sauerstoffatomen 3 und 5 ein Unterschied im Topographiesignal detektiert wird, der allein auf einen magnetischen Abbildungsfehler der Spitze zurückzuführen ist.

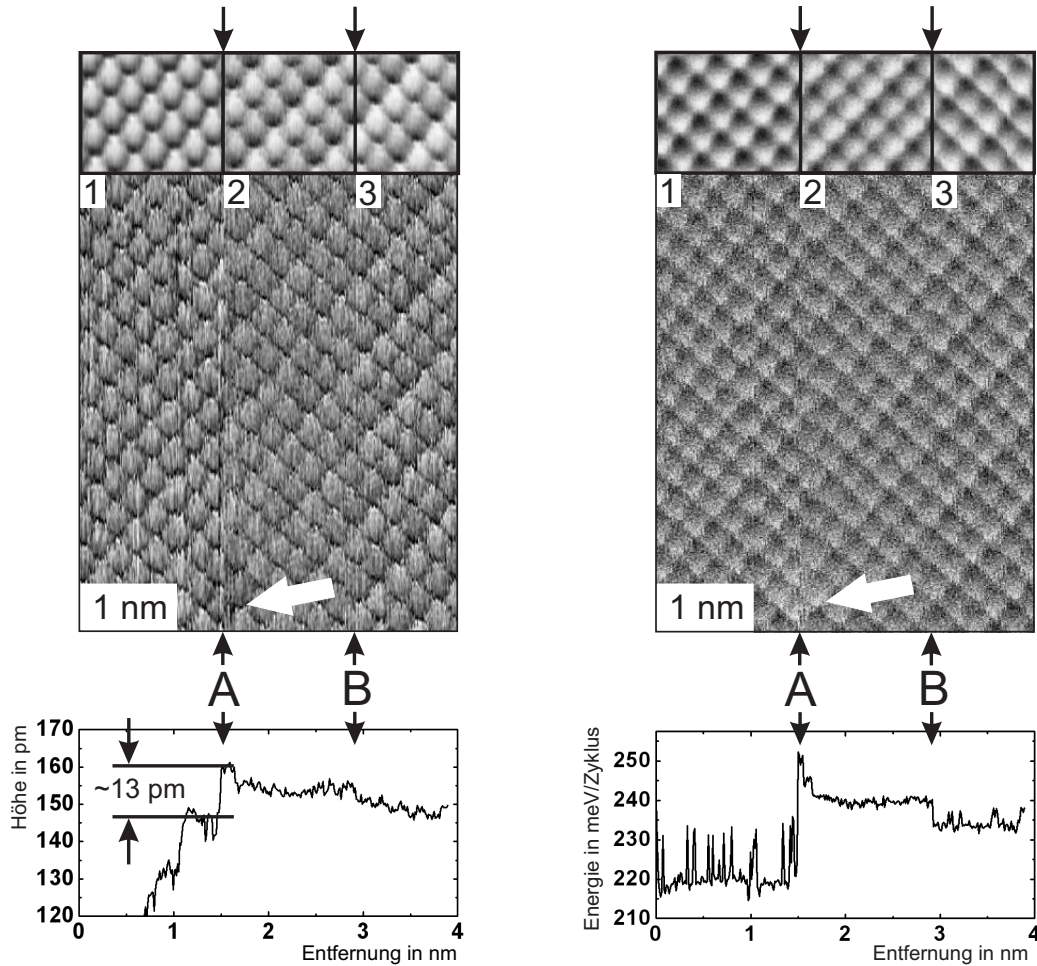
In manchen Fällen ist der gemessene magnetische Kontrast zwischen benachbarten Sauerstoffatomen etwa gleich groß oder sogar größer als der magnetische Kontrast auf benachbarten Nickelatomen (siehe Kapitel 5.2.7). Eine mögliche Erklärung für diese Besonderheit wird in Abbildung 5.9 b) gezeigt. Hier ist die Situation identisch zu der in a) gezeigten, allerdings sind die magnetischen Momente der vordersten Spitzenatome nicht vollständig senkrecht zur Probenoberfläche ausgerichtet und die Momente von Atom A und Atom B sind nicht parallel zueinander. Für eine nicht-ideale Ausrichtung der magnetischen Momente der Spitzenatome werden im folgenden Abschnitt 5.2.6 auch experimentelle Hinweise gefunden. Da der Spin des Atoms A hier annähernd senkrecht zu den Momenten der Nickelatome der Oberfläche steht, fällt der magnetische Kontrast zwischen den verschiedenen Nickelatomen (also zwischen 2 und 4) sehr gering aus. Dahingegen ist der magnetische Kontrast auf den Sauerstoffatomen deutlich stärker ausgeprägt, da hier das Atom B, welches annähernd parallel zu den Spins der Oberfläche orientiert ist, eine deutlich stärkere magnetische Austauschwechselwirkung erfährt als dies in Bild a) der Fall war. Auf diese Weise entsteht der gezeigte Verlauf des Topographiesignals. Mit dem geschilderten magnetischen Abbildungsfehler kann ein magnetischer Kontrast auf den Sauerstoffatomen erklärt werden. Die Supermodulation selbst basiert dabei aber in jedem Fall auf einer De-

tektion magnetischer Austauschkräfte zwischen Spitze und Probe und nicht etwa auf einem Spitzenartefakt. Allerdings kann nicht entschieden werden, ob der Kontrast zwischen benachbarten Sauerstoffreihen auf eine magnetische Austauschwechselwirkung zwischen dem vordersten Spitzenatom und den Sauerstoffatomen zurückgeht, oder ob es sich um eine Art magnetische Doppelspitze handelt, wie sie hier beschrieben wurde.

### 5.2.6 Spitzenwechsel in MAKM-Bildern

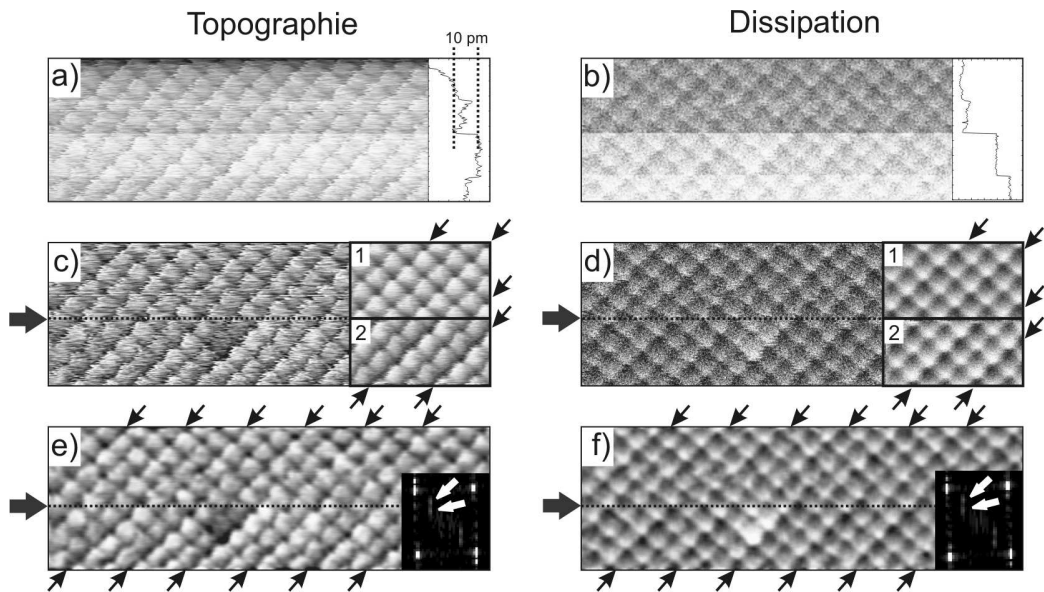
In Kapitel 4.6 wurde der Einfluss der Konfiguration der vordersten Spitzentome auf die Abbildung der Oberfläche besprochen. So kann es durch Spitzenwechsel zur Änderung der Abbildungseigenschaften einer Spitze kommen. In Abbildung 5.10 wird eine Messung gezeigt, in der auch der magnetische Austauschkontrast durch einen magnetischen Spitzenwechsel verändert wird. Dabei zeigt das linke Bild die Topographie, während das rechte Bild das Dissipationssignal wiedergibt, das parallel zur Topographie aufgenommen wurde. Beide Bilder wurden mit einem Linienabgleich bearbeitet, um die atomare Auflösung besser sichtbar zu machen (vgl. Anhang A.2). Dabei verläuft die langsame Rasterrichtung von rechts nach links. Betrachtet man das Topographiebild, so gibt es einen Bereich, der etwas dunkler erscheint als der Rest des Bildes und der mit einem weißen Pfeil markiert wurde. Im Dissipationssignal ist dieser Bereich als helle Erhebung im Bild zu erkennen. An dieser Stelle liegt vermutlich ein Punktdefekt unterhalb der obersten Atomlage vor, der zu einer leicht veränderten Darstellung der Oberfläche führt.

Die Bereiche 2 und 3 der Bilder wurden bereits in Abbildung 5.8 gezeigt und der beobachtete Kontrast wurde dort qualitativ besprochen. Unterhalb der beiden Bilder in Abbildung 5.10 sind die gemittelten Schnittlinien der Rohdatenbilder abgebildet, die im Fall des Dissipationssignals einige sprunghafte Änderungen zeigen. Diese können in Analogie zu der Betrachtung in Kapitel 4.6 auf Spitzenwechsel zurückgeführt werden. Beim Spitzenwechsel A ist auch im Topographiesignal eine sprunghafte Änderung um ca. 13 pm festzustellen. Der linke Bereich der Schnittlinie des Topographiesignals wird nicht vollständig angezeigt, da dieser Teil von einer externen Störung überlagert ist, die für eine starke Höhenmodulation sorgt. Mögliche Ursachen für solche Störungen werden in Anhang C beschrieben. Die hier diskutierten Spitzenwechsel zeichnen sich durch eine sprunghafte Signaländerung aus und können deshalb von den langsamen und kontinuierlichen Drifteffekten gut unterschieden werden. Ein weiterer Spitzenwechsel, der mit B bezeichnet ist, zeigt sich als sprunghafte Änderung im Dissipationssignal, während in der Topographieschnittlinie kaum eine Änderung auftritt. Um die Abbildungseigenschaften vor und nach den Spitzenwechseln vergleichen zu können, wurde



**Abbildung 5.10:** MAKM-Abbildung mit einer instabilen Spitze. Das linke Bild zeigt die Topographie, das rechte Bild den Dissipationskanal. Beide Bilder wurden mit einem Linienableich bearbeitet, wobei die unten abgebildeten Schnittlinien gemittelte Schnittlinien der Rohdaten darstellen (ähnlich wie in Abbildung 4.7 a)). Die langsame Rasterrichtung verläuft von rechts nach links. Die Spitzenwechsel bei A und B unterteilen das Bild in drei Bereiche. Für jeden Abschnitt wurden gemittelte Einheitszellen bestimmt, die im oberen Bereich des Bildes zu sehen sind. Während in Bereich 2 und 3 ein magnetischer Kontrast erkennbar ist, ist dieser im ersten Bereich fast vollständig verschwunden. Eine quantitative Auswertung der Signalkontraste in den einzelnen Bildbereichen findet sich in Kapitel 5.2.7. Ein Teil des Bildes (Bereich 2 und 3) wurde bereits in Abbildung 5.8 gezeigt. Messparameter:  $f_0=158.891$  Hz,  $\Delta f=-20,5$  Hz,  $\gamma=-2,2 \cdot 10^{-15} \text{N}\sqrt{\text{m}}$ ,  $A=\pm 6,3$  nm,  $c_z=34$  N/m,  $Q_0=54.700$ ,  $B=5$  T, Messsonde: SSS-NCL, (15+15) nm Fe/SiO.





**Abbildung 5.11:** Topographie- und Dissipationsbild mit einem Spitzenwechsel, der zu einer Umkehr des magnetischen Austauschkontrastes führt. a) und b) zeigen die Topographie- bzw. Dissipationsrohdaten. Bei c) und d) wurde ein Linienabgleich (vgl. Anhang A.2), bei e) und f) eine Tiefpassfilterung vorgenommen, um hochfrequentes Rauschen zu entfernen. Die Schnittlinien in a) und b) wurden über die volle Breite der Bilder gemittelt, so dass die atomare Korrugation nicht mehr sichtbar ist, aber die sprunghafte Signaländerung deutlich wird. Etwa mittig findet ein Spitzenwechsel statt, der in c)-f) durch eine gestrichelte Linie und einen Pfeil markiert wird. In den Kästen 1 und 2 sind die gemittelten Bilder oberhalb bzw. unterhalb des Spitzenwechsels dargestellt (siehe Anhang A.3). Die etwas dunkleren Atomreihen entlang der  $[110]$ -Richtung werden mit Pfeilen markiert. Durch den Spitzenwechsel werden Nickelreihen, die im unteren Bildbereich dunkel erscheinen, im oberen Bildbereich hell dargestellt und umgekehrt. Der Übergang äußert sich auch in einer Aufspaltung der Supermodulationsmaxima in den Fourierbildern in e) und f), denen der gesamte Bildbereich zu Grunde liegt. Die langsame Rasterrichtung verläuft von oben nach unten. Messparameter:  $f_0=158.891$  Hz,  $\Delta f=-20,5$  Hz,  $\gamma=-2,2 \cdot 10^{-15} \text{ N}\sqrt{\text{m}}$ ,  $A=\pm 6,3$  nm,  $c_z=34$  N/m,  $Q_0=54.700$ ,  $B=5$  T, Messsonde: SSS-NCL, (15+15) nm Fe/SiO.

das Bild in drei Bereiche aufgeteilt und für jeden Abschnitt eine eigene gemittelte Einheitszelle berechnet. Diese werden im oberen Teil des Bildes gezeigt. Daran ist gut erkennbar, dass an der Position A eine klare Kontraständerung auftritt. Während in den Bereichen 2 und 3 die charakteristische Supermodulation deutlich zu erkennen ist, ist der magnetische Kontrast im Bereich 1 stark zurückgegangen, wobei die chemische Einheitszelle nach wie vor abgebildet wird. Die magnetischen Abbildungseigenschaften der Spitze haben sich also deutlich verändert, wohingegen der chemische Kontrast nur leicht modifiziert wurde.

Ein weiterer Spitzenwechsel derselben Messsonde ist in Abbildung 5.11 dargestellt. Der gezeigte Bildausschnitt wurde auf dem Probengebiet, welches am unteren Rand in Abbildung 5.10 zu sehen ist, aufgenommen, was auch am oben besprochenen Punktdefekt zu erkennen ist, der hier ebenfalls abgebildet wird. Insbesondere die Rohdaten a) und b) mit den dazugehörigen, gemittelten Schnittlinien zeigen deutlich eine diskrete Änderung sowohl im Topographie- als auch im Dissipationssignal. Bei genauer Betrachtung des Bildes wird deutlich, dass mit dieser Änderung auch eine sprunghafte Änderung des magnetischen Austauschkontrastes im Bereich der gestrichelten Linie einhergeht. Zur Verdeutlichung sind die dunkleren Atomreihen entlang der [110]-Richtung mit Pfeilen markiert. Beispielsweise erscheint im unteren Bereich von Bild f) (z.B. neben dem Defekt) die Überstruktur relativ klar als Streifen von links unten nach rechts oben verlaufend. Oberhalb der gestrichelten Linie ändert sich der magnetische Austauschkontrast jedoch und die vormals dunklen Atomreihen erscheinen heller und umgekehrt. Im oberen Bildbereich markieren die Pfeile dementsprechend andere Reihen als unten<sup>†</sup>. Die Kontrastumkehr ist im Dissipationssignal etwas deutlicher, insbesondere in den gemittelten Darstellungen 1 und 2 und in Abbildung f).

Die gezeigten Spitzenwechsel in Abbildung 5.10 und 5.11 demonstrieren, dass das magnetische Moment am vordersten Spitzenatom offenbar trotz der Ausrichtung in einem externen Magnetfeld nicht stabil ist. Für die beobachtete Änderung des magnetischen Kontrastes kommen verschiedene Ursachen in Betracht, die im Folgenden besprochen werden.

- 1.) Durch Wechselwirkungen mit der Probe tritt eine Ummagnetisierung des gesamten Fe-Filmes an der Spitze auf.
- 2.) Am Spitzenende befindet sich ein Fe-Cluster, der nicht mit dem restlichen Fe-Film verbunden ist. Eine Ummagnetisierung des Clusters führt zur Kontraständerung.
- 3.) Nur die magnetischen Momente der vordersten Spitzenatome werden um einen Winkel  $< 180^\circ$  gedreht.
- 4.) Es tritt eine Kombination aus einer strukturellen und einer magnetischen Änderung am vordersten Spitzenatom auf.

zu 1.) Infolge der Wechselwirkungen zwischen der Probe und der Spitze könnte es am vordersten Spitzenende zu einer Domänenwandnukleation kommen, die zu einem Umklappen der gesamten Spitzenmagnetisierung führt.

---

<sup>†</sup>Die recht schwache Supermodulation lässt sich im oberen Bereich besser erkennen, wenn die Abbildung im flachen Winkel entlang der Pfeile betrachtet wird.

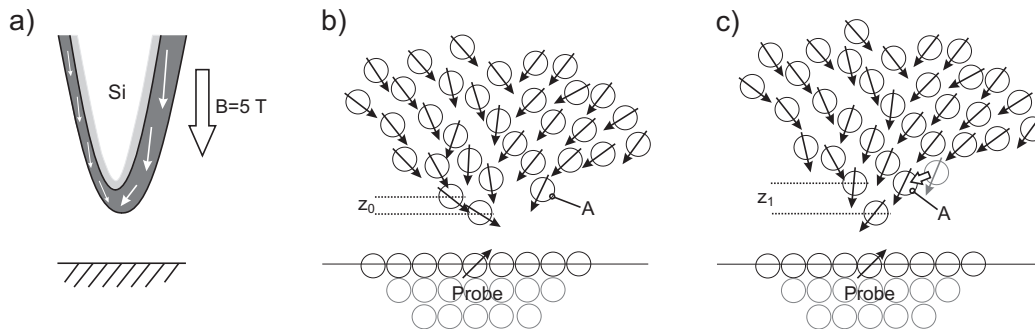


Dadurch würde auch das vorderste Spitzenatom seine Orientierung ändern und ein invertierter Kontrast wäre die Folge. Ein solcher Prozess erscheint sehr unwahrscheinlich zu sein, da die vergleichsweise große Zeeman-Energie überwunden werden müsste, die für die Ausrichtung des Fe-Filmes im Magnetfeld sorgt (siehe dazu auch Kapitel 1.1.1).

zu 2.) Unter Umständen könnte ein Fe-Cluster das vorderste Spitzenende bilden, dessen magnetisches Moment nur schwach an das Moment des Eisenfilmes auf den Flanken der Spitze angekoppelt ist. In Anbetracht der Schärfe der verwendeten Spitzen erscheint ein solches Szenario als denkbar. Die Rotation der Magnetisierung eines solchen Clusters ist dann mit deutlich weniger Energieaufwand verbunden als dies bei 1.) der Fall ist. Daher könnte es unter Umständen durch Wechselwirkungen mit der Probe zu einer Drehung der Magnetisierung eines solchen Clusters kommen, wodurch ein veränderter Austauschkontrast verursacht werden würde.

zu 3.) Da die magnetischen Momente der Nickelatome an der (001)-Oberfläche alle eine deutliche *in plane*-Komponente aufweisen (siehe Kapitel 4.1), kann eine leichte Rotation ( $< 180^\circ$ ) des Spins des vordersten Spitzenatoms bereits für deutliche Kontraständerungen beziehungsweise zu einer Inversion des Kontrastes führen.

zu 4.) Strukturelle Änderungen des vordersten Spitzenendes, wie sie in Kapitel 4.6 beschrieben wurden, können auch die Kopplung des magnetischen Momentes des vordersten Spitzenatoms zum Rest der Spitze beeinflussen, so dass ein veränderter Kontrast auftritt. Wie im Folgenden näher erläutert wird, sind alle Beobachtungen in Abbildung 5.11 mit einer solchen Kombination aus struktureller und magnetischer Umkonfiguration des Spitzenendes konsistent. Die zu Grunde liegenden Mechanismen können an Hand des schematischen Modells in Abbildung 5.12 verstanden werden. Dafür spielen die *in-plane*-Komponenten der Spins in Spitze und Probe eine wichtige Rolle. In Abbildung 5.12 b) und c) wird das äußerste Ende der Spitze aus a) oberhalb einer Probenoberfläche dargestellt und die Abbildung eines einzelnen magnetischen Atoms an der Oberfläche untersucht. Dabei weichen die magnetischen Momente der Atome an der Spitze von der in Abbildung 2.2 b) gezeigten Ausrichtung ab. Obwohl ein Magnetfeld angelegt wurde, dessen Flussdichte die Sättigungsmagnetisierung von Eisen übersteigt (vgl. Tabelle 5.1), wurde demnach keine vollständige *out of plane*-Orientierung am Spitzenende erreicht. Dieser Effekt kann mit der ungeordneten Anordnung der Eisenatome an der Spitze erklärt werden. Diese entspricht nicht der Ordnung im Volumenkristall, weshalb die in Tabelle 5.1 angeführten Sättigungsmagnetisierungen aufgrund der veränderten magnetokristallinen Anisotropie für die



**Abbildung 5.12:** Modell für die Kontrastinversion des magnetischen Austauschkontrastes, basierend auf einer strukturellen und gleichzeitig magnetischen Änderung der Spitze. In a) ist eine ferromagnetisch beschichtete Spitze oberhalb einer Oberfläche dargestellt. Hier wird angenommen, dass sich der Film trotz eines von außen angelegten Magnetfeldes nicht vollständig parallel zum äußeren Magnetfeld ausrichtet. In b) und c) wird das Spitzendenende vergrößert dargestellt, so dass jeweils die vordersten Atome der Spitze oberhalb der Oberfläche sichtbar werden. Aus Gründen der besseren Darstellung wird hier lediglich ein einzelnes Probenatom mit einem Spin dargestellt. Das magnetische Moment des Probenatoms weist sowohl Komponenten senkrecht als auch parallel zur (001)-Ebene auf. Während im Fall b) die Spins am vordersten Spitzendenende und am Probenatom beide nach rechts zeigen, stellt sich durch eine strukturelle Umordnung der Spitze in c) eine annähernd antiparallele Ausrichtung der Spins ein. Das Atom A ist dabei nach links gesprungen und hat das magnetische Moment an der Spitze gedreht. Eine derartige Umkonfiguration der Atome und Spins würde zu einer Kontrastinversion des magnetischen Austauschkontrastes führen, wie sie in Abbildung 5.11 beobachtet wird.

hier vorliegende Geometrie nur einen groben Anhaltswert liefern können. Des Weiteren wird eine Ausrichtung der magnetischen Momente, wie sie in Abbildung 5.12 gezeigt wird, durch die Formanisotropie begünstigt (vgl. Kapitel 1.1.1). So erwartet man im Nullfeld eine Konfiguration, wie sie in Abbildung 2.2 a) gezeigt wird. Ist das äußere Magnetfeld zu klein, so wird die dort gezeigte Ausrichtung zumindestens teilweise beibehalten und es kann zu einer Konfiguration der Spins am vorderen Spitzendenende kommen, wie sie in Abbildung 5.12 b) zu sehen ist.

Die Kontrastinversion erklärt sich anhand von Abbildung 5.12 b) und c) wie folgt. Am vordersten Spitzendenende kann es während einer Messung zu Relaxationseffekten kommen. Dadurch ändert sich die Potentiallandschaft der Spitze und das Atom A kann in eine neue Position springen, wie in Abbildung c) gezeigt. Liegt zwischen den in b) und c) gezeigten beiden Positionen des Atoms A nur eine kleine Potentialbarriere, ist auch ein reversibles Schalten möglich. Es ist auffällig, dass bei den Abbildungen 5.10 und 5.11 der Kontrastwechsel in der Nähe des Punktdefektes erfolgt. Möglicherweise wird die Umkonfiguration dadurch initiiert.

Beim Übergang von b) nach c) wird die magnetische Kopplung des vordersten Spitzenatoms mit den benachbarten Atomen geändert und die Ausrichtung des magnetischen Momentes ändert sich wie skizziert. Das magnetische Moment hat nach wie vor eine deutliche vertikale Komponente, jedoch liegt jetzt eine annähernd antiparallele Ausrichtung zwischen dem Probenatom und dem vordersten Spitzenatom vor. Der Betrag des magnetischen Kontrastes wird im Vergleich zu b) also stärker, allerdings ändert sich das Vorzeichen der magnetischen Austauschwechselwirkung. Durch diese Umkonfiguration der Spitze lässt sich die Kontrastinversion des magnetischen Austauschkontrastes in Abbildung 5.11 erklären. Für eine Beschreibung der Kontraständerung in Abbildung 5.10 muss das Modell nur leicht verändert werden.

Zusätzlich zur magnetischen Ausrichtung wird auch die Struktur der Spitze verändert. Während bei b) der Abstand  $z_0$  zwischen den beiden benachbarten Atomen am Spitzenende liegt, hat sich dieser Abstand bei b) auf  $z_1$  vergrößert. Da das vorderste Spitzenatom nun weiter hervorragt, wird die Probe im Fall c) durch den Topographieregelkreis leicht zurückgezogen. Auf diese Weise kann erklärt werden, dass in Abbildung 5.10 und in Abbildung 5.11 trotz eines scheinbar größeren Spitze-Proben-Abstandes ein höherer magnetischer Austauschkontrast erzielt wird. Der chemische Kontrast ändert sich durch die Umkonfiguration der Spitze kaum, da die generelle Spitzenform erhalten bleibt und ein wesentlicher Teil des Kontrastes auf atomarer Skala durch die Wechselwirkungen des vordersten Spitzenatoms mit der Probe entsteht.

Auch auf die dissipierte Energie hat die strukturelle Umbildung der Spitze einen großen Einfluss. Entsteht die Dissipation durch hysteresebedingte Prozesse auf atomarer Skala (vgl. Kapitel 1.2.7 und Abbildung 5.7), so hängt sie entscheidend von den Bindungen der vordersten Spitzenatome ab. Werden diese verändert, so ändert sich die Potentiallandschaft für das vorderste Spitzenatom und damit auch die Dissipationsenergie. Damit ist auch beim Übergang von Fall b) zu Fall c) eine deutliche Änderung der Dissipationsenergie zu erwarten, wie sie auch experimentell beobachtet wird (siehe Abbildung 5.11).

Das gezeigte Modell erklärt also qualitativ die Vorgänge, die zu den beobachteten Spitzenwechseln führen können. Für eine genauere Beschreibung sind theoretische Simulationsrechnungen erforderlich, die allerdings bislang nicht durchgeführt wurden.

### 5.2.7 Vergleich der gemessenen Kontraste mit verschiedenen Fe-beschichteten Messsonden

Da eine Reihe von MAKM-Bildern vorliegen, kann der Kontrast für verschiedene Messsonden und -spitzen gemessen und verglichen werden. In Tabelle 5.2 sind die Kontraste für eine Auswahl von Bildern mit MAKM-Kontrast aufgeführt. Der chemische Kontrast  $K_{\text{chem}}$  liegt bei allen bisherigen MAKM-Messungen bei Werten  $\leq 12,5$  pm und damit unterhalb der typischen Korugationen von ca. 25 pm wie sie beispielsweise in Abbildung 4.5 gemessen wurden. Das deutet darauf hin, dass ein sehr kleiner Spitze-Probe-Abstand, wie er für die Detektion der magnetischen Austauschkraft erforderlich ist, bei Spitzen, die einen großen chemischen Kontrast zeigen, aufgrund der großen chemischen Wechselwirkung nur schwer erreicht werden kann. Möglicherwei-

Sonde	Abb.	Bereich	Kanal	$K_{\text{chem}}$	$K_{\text{mag,Ni}}$	$K_{\text{mag,O}}$
A	5.1 b)	--	$z(x, y)$	4,5 pm	1,5 pm	--
	5.5 b)	--	$a_{\text{exc}}(x, y)$	38,3 meV	13,3 meV	6,2 meV
B	5.10	1	$z(x, y)$	11,7 pm	0,6 pm	0,6 pm
	5.10	2	$z(x, y)$	7,7 pm	0,9 pm	2,1 pm
	5.10	3	$z(x, y)$	12,5 pm	2,6 pm	3,1 pm
	5.10	1	$a_{\text{exc}}(x, y)$	33,1 meV	2,1 meV	0,8 meV
	5.10	2	$a_{\text{exc}}(x, y)$	19,4 meV	3,4 meV	3,1 meV
	5.10	3	$a_{\text{exc}}(x, y)$	34,8 meV	6,6 meV	6,0 meV
C	--	--	$z(x, y)$	3,3 pm	0,4 pm	< 0,2 pm
	--	--	$a_{\text{exc}}(x, y)$	43,4 meV	4,4 meV	< 1,1 meV

**Tabelle 5.2:** Vergleichstabelle für chemische und magnetische Kontraste bei verschiedenen MAKM-Messungen. Für die Tabelle wurden auch Bilder ausgewertet, die in der vorliegenden Arbeit nicht gezeigt werden. Es ist zu beachten, dass sich die Spitze einer Messsonde infolge von Spitzenwechseln verändern kann, so dass mit ein und derselben Messsonde unterschiedliche Kontraste erzielt werden. Bei Bildern mit Spitzenwechseln wird daher der ausgewertete Bildbereich angegeben (siehe dazu die dazugehörigen Abbildungen). Der chemische Kontrast  $K_{\text{chem}}$  wurde nach Glg. 5.3 berechnet. Außerdem wurde auch der magnetische Kontrast  $K_{\text{mag,Ni}}$  auf dem Nickel  $K_{\text{mag,Ni}} = |\text{Ni}\downarrow - \text{Ni}\uparrow|$  und auf dem Sauerstoff  $K_{\text{mag,O}} = |\text{O}\downarrow - \text{O}\uparrow|$  gemessen. Der Austauschkontrast auf den Nickelatomen liegt bei Werten  $\leq 2,6$  pm. Der chemische Kontrast liegt bei Messsonde B im Mittel bei ca. 10 pm, während Sonde A und vor allem C einen deutlich schwächeren Kontrast zeigen. Insbesondere bei der Messsonde B gibt es auch auf den Sauerstoffatomen einen deutlichen Kontrastunterschied, der zum Teil sogar stärker ist als auf den Nickelatomen. Die Dissipationsenergie wird in meV/Schwingungszyklus angegeben. Alle Werte wurden in den gemittelten Einheitszellen gemessen (siehe Kapitel 5.2.3 bzw. Anhang A.3).

se werden solche Spitzen bereits vor dem Erreichen des Bereichs, in dem die magnetische Austauschkraft wirkt, durch die starken chemischen Wechselwirkungen verformt oder gar zerstört, so dass damit keine erfolgreichen MAKM-Experimente möglich sind.

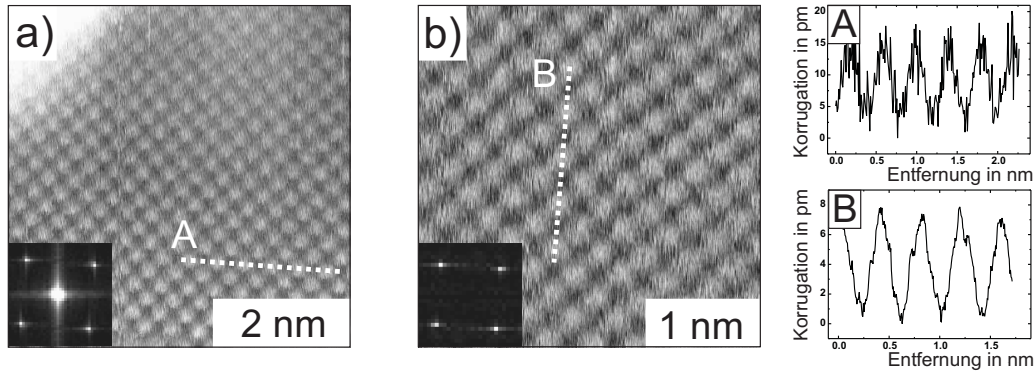
In allen MAKM-Messungen ist eine atomare Auflösung mit einer Supermodulation auch im Dissipationskanal zu erkennen. Dabei liegt der chemische Kontrast  $K_{\text{chem}}$  zwischen ca. 20 meV/Zyklus und etwa 43 meV/Zyklus. Es wurde bereits in Kapitel 1.2.7 beschrieben, dass die dissipierte Energie stark vom Spitze-Probe-Abstand abhängig ist. Da ein atomarer Kontrast im Dissipationssignal auftritt, kann also von einem kleinen Spitze-Probe-Abstand ausgegangen werden, wie er für MAKM-Messungen auf NiO(001) wegen der stark lokalisierten, spintragenden  $d$ -Elektronen auch erwartet wird.

Während bei Messsonde A und C keine messbare Supermodulation im  $z(x, y)$ -Kanal auf den verschiedenen Sauerstoffplätzen auftritt, zeigt die in den vergangenen Abschnitten diskutierte Messsonde B eine deutliche Supermodulation auf den Sauerstoffatomen. Teilweise liegt dabei die Modulation auf den Sauerstoffatomen in derselben Größenordnung wie die Modulation auf den Nickelatomen. Mögliche Erklärungen dafür wurden bereits in Kapitel 5.2.5 angeführt.

### 5.3 Messungen auf NiO(001) mit Ni-beschichteten Spitzen

Es ist zu erwarten, dass der erzielbare magnetische Austauschkontrast durch geeignete Wahl des Spitzen- und Probenmaterials optimiert werden kann. So wurden versuchsweise für die Messungen auf NiO auch Spitzen verwendet, die mit Nickel beschichtet waren. In Kapitel 5.2.5 wurde bereits gezeigt, dass mit manchen Spitzen auch auf benachbarten Sauerstoffreihen eine Supermodulation beobachtet wird. Eine mögliche Erklärung dafür ist der Superaustausch als kontrastbildender Mechanismus. Durch die Verwendung von Nickel als Spitzenmaterial könnte die Superaustauschwechselwirkung über den Sauerstoffatomen verstärkt werden, so dass dadurch ein deutlicherer Kontrast zu erwarten wäre.

Für die Beschichtung der Messsonden wurde Nickel aus zwei unterschiedlichen Winkeln in einer Dicke von typischerweise (15+15) nm auf die Spitze aufgedampft. Das generelle Abbildungsverhalten dieser Spitzen ist sehr ähnlich wie bei den eisenbeschichteten Spitzen. In Abbildung 5.13 werden zwei Topographiebilder zusammen mit den dazugehörigen Fourierspektren gezeigt.



**Abbildung 5.13:** Atomar aufgelöste Abbildungen der NiO-Oberfläche, gemessen mit verschiedenen Ni-Spitzen. Die Schnittlinien zeigen Korrigationen von ca. 12 pm (A) bzw.  $\approx 7$  pm (B). In den gezeigten Bildern ist zwar die atomare Auflösung klar erkennbar, allerdings ist weder im Bild noch im Fourierspektrum eine Supermodulation zu sehen. Bild b) wurde ohne vorherigen Spitzenwechsel aufgenommen, so dass sich mit großer Sicherheit Nickel am vordersten Spitzenende befindet. In Bild a) ist links oben ein heller Kontrast zu erkennen, der auf ein Adsorbat zurückgeht. Messparameter: a)  $f_0=159.208$  Hz,  $\Delta f=-13,7$  Hz,  $\gamma=-3,6\cdot 10^{-16}\text{N}\sqrt{\text{m}}$ ,  $A=\pm 2,5$  nm,  $c_z=34$  N/m,  $Q_0=119.500$ ,  $B=1$  T, Messsonde: SSS-NCL, (15+15) nm Ni/SiO, b)  $f_0=158.143$  Hz,  $\Delta f=-320$  Hz,  $\gamma=-8,5\cdot 10^{-15}\text{N}\sqrt{\text{m}}$ ,  $A=\pm 2,5$  nm,  $c_z=33$  N/m,  $Q_0=19.300$ ,  $B=1$  T, Messsonde: SSS-NCL, (15+15) nm Ni/SiO.

In beiden Bildern und den dazugehörigen Fourierspektren ist keine Supermodulation zu sehen. Auch in zahlreichen weiteren Messungen wurde kein Anzeichen für die erfolgreiche Detektion der magnetischen Austauschwechselwirkung gefunden. Die gemessenen Korrigationen in Abbildung 5.13 sind ca. 12 pm (A) bzw. etwa 7 pm (B). Bei allen Messungen mit nickelbeschichteten Messspitzen lagen die Korrigationen in diesem Bereich. Maximalkorrigationen von über 20 pm, wie sie bei Verwendung von eisenbeschichteten Spitzen häufig beobachtet wurden, konnten mit nickelbeschichteten Spitzen in keinem Fall erreicht werden. Dieses Verhalten wurde in [70] ebenfalls beobachtet. Bei b) wurde vor der Abbildung keinerlei Spitzenwechsel detektiert, so dass mit großer Sicherheit davon ausgegangen werden kann, dass es sich beim vordersten Spitzenatom um ein Nickelatom handelt. Neben der topographischen Abbildung der Oberfläche wurden auch  $\Delta f(z)$ -Spektroskopiefelder mit nickelbeschichteten Spitzen aufgenommen, die in Kapitel 6 behandelt werden. In diesen Messungen kann ebenfalls keine Supermodulation nachgewiesen werden.

Für das Fehlen eines magnetischen Kontrastes in den Messungen kann es verschiedene Gründe geben. Zum einen ist es möglich, dass das äußere Magnetfeld mit einer magnetischen Flussdichte von 1 T zu schwach war, um eine



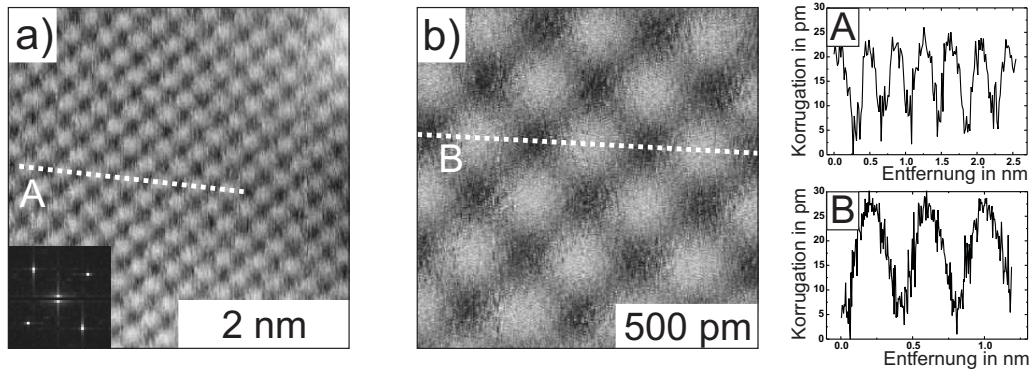
ausreichende Ausrichtung des magnetischen Momentes des vordersten Spitzenatoms in  $z$ -Richtung zu erzielen. In Kapitel 5.2.6 wurde gezeigt, dass bei eisenbeschichteten Spitzen selbst bei einem Magnetfeld, das deutlich größer ist als die Sättigungsmagnetisierung des Volumenmaterials, offenbar nicht in jedem Fall eine vollständige Ausrichtung des vordersten Spitzenatoms erreicht wird. Da die Messungen mit nickelbeschichteten Spitzen chronologisch gesehen vor den Messungen mit eisenbeschichteten Spitzen durchgeführt wurden, war zum Zeitpunkt der hier diskutierten Messungen die große Diskrepanz zwischen der Sättigungsmagnetisierung des Volumenmaterials und der Flussdichte, die zur vollständigen Ausrichtung einer beschichteten Messspitze erforderlich ist, nicht klar. Daher wurde hier eine magnetische Flussdichte von 1 T gewählt, die zwar die Sättigungsmagnetisierung des Volumenmaterials Ni mit  $M_{\text{Sat}}(\text{Ni})=0.49$  T (vgl. Tabelle 5.1) deutlich übersteigt, allerdings unter Umständen keine ausreichende Ausrichtung am vordersten Spitzeneinde gewährleisten kann. Für weitere Experimente erscheint eine Erhöhung der magnetischen Flussdichte aus den oben genannten Gründen als sinnvoll.

Eine andere Ursache könnte im kleineren magnetischen Moment des Nickels im Vergleich zum Eisen liegen. Ein Vergleich in Tabelle 5.1 zeigt, dass mit  $m_{\text{s}}(\text{Fe})=2,22 \mu_{\text{B}}$  und  $m_{\text{s}}(\text{Ni})=0,61 \mu_{\text{B}}$  beim Nickel ein deutlich kleineres magnetisches Moment vorliegt als beim Eisen. Damit ist auch bei einer perfekt (anti)parallelen Ausrichtung der magnetischen Momente der Probe und der Spitze zueinander eine deutlich schwächere magnetische Austauschwechselwirkung zu erwarten. Möglicherweise liegen die erzielbaren Signalstärken damit unterhalb des Rauschniveaus der Messapparatur, so dass selbst unter idealen Bedingungen eine magnetische Austauschwechselwirkung mit nickelbeschichteten Messspitzen nicht nachweisbar ist.

## 5.4 Abbildung von NiO(001) mit Gd-beschichteten Spitzen

Ein weiterer Ansatz zur Vergrößerung des magnetischen Austauschkontrastes ist die Verwendung eines Spitzenmaterials mit einem besonders hohen magnetischen Moment. Gadolinium bietet sich als Material für die Spitzenbeschichtung an, da das magnetische Spinmoment bei  $m_{\text{s}}=7,1 \mu_{\text{B}}$  liegt (vgl. Tabelle 5.1). Das hohe Moment liegt in der halb besetzten  $4f$ -Schale begründet, die über sieben ungepaarte Elektronen verfügt. Als Seltenerdmetall sorgt beim Gadolinium eine RKKY-Wechselwirkung für eine ferromagnetische Ordnung unterhalb der Curietemperatur von  $T_{\text{Curie}}=292$  K.





**Abbildung 5.14:** Atomar aufgelöste Abbildungen der NiO-Oberfläche, gemessen mit einer Gd-Spitze. Die Schnittlinien zeigen Korrugationen von ca. 13 pm (A) bzw. etwa 21 pm (B). Beide Bilder zeigen zwar atomare Auflösung, allerdings keine Supermodulation, was auch im gezeigten Fourierbild deutlich wird. In beiden Bildern wurden schwache periodische Störungen mittels einer Fourierfilterung entfernt. Messparameter:  $f_0=159.168$  Hz,  $A=\pm 8,0$  nm,  $c_z=34$  N/m,  $Q_0=1.800$ ,  $B=3$  T, Messsonde: SSS-NCL, (15+15) nm Gd/SiO, a)  $\Delta f=-35,0$  Hz,  $\gamma=-5,33\cdot 10^{-15}$  N $\sqrt{\text{m}}$ , b)  $\Delta f=-35,1$  Hz,  $\gamma=-5,34\cdot 10^{-15}$  N $\sqrt{\text{m}}$ .

Für die Beschichtung der Messsonden mit Gadolinium wurde ein Verdampfer verwendet, der bereits in [40] beschrieben wurde. Die Präparation erfolgte *in situ* und die Messsonden wurden direkt nach dem Bedampfen in das Tieftemperaturmikroskop transferiert, um die Kontamination durch Adsorbate so gering wie möglich zu halten.

Bei der Messung im Magnetfeld verhielten sich die verwendeten Messsonden problematischer als andere mit Nickel oder Eisen beschichtete Sonden. So zeigten die Messsonden vergleichsweise stark gedämpfte Schwingungen, was sich in zum Teil sehr kleinen Güten im Bereich  $Q_0 < 10.000$  und sehr hohen Dissipationsenergien zeigte. Dadurch wurde die Anregung der Oszillation des Federbalkens erschwert, so dass die maximal erreichbare Amplitude deutlich limitiert war.

Obwohl eine kleine Güte zur Herabsetzung der Sensitivität führt und hohe Dissipationsenergien zu Regelungsproblemen führen können, da der verwendete Amplitudenregelkreis nicht für diese Bedingungen optimiert ist, war auch mit Gd-beschichteten Spitzen eine atomar aufgelöste Abbildung der Oberfläche möglich. In Abbildung 5.14 sind zwei atomar aufgelöste Bilder der NiO(001)-Oberfläche zu sehen, die beide mit einer Gd-beschichteten Spitze aufgenommen wurden. Die gemessenen Korrugationen liegen bei Bild a) bei ca. 13 pm und bei b) bei etwa 21 pm. Wie in allen anderen Bildern, die mit Gd-beschichteten Spitzen gemessen wurden, kann auch hier keine Supermo-

dulation festgestellt werden. Auch das Fourierbild zeigt keine Zusatzmaxima, die auf die Detektion der magnetischen Austauschkraft zurückzuführen wären.

Aufgrund der relativ geringen Anzahl der bislang durchgeführten Messungen mit Gd-beschichteten Messspitzen kann kein abschließendes Urteil über die Eignung solcher Spitzen gefällt werden. Ähnlich wie bei den Messungen mit nickelbeschichteten Spitzen könnte das relativ geringe Magnetfeld mit einer Flussdichte von 3 T für den fehlenden Kontrast verantwortlich sein. In Anbetracht der starken Magnetfeldabhängigkeit der Schwingungseigenschaften der gadoliniumbeschichteten Spitzen ist es jedoch fraglich, ob eine Erhöhung der magnetischen Flussdichte für künftige Messungen ohne weiteres möglich ist. Es ist ebenfalls nicht auszuschließen, dass die Beschichtung mit Gd für ein MAKM-Experiment ungeeignet ist, da die spintragenden  $4f$ -Elektronen stark lokalisiert sind und somit ein direkter Austausch zwischen dem Gd-Atom an der Spitze und den Nickelatomen nur schwer zustande kommen kann.

## 5.5 Untersuchung der MnO(001)-Oberfläche

Für weitere Untersuchungen der magnetischen Austauschkraft bietet sich die MnO(001)-Oberfläche an. Die Manganatome weisen ein größeres magnetisches Moment auf als die Nickelatome im NiO, so dass dieses Material einen stärkeren magnetischen Austauschkontrast verspricht. Diesen Vorteilen stehen jedoch einige Nachteile in der Handhabung gegenüber, wie sie in den Kapiteln 5.5.2 und 5.5.3 beschrieben werden. Im nun folgenden Abschnitt werden zunächst die Charakteristika von MnO behandelt.

### 5.5.1 Eigenschaften von Manganoxid

MnO weist in vielen Bereichen ein ähnliches Verhalten auf wie NiO. So handelt es sich auch beim MnO um einen antiferromagnetischen Isolator, bei dem die Mangan- und Sauerstoffatome in einer NaCl-Struktur angeordnet sind, wobei die Gitterkonstante 444,5 pm [91] beträgt. Die Bandlücke ist etwas kleiner als beim NiO und liegt bei ca. 3,6 eV.

Im Gegensatz zum NiO liegt die Ordnungstemperatur  $T_{\text{Néel}}$  deutlich unterhalb der Raumtemperatur mit  $T_{\text{Néel}}=118$  K [99]. Untersuchungen der magnetischen Struktur sind bei diesem Material also nur bei tiefen Temperaturen möglich. Die magnetischen Momente im MnO-Kristall sind antiferromagnetisch geordnet, wobei die Anordnung der Spins wie beim NiO einer AF<sub>2</sub>-Ordnung entspricht. Damit sind die magnetischen Momente der

Manganatome ähnlich wie die Nickelatome im NiO innerhalb der (111)-Ebene ferromagnetisch geordnet, während benachbarte (111)-Ebenen antiferromagnetisch gekoppelt sind. An der (001)-Oberfläche findet man Reihen gleichartig geordneter Manganspins entlang der [110]-Richtungen (vgl. Abbildung 4.1). Durch die magnetische Austauschwechselwirkung zwischen benachbarten (111)-Ebenen kommt es zu Magnetostriktion und es entsteht eine leichte rhomboedrische Verzerrung des MnO-Kristalls. Der entstandene Winkel zwischen den Achsen des Gitters beträgt  $90,62^\circ$  [91]. Bei tiefen Temperaturen resultiert daraus ein Abstand zwischen zwei nächsten Mn-Nachbarn von 331,4 pm für parallel ausgerichtete Momente und 331,1 pm für eine antiparallele Ausrichtung [100]. Diese Verzerrungen sind also sehr klein und können bei der Messung mit einem Rasterkraftmikroskop vernachlässigt werden.

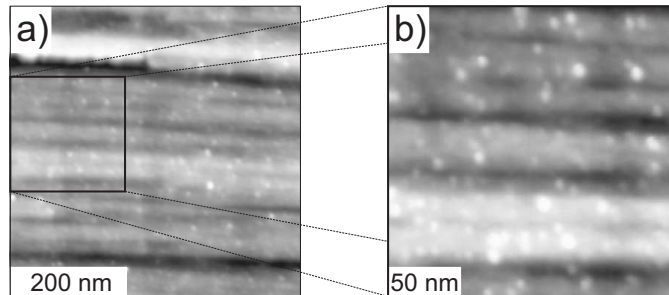
Ein wesentlicher Punkt, der für die Untersuchung von MnO spricht, ergibt sich aus der elektronischen Besetzung der Mangan- und Sauerstoffatome. Die Elektronenkonfiguration für Mangan ist  $[\text{Ar}] 3d^5 4s^2$  und für Sauerstoff  $[\text{He}] 2s^2 2p^4$ . Das  $d$ -Orbital des Manganatoms ist also mit fünf ungepaarten Elektronen besetzt. Daraus resultiert für MnO ein deutlich höheres magnetisches Spinnmoment als beim NiO. Für MnO liegen die Literaturwerte zwischen  $m_s=4,58 \mu_B$  und  $4,79 \mu_B$  während beim NiO Werte zwischen  $m_s=1,77 \mu_B$  und  $1,9 \mu_B$  angegeben werden [91]. Damit ist bei der Durchführung eines MAKM-Experimentes beim MnO mit einem deutlich höheren magnetischen Kontrast zu rechnen als beim NiO.

### 5.5.2 Präparation der MnO-Proben

Da Manganoxid ähnliche Eigenschaften aufweist wie Nickeloxid, orientiert sich die Probenpräparation an der im vorherigen Abschnitt geschilderten Prozedur. Wie beim NiO wurden quaderförmige Einkristalle mit einer Grundfläche von  $2 \times 2 \text{ mm}^2$  verwendet [95]. Zur Befestigung der Proben auf einem Probenhalter wurde auch hier versuchsweise das bei den NiO-Proben verwendete Lötverfahren angewendet (vgl. Kapitel 4.2). Die Haftung des Lots am MnO ist allerdings deutlich schwächer als beim NiO und es ist damit keine dauerhafte und belastbare Verbindung des Kristalls mit dem Probenhalter möglich, so dass das Verfahren für MnO-Kristalle unbrauchbar ist. Aus diesem Grund wurden die Proben mit einem UHV-tauglichen Klebstoff<sup>†</sup> auf den Probenhalter aufgeklebt. Um eine leitfähige Verbindung zum Probenhalter herzustellen, wurde eine Kupferbeschichtung aufgedampft. Nach dem

---

<sup>†</sup>Hier wurde Epotek H77, ein nicht-leitfähiger Zweikomponentenklebstoff auf Epoxidbasis im Vertrieb der Firma Polytec, verwendet.



**Abbildung 5.15:** Topographiebilder der MnO(001)-Oberfläche, aufgenommen ca. 24 h nach dem Spalten. Die Oberfläche zeigt eine Vielzahl von hohen Stufen mit Stufenhöhen im Nanometerbereich. Auch die Adsorbatdichte ist deutlich größer als bei typischen NiO-Spaltflächen. Daraus kann geschlossen werden, dass beim Spalten eine Vielzahl von Defekten auf der Oberfläche entstehen, die bevorzugt von Adsorbaten belegt werden. Messparameter:  $f_0=160.395$  Hz,  $A=\pm 6,3$  nm,  $c_z=34$  N/m,  $Q_0=33.400$ ,  $B=5$  T, a)  $\Delta f=-1,0$  Hz,  $\gamma=-1,1\cdot 10^{-16}$  N $\sqrt{\text{m}}$ , b)  $\Delta f=-2,0$  Hz,  $\gamma=-2,1\cdot 10^{-16}$  N $\sqrt{\text{m}}$ , Messsonde: SSS-NCL, (15+15) nm Fe/SiO.

Einschleusen einer Probe wurde diese typischerweise für einige Stunden bei einer Temperatur von ca. 120°C ausgegast. Nach dem Abkühlen erfolgte das Spalten der Probe *in situ* bei Drücken von  $\leq 1\cdot 10^{-8}$  Pa. Das Spalten war mit mehr Kraftaufwand verbunden als bei den NiO-Kristallen, so dass die MnO-Kristalle etwas tiefer eingesägt wurden, um das Spalten zu vereinfachen.

Zur Abführung der beim Spalten entstandenen elektrischen Ladungen wurden die verwendeten Proben zwischen 60 und 90 min bei Temperaturen im Bereich von 100°C bis 140°C geheizt. Der Heizprozess wurde mittels einer Druckmesssonde überwacht, um ein möglichst minimales Ausgasen des Klebstoffes zu erzielen. Oberhalb von  $\approx 140^\circ\text{C}$  wurde mit Hilfe eines Massenspektrometers ein vermehrtes Ausgasen des Klebstoffes gemessen, so dass hier die Obergrenze der verwendbaren Heiztemperaturen liegt. Unterhalb dieser Temperaturen konnten Drücke im Bereich von ca.  $6\cdot 10^{-9}$  Pa erzielt werden. Durch die limitierte Maximaltemperatur muss die Heizdauer gegenüber der NiO-Präparation entsprechend verlängert werden, um ein ausreichendes Abfließen der Ladungen von der Oberfläche zu gewährleisten. Dabei wird die Expositionszeit der Probe in der Präparationskammer verlängert, so dass mit einer höheren Anzahl von Adsorbaten zu rechnen ist.

Eine Optimierung des Verfahrens wäre durch die Verwendung eines Probenhalters möglich, in dem der MnO-Kristall durch eine Klemmvorrichtung gehalten wird. Dadurch könnte eine höhere Temperatur beim Heizen verwendet werden und eine schnellere Präparation erfolgen. Für die hier vorgestellten Messungen wurden die Proben ausnahmslos aufgeklebt, da kein brauchbarer Halter zur Verfügung stand.

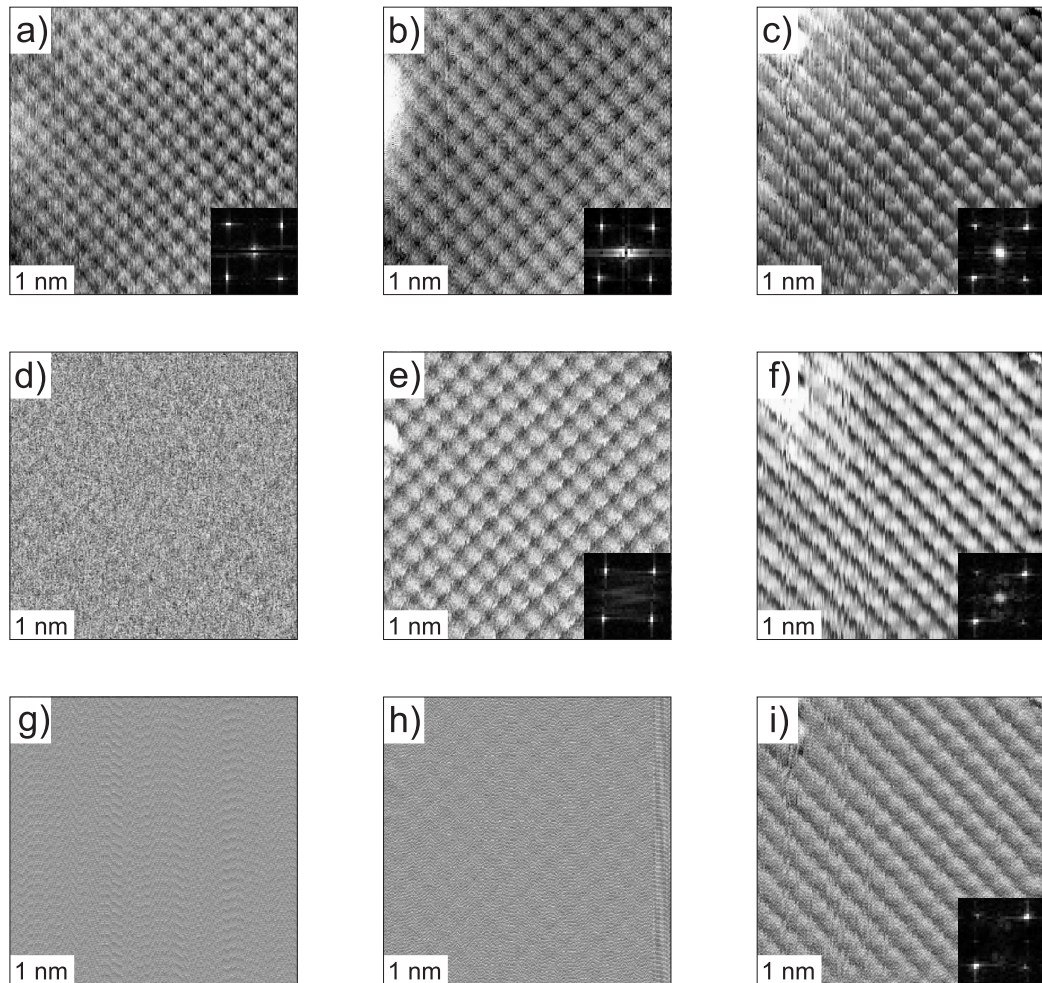
In Abbildung 5.15 sind zwei typische Topographiebilder dargestellt, die auf der (001)-Oberfläche derselben MnO-Probe gemessen wurden. Beide Bilder wurden ca. 24 h nach dem Spalten aufgenommen und es sind deutlich die Stufenkanten der Terrassen entlang der [001]-Richtung zu erkennen, wobei die Oberfläche mit einer Vielzahl von Adsorbaten belegt ist. In Bild b) wurde der markierte Bereich aus a) herausvergrößert.

Im Vergleich mit der NiO-Oberfläche (siehe Abbildung 4.2) ist die Oberflächenqualität der MnO(001)-Oberfläche deutlich schlechter. Die schlechtere Spaltbarkeit, auf die schon der höhere Kraftaufwand beim Spalten hinweist, zeigt sich auch an der Oberfläche in Form von hohen Stufen mit Stufenhöhen im Nanometerbereich. Die hohe Adsorbatbelegung ist ein Hinweis auf die Existenz einer Vielzahl von Defekten, die durch den Spaltprozess an der Oberfläche entstanden sind. Eine optimierte Präparation ist also in Anbetracht der Oberflächenqualität wünschenswert.

### 5.5.3 Atomare Auflösung auf der MnO(001)-Oberfläche

Neben der Abbildung der Terrassenstrukturen auf MnO war im Rahmen dieser Arbeit auch erstmals die atomare Abbildung der MnO(001)-Oberfläche möglich. In Abbildung 5.16 wird eine Messreihe gezeigt, die in einem Magnetfeld der Flussdichte 5 T bei verschiedenen Frequenzverschiebungen und damit unterschiedlichen Spitze-Probe-Abständen durchgeführt wurde. Bild 5.16 a) zeigt atomare Auflösung im Topographiekanal auf MnO(001), aufgenommen bei einer Frequenzverschiebung von  $\Delta f = -12,5$  Hz. Analog zur Abbildung des Nickeloxids wird auch hier nur eine Atomsorte als Maximum dargestellt. Es ist zu erwarten, dass hier ebenfalls die Sauerstoffatome als Maxima erscheinen, da eine metallbeschichtete Messsonde verwendet wird. Während die atomare Auflösung im Topographiekanal klar zu erkennen ist, zeigen der Dissipations- und Amplitudenkanal (d) und g)) keinerlei Kontrast. Bei einer Frequenzverschiebung von  $\Delta f = -35,0$  Hz werden auch im Dissipationskanal Atome sichtbar (Bild 5.16 e)). Offensichtlich kommt es hier infolge der stärkeren Spitze-Probe-Wechselwirkungen vermehrt zu dissipativen Prozessen, die zu dem beobachteten Kontrast im Dissipationsbild führen (vgl. dazu auch Kapitel 6.6.2). Wird der Abstand weiter verkleinert, wie es bei den Bildern c), f) und i) zu sehen ist, die bei  $\Delta f = -100,0$  Hz aufgenommen wurden, so entsteht auch ein atomarer Kontrast im Amplitudenbild. Durch den kleinen Abstand und die damit verbundenen starken Wechselwirkungen wird die Amplitude so starken Wechselwirkungen ausgesetzt, dass der Amplitudenregelkreis nicht mehr für eine konstante Amplitude sorgen kann. Die Anforderungen an den CA-Modus können also nicht mehr aufrechterhalten werden. Es ist zu beachten, dass durch das Einbrechen der Schwingungsam-





**Abbildung 5.16:** Die atomar aufgelöste (001)-Oberfläche von MnO bei verschiedenen Spitze-Probe-Abständen im Topographie-, Dissipations- und Amplitudenkanal. In der oberen Reihe werden Topographiebilder ( $z(x, y)$ ) dargestellt, die mittlere Reihe zeigt Dissipationsbilder ( $a_{\text{exc}}(x, y)$ ) und die unterste Reihe Amplitudenbilder ( $A(x, y)$ ). Bild a), d) und g) wurden parallel zueinander bei  $\Delta f = -12,5$  Hz aufgenommen. Das Topographiebild zeigt klar atomare Auflösung, während in d) und g) keinerlei Kontrast sichtbar ist. b), e) und h) sind bei  $\Delta f = -35,0$  Hz entstanden. Dadurch wurde der Messabstand verkleinert, und es ist aufgrund der stärkeren Wechselwirkungen auch im Dissipationskanal ein atomarer Kontrast zu erkennen. Die Bilder der dritten Spalte (c), f) und i)) wurden bei  $\Delta f = -100,0$  Hz gemessen. Durch den kleineren Abstand wird die Wechselwirkung zwischen Spitze und Probe so stark, dass die Amplitudenregelung keine konstante Amplitude mehr gewährleisten kann. Daher ist hier auch im Amplitudenbild i) ein atomarer Kontrast zu erkennen. Trotz des kleinen Spitze-Probe-Abstandes zeigen die dargestellten Fourierbilder nur die chemische Einheitszelle und es sind keine Zusatzmaxima zu erkennen, die auf die erfolgreiche Messung der magnetischen Austauschwechselwirkung schließen lassen würden. Das Bild a) wurde leicht fouriergefiltert (vgl. Anhang A.4). Messparameter:  $f_0 = 160.395$  Hz,  $A = \pm 6,3$  nm,  $c_z = 34$  N/m,  $Q_0 = 33.400$ ,  $B = 5$  T, Messsonde: SSS-NCL, (15+15) nm Fe/SiO, a)  $\Delta f = -12,5$  Hz,  $\gamma = -1,3 \cdot 10^{-15} \text{ N}\sqrt{\text{m}}$ , b)  $\Delta f = -35,0$  Hz,  $\gamma = -3,75 \cdot 10^{-15} \text{ N}\sqrt{\text{m}}$ , c)  $\Delta f = -100,0$  Hz,  $\gamma = -1,07 \cdot 10^{-14} \text{ N}\sqrt{\text{m}}$ .

plitude der Spitze-Probe-Abstand also nicht mehr im gleichen Maß verringert wird, wie die Probe in Richtung Messsonde bewegt wird. Ein ähnliches Verhalten wird auch in Kapitel 6.3 beobachtet. Eine weitere Annäherung der Probe an die Spitze ist damit also nur noch eingeschränkt möglich. Im konkreten Fall schlug der Versuch, bei noch kleineren Abständen zu messen, fehl, da eine stabile Abbildung unter diesen Bedingungen nicht mehr möglich war.

Obwohl also sehr kleine Abstände zwischen Probe und Spitze eingestellt wurden, ist in keinem der gezeigten Fourierbilder ein Anzeichen für zusätzliche Maxima zu sehen, die auf eine Detektion der Austauschwechselwirkung schließen lassen würden. Allerdings ist zu beachten, dass bislang nicht sehr viele Messungen mit atomarer Auflösung auf MnO durchgeführt wurden, so dass aus den hier vorliegenden Messergebnissen nicht geschlossen werden kann, dass eine erfolgreiche MAK-Messung auf dieser Probenoberfläche unmöglich ist. Andere Erklärungen können ebenfalls gefunden werden. Befinden sich beispielsweise nach einer Spitzenkollision mit einem Adsorbat nicht-magnetische Fremdatome am vordersten Spitzenende oder zeigt das magnetische Moment des vordersten Spitzenatoms in eine ungünstige Richtung, kann auch bei sehr geringen Abständen und trotz des angelegten Magnetfeldes kein magnetischer Austauschkontrast erzielt werden.

Es ist bemerkenswert, dass sich bei den kleinen Spitze-Probe-Abständen in den Bildern f) und i) eine asymmetrische Abbildung der chemischen Einheitszelle einstellt. So unterscheidet sich der Kontrast entlang der beiden  $\langle 110 \rangle$ -Richtungen, was auch durch eine unterschiedliche Helligkeit der Maxima in den entsprechenden Fourierbildern wiedergegeben wird. Daraus kann auf eine leicht asymmetrische Spitze geschlossen werden (vgl. Kap. 6.6). Tritt eine solche Asymmetrie in der zweiten oder dritten Atomlage am vordersten Spitzenende auf, so wird der Beitrag dieser Atome erst bei kleinen Abständen signifikant, so wie es auch hier beobachtet wird.

Abschließend kann das Fazit gezogen werden, dass die Abbildung der MnO-Proben infolge der schlechten Qualität der Spaltflächen und der hohen Adsorbatdichte schwieriger ist als beim NiO. Im Vergleich mit dem NiO ist die Wahrscheinlichkeit, eine Spitzenmodifikation durch Kollision mit einem Adsorbat zu erhalten, deutlich größer, so dass auch die Abbildung mit atomarer Auflösung erschwert wird. Durch die zahlreichen Adsorbate auf der Oberfläche gestaltet es sich schwierig, überhaupt einen sauberen und atomar glatten Bereich auf der Oberfläche zu finden, der eine brauchbare Abbildung erlaubt. Für weitere Versuche wäre eine Verbesserung der Präparationsmethode wünschenswert, damit die Abbildung erleichtert wird und es seltener zu Spitzenänderungen während der Messungen kommt. Dadurch wäre eine



bessere Kontrolle des Experimentes möglich, mit einer entsprechend erhöhten Chance der erfolgreichen Messung der magnetischen Austauschkräfte auf der (001)-Oberfläche.

# Kapitel 6

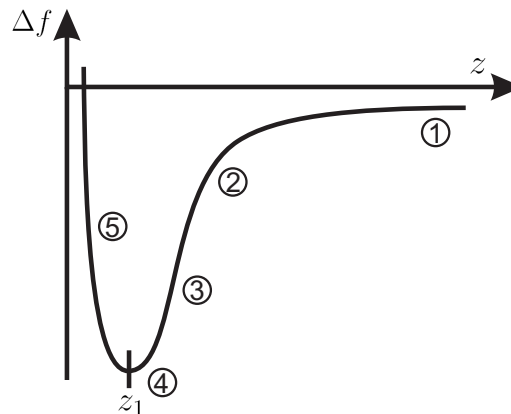
## Dreidimensionale Kraftspektroskopiefelder mit atomarer Auflösung

Für die Messung der magnetischen Austauschkräfte zwischen einer ferromagnetischen Spitze und einer antiferromagnetischen Probe wurden im Kapitel 2.1 zwei unterschiedliche Ansätze genannt. Einerseits ist eine solche Messung im geregelten Topographiemodus möglich, wie es bereits im vorangegangenen Kapitel beschrieben wurde, während andererseits Spektroskopiemessungen erfolgen können, wie sie im hier vorliegenden Kapitel diskutiert werden. Im Speziellen wurden dazu dreidimensionale Spektroskopiefelder mit atomarer Auflösung aufgenommen, die eine detaillierte Beschreibung der Spitze-Probe-Wechselwirkungen erlauben. Nach einigen grundsätzlichen Betrachtungen zur Durchführung eines solchen Experimentes wird insbesondere auf die Auswertung der Messkurven und deren Umrechnung in abstandsabhängige Wechselwirkungspotential- bzw. Kraftkurven eingegangen. Auch die zwischen Spitze und Probe dissipierte Energie in Abhängigkeit des Abstandes wird berechnet. Aus den gemessenen Daten konnten dreidimensionale Karten des Spitze-Probe-Wechselwirkungspotentials, der wirkenden Kräfte sowie der Dissipationsenergie mit hoher Ortsauflösung erstellt werden. Im Gegensatz zu den Messungen aus Kapitel 5.2 ist allerdings in dem hier diskutierten Datensatz, ebenso wie in allen anderen aufgezeichneten Spektroskopiefeldern, kein Anzeichen für eine erfolgreiche Messung der magnetischen Austauschkraft zu finden. Die Auswertung dieser Karten erlaubt es jedoch, Rückschlüsse auf Eigenschaften des vordersten Spitzenendes zu gewinnen. Diese Erkenntnisse sind wichtig, um die relevanten Effekte zu verstehen, die für die Kontrast-

bildung auf atomarer Skala verantwortlich sind. Die detaillierte Auswertung zeigt, dass einzelne Spektroskopiekurven und zweidimensionale Abbildungen dafür nicht ausreichen.

## 6.1 Motivation

Eine wesentliche Motivation für die Messung von dreidimensionalen  $\Delta f(x, y, z)$ -Spektroskopiefeldern liegt darin, das Wechselwirkungspotential sowie die Kräfte zwischen Spitze und Probe quantifizieren zu können. Des Weiteren ist eine genauere Untersuchung der Abstandsabhängigkeit der wirkenden Kräfte möglich. Für die (001)-Oberfläche von NiO wurde eine solche Auswertung mit Hinblick auf die chemischen Wechselwirkungen bereits durchgeführt [44, 70], allerdings ist auch die Betrachtung der magnetischen Austauschwechselwirkungen mit Hilfe dieser Methode von großem Interesse.



**Abbildung 6.1:** Prinzipskizze der verschiedenen Arbeitsbereiche entlang einer  $\Delta f(z)$ -Kurve. Die Kurve weist bei  $z_1$  ein Minimum auf und geht für große  $z$  asymptotisch gegen Null. Während z.B. MKM-Messungen im Bereich 1 stattfinden, werden Topographiemessungen typischerweise in den Bereichen 2 und 3 durchgeführt. Im Bereich 2 können monatomare Stufen gemessen werden, während im Bereich 3 die atomar aufgelöste Messung möglich ist. Bei eingeschaltetem Topographieregelkreis wird durch Regelung des Abstandes die Frequenzverschiebung bei einem bestimmten Wert  $\Delta f_{\text{Soll}}$  konstant gehalten. Die Steigung der Kurve durchläuft am Minimum bei  $z = z_1$  einen Vorzeichenwechsel, so dass der Topographieregelkreis im Bereich 5 in die falsche Richtung regelt. Die Bereiche 4 und 5 können in der Praxis bei einer Topographiemessung daher nur schwer oder überhaupt nicht erreicht werden (siehe Text). Wird eine  $\Delta f(z)$ -Spektroskopiekurve gemessen, ist der Topographieregelkreis ausgeschaltet, und es ist oft möglich, auch die Bereiche 4 und 5 zu untersuchen.

Der Spektroskopiemodus bietet zudem den Vorteil der kleineren erreichbaren Spitze-Probe-Abstände im Vergleich zum Topographiemodus. Wie in Kapitel 2 diskutiert und insbesondere in Abbildung 5.1 zu sehen, sind gerade zur Detektion des Austauschkontrastes sehr geringe Spitze-Probe-Abstände notwendig. Wird im Topographiemodus versucht, zu sehr kleinen Spitze-Probe-Abständen überzugehen, erfolgen häufig Kollisionen der Spitze mit der Probe. Dieses Problem kann anhand von Abbildung 6.1 erklärt werden. Hier ist schematisch der Verlauf einer typischen  $\Delta f(z)$ -Kurve dargestellt. Es wird aus der Abbildung ersichtlich, dass die Frequenzverschiebung über den gesamten Abstandsbereich  $z_1 < z < \infty$  negativ ist und für sehr große Abstände asymptotisch gegen Null geht. Die Kurve wird im Fernbereich (1) von den langreichweitigen Wechselwirkungen dominiert. In diesem Bereich werden z.B. bei der Magnetkraftmikroskopie die langreichweitigen, magneto-statischen Wechselwirkungen bei ausgeschaltetem Topographieregelkreis gemessen (vgl. Kap. 1.2.3). Im Bereich kleinerer Spitze-Probe-Abstände (2) ist die topographische Abbildung monoatomarer Stufen möglich. Für atomare Auflösung ist eine weitere Annäherung in den Bereich 3 erforderlich. Da bei der topographischen Abbildung in den Bereichen 2 und 3 die Topographieregelung aktiv ist, verkleinert eine Vergrößerung von  $|\Delta f(z)|$  den Spitze-Probe-Abstand. Es ist zu beachten, dass sich die Steigung der Kurve laufend ändert, so dass bei einer Veränderung des Spitze-Probe-Abstandes die Regelparameter des Topographieregelkreises wieder neu optimiert werden müssen. Im Bereich 4, also bei  $z \approx z_1$  wird die Regelung des Abstandes sehr problematisch, da sich hier die Regelgröße  $\Delta f$  bei einer Variation des Abstandes kaum verändert. Eine äußere Störung oder ein Abstandsrauschen können in diesem Bereich dazu führen, dass der Spitze-Probe-Abstand den Wert  $z_1$  unterschreitet, also in den Bereich 5 eintritt. Da das Vorzeichen der Steigung der  $\Delta f(z)$ -Kurve von Bereich 3 nach Bereich 5 wechselt, arbeitet der Topographieregelkreis für  $z < z_1$  mit der falschen Polarität und es kommt zu einer Kollision der Spitze mit der Probe. Eine weitere Komplikation ergibt sich daraus, dass der Wert  $\Delta f(z_1)$  im Normalfall nicht bekannt ist. Wird ein Sollwert  $|\Delta f_{\text{Soll}}| > |\Delta f(z_1)|$  eingestellt, so kann diese Frequenzverschiebung nicht erreicht werden, und die Probe wird vom Topographieregelkreis bis zum Maximalausschlag des Piezoröhrchens in die Spitze hineingefahren (vgl. Kapitel 1.2.1). Im Bereich 5 mit  $z < z_1$  und mit Einschränkungen auch im Übergangsbereich 4 sind Topographiemessungen also nicht möglich<sup>†</sup>. Daraus wird deutlich, dass eine Messung im geregelten Modus bei sehr kleinen Abstän-

<sup>†</sup>Prinzipiell ist es möglich, den Regelkreis so einzustellen, dass er im Bereich 5 korrekt arbeitet, dann ist allerdings der Bereich rechts von  $z_1$  nicht zugänglich. Für Messungen mit atomarer Auflösung wird daher im allgemeinen aus praktischen Erwägungen im Bereich 3 gemessen.

den schwierig ist, wodurch eine Messung der magnetischen Austauschkräfte auf der (001)-Oberfläche von NiO erschwert wird. Da während der Messung von  $\Delta f(z)$ -Spektroskopiekurven der Topographieregelkreis ausgeschaltet ist, sind in diesem Messmodus auch die Bereiche 4 und 5 zugänglich, sofern die Konfiguration der vordersten Spitzenatome entsprechend stabil ist.

## 6.2 Experimentelle Vorgehensweise

Bevor ein dreidimensionales Spektroskopiefeld gemessen werden kann, sollten einige Vorüberlegungen angestellt werden, wie ein solches Experiment bestmöglich durchzuführen ist. Insbesondere für die angestrebte Detektion der magnetischen Austauschwechselwirkung gibt es einige besondere Anforderungen. So ist dafür eine Messung mit atomarer Auflösung erforderlich, bei der mindestens eine magnetische Einheitszelle komplett abgebildet wird. Es ist vorteilhaft, ein Feld mit möglichst vielen Kurven aufzunehmen, um eine hohe Ortsauflösung zu erreichen. Der prinzipielle Ablauf der Datenaufnahme während einer einzelnen  $\Delta f(z)$ -Spektroskopiekurve wurde bereits in Kapitel 1.2.4 geschildert und soll nun etwas detaillierter beschrieben werden. Der Ablauf ist dabei wie folgt:

- 1.) Bei aktiver Topographieregelung wird eine bestimmte  $(x, y)$ -Position auf der Oberfläche angefahren.
- 2.) Der Topographieregelkreis wird ausgeschaltet. Durch die Regelung befindet sich die Messspitze an einem Punkt  $z > z_1$  oberhalb der Probenoberfläche (vgl. Abbildung 6.1).
- 3.) Der Startpunkt der Kurve ( $z_{\text{Start}}$ ) wird angefahren.
- 4.) Die Datenaufnahme wird gestartet. An den Röhrenpiezo wird eine Spannungsrampe angelegt, durch den eine gleichmäßige Abstandsvariation von  $z_{\text{Start}}$  bis  $z_{\text{Ende}}$  erfolgt.
- 5.) Bei Erreichen der Endposition der Kurve ( $z_{\text{Ende}}$ ) wird die Datenaufnahme angehalten und die Topographieregelung wieder eingeschaltet.

Wird ein Spektroskopiefeld aufgenommen, beginnt der Vorgang direkt im Anschluss an einer veränderten  $(x, y)$ -Position wieder von neuem.

Gegebenenfalls werden während der Messung einer solchen Kurve parallel mehrere Datenkanäle aufgezeichnet. Bei der hier untersuchten Messung wurden beispielsweise neben der Frequenzverschiebung  $\Delta f$ , die Amplitude  $A$  und die Anregungsamplitude  $a_{\text{exc}}$  in Abhängigkeit des Abstandes mit aufgenommen. Es ist zu beachten, dass  $z_{\text{Start}}$  und  $z_{\text{Ende}}$  (und damit auch die Bewegungsrichtung während der Kurve) frei wählbar sind. Während der Bewegung von  $z_{\text{Start}}$  nach  $z_{\text{Ende}}$  werden an  $n$  Messpunkten Messwerte aufgenommen. Zwischen zwei Messpunkten herrscht damit der äquidistante Abstand  $\Delta z$  mit  $\Delta z = |z_{\text{Start}} - z_{\text{Ende}}|/n$ . An jedem Messpunkt verharrt die Messsonde eine gewisse Zeit  $\Delta t$ . Während dieser Zeit können mehrere Messwerte aufgenommen werden, über die dann gemittelt wird. Wählt man eine große Zahl von Messwerten pro Messpunkt sowie eine große Verweildauer  $\Delta t$ , wird das Signal-zu-Rausch-Verhältnis verbessert, allerdings auch die Messzeit der einzelnen Kurve erhöht. Eine lange Messzeit ist vor allem bei großen Spektroskopiefeldern von Nachteil, da durch thermische Drifteffekte, Piezokriechen oder auch das Driften elektronischer Bauelemente in der Steuerungselektronik des Mikroskops zeitabhängige Effekte entstehen können, die eine zuverlässige Positionierung über den gesamten Messzeitraum mit der geforderten Genauigkeit verhindern (siehe Anhang C). Um solche Effekte zu minimieren, wurde bereits bei der Planung auf einen symmetrischen Aufbau des Mikroskops geachtet (vergleiche Kapitel 2.3). Insbesondere werden durch die Messung bei tiefen Temperaturen ( $T_{\text{Mik}}=8$  K) in einem Badkryostaten die thermische Drift, sowie das Piezokriechen minimiert. Trotz dieser Vorkehrungen verbleibt immer eine kleine Restdrift, die bei großen Messdauern problematisch sein kann. Dabei spielen insbesondere die Elektronikkomponenten zur Ansteuerung des piezoelektrischen Stellelementes und der Frequenzdemodulator eine wichtige Rolle (siehe Anhang C).

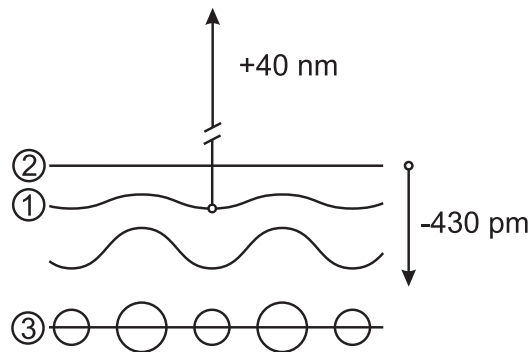
Bei der angestrebten hohen Kurvenzahl ist die Minimierung der Zeit, die bei der Aufnahme einer einzelnen Spektroskopiekurve benötigt wird, unerlässlich. Eine Komplikation bei der Messung kann dabei durch dissipative Wechselwirkungen zwischen Spitze und Probe entstehen. Vergrößert sich die Dissipationsenergie bei der Annäherung der Messspitze an die Oberfläche, so führt dies im CE-Modus (vgl. Kapitel 1.2.1) zu einem Einbrechen der Schwingungsamplitude, da ein Teil der Schwingungsenergie des Federbalkens dissipiert wird. Im CA-Modus wird dieser Amplitudeneinbruch vom Amplitudenregelkreis durch eine Erhöhung der Anregungsamplitude kompensiert. Da der Federbalken mit einer gewissen Trägheit auf ein neues  $a_{\text{exc}}$  reagiert, vergeht bis zum Erreichen der Sollamplitude die Zeit  $\tau = Q_0/(\pi f_0)$  [101]. Diese Verzögerung wird groß für eine hohe Güte des Federbalkens und liegt im konkreten Fall bei  $\tau \approx 70$  msec. Daraus folgt, dass bei einer Spektroskopiemessung streng genommen bei jedem einzelnen Messpunkt etwa 70 msec

gewartet werden muss, um eine konstante Amplitude sicherzustellen. Dies ist insbesondere dann wichtig, wenn dissipative Kräfte auftreten, die eine starke Abstandsabhängigkeit aufweisen. Um, wie in der vorliegenden Untersuchung, etwa 100 Messpunkte aufzunehmen, ergibt sich somit eine Mindestzeit für eine einzelne Nahbereichsspektroskopiekurve von etwa sieben Sekunden, wenn sichergestellt werden soll, dass die Schwingungsamplitude jederzeit konstant ist. Wird auch die Trägheit des Amplitudenregelkreises betrachtet, kann sich dieser Wert noch weiter erhöhen (vgl. dazu auch Kapitel 6.4). Da bei der hier durchgeführten Messung eine Einzelkurve in einer Zeit von etwa 180 msec aufgenommen wurde, konnte die Amplitude des Federbalkens trotz Amplitudenregelung nicht während der gesamten Spektroskopiekurve konstant gehalten werden. Für die weitere Auswertung ist dieser Umstand allerdings unproblematisch, da sowohl bei der Berechnung des Wechselwirkungspotentials und der Kraft als auch bei der Berechnung der Dissipationsenergie die momentane Amplitude  $A(z)$  berücksichtigt wurde, um so den Effekt der einbrechenden Amplitude zu kompensieren. Mit diesem Verfahren ist auch die hier vorgestellte Messung eines sehr großen Spektroskopiefeldes möglich, da mit kurzen Kurvenaufnahmezeiten gearbeitet werden kann.

Ein anderer zeitbegrenzender Faktor für die Messung der Kurven sind die Wartezeiten, die zwischen einigen der oben aufgeführten Schritte bei der Spektroskopiemessung eingehalten werden müssen. Diese sind erforderlich, da es im allgemeinen während der Kurvenaufnahme zu Störimpulsen kommt, die die Oszillation des Federbalkens kurzzeitig destabilisieren können. Liegt beispielsweise  $z_{\text{Ende}}$  weit entfernt vom Ursprungspunkt  $z$ , so kommt es beim Einschalten des Topographieregelkreises in 5.) zu einer schnellen Änderung des Spitze-Probe-Abstandes, die mit einem mechanischen Impuls verbunden ist. Nach einem solchen Impuls muss das Abklingen der Destabilisierung abgewartet werden, um eine brauchbare Messung zu erhalten. Zu diesem Zweck können in der Steuerungssoftware der Messelektronik kleine Verzögerungszeiten vorgewählt werden, die an die jeweilige Messung angepasst werden sollten und möglichst klein zu wählen sind. Auch die Geschwindigkeit während der Datenaufnahme selbst ist begrenzt (4.). Die maximale Geschwindigkeit, mit der die Probe von  $z_{\text{Start}}$  nach  $z_{\text{Ende}}$  bewegt werden kann, ist dabei letztendlich limitiert durch die Bandbreite der Messelektronik.

Ebenfalls zeitbegrenzend für die Messung ist der  $z$ -Hub der Kurve, der während einer  $\Delta f(z)$ -Kurve zurückgelegt wird, also  $|z_{\text{Start}} - z_{\text{Ende}}|$ . Zum einen benötigt man ein möglichst kleines  $\Delta z$  zwischen benachbarten Datenpunkten in dem Bereich der Kurve, in dem starke Frequenzänderungen auftreten und ein atomarer Kontrast vorhanden ist (siehe Bereiche 3, 4 und 5 in Abb. 6.1). Zum anderen ist ein großer Gesamthub erforderlich, der auch den langreichweitigen Bereich 1 und 2 berücksichtigt, da dieser für eine zuverlässige





**Abbildung 6.2:** Schematische Darstellung des Datenaufnahmeverfahrens. Zunächst wird bei einer Frequenzverschiebung von  $\Delta f = -175$  Hz ein Kontrollbild mit atomarer Auflösung im Topographiemodus aufgenommen (Lage 1). Dieser Abstandsbereich entspricht dem Bereich 3 in Abb. 6.1. Danach wird eine Frequenzverschiebung eingestellt, bei der kein atomarer Kontrast mehr zu erkennen ist (Lage 2). Im vorliegenden Fall wird dieser Abstand bei  $\Delta f = -140$  Hz erreicht. Auf diesen Wert wird der Spitze-Probe-Abstand vor Beginn der Spektroskopiekurven stabilisiert. Diese Ebene (2) entspricht Bereich 2 in Abb. 6.1 und liegt parallel zu der gedachten Bezugsebene 3, die genau die Zentren aller Atome in der obersten Lage schneidet. Auf der Ebene 2 liegen alle  $z_{\text{Start}}$ -Werte der einzelnen Spektroskopiekurven ( $z_{\text{Start}} = 0$ ), während die Endwerte 430 pm darunter liegen ( $z_{\text{Ende}} = -430$  pm). An den Endpunkten der Spektroskopiekurven werden geringere Abstände zwischen Spitze und Probe erreicht, als im Kontrolltopographiebild, so dass die Wechselwirkung im Bereich 4 oder 5 der Abb. 6.1 detektiert wird. Wie in den Abbildungen 6.3 und 6.4 verdeutlicht wird, ist beim hier ausgewerteten Experiment die Amplitude nicht konstant während der Annäherung, so dass der untere Umkehrpunkt der Federbalkenoszillation nicht um 430 pm an die Probe herangefahren wird, sondern um einen kleineren Betrag (siehe dazu auch Kapitel 6.3).

Berechnung des Wechselwirkungspotentials und der Kräfte zwischen Spitze und Probe benötigt wird.

Bei der in diesem Kapitel vorgestellten Messung deckt das Spektroskopiefeld lediglich den Bereich ab, in dem auch auf atomarer Skala ein Kontrast auftritt, um die Aufnahmezeit für die Kurven zu senken. Der langreichweitige Bereich dagegen wird nur mit einer Einzelkurve vermessen, da dieser Bereich für alle Kurven des Spektroskopiefeldes gleich ist (vgl. Abb. 6.2). Im Folgenden wird die genaue Prozedur beschrieben, die für das hier diskutierte Spektroskopiefeld verwendet wurde.

- 1.) Es wird eine Frequenzverschiebung eingestellt, bei der die NiO(001)-Oberfläche atomar aufgelöst wird. Diese erste Kontrollmessung stellt sicher, dass die Spitze überhaupt für atomare Auflösung geeignet ist. Bei der vorliegenden Messung ist dies bei -175 Hz der Fall, was Bereich 3 in Abbildung 6.1 bzw. Ebene 1 in Abbildung 6.2 entspricht. Da vor den hier vorgestellten Messungen keine Kollision der Spitze mit der

Oberfläche auftrat, kann davon ausgegangen werden, dass es sich bei den vordersten Spitzenatomen um Nickel handelt.

- 2.) Anschließend wurde  $|\Delta f(z)|$  solange verkleinert, bis die atomare Auflösung im Topographiekanal vollständig verschwunden war. Dieser Punkt wurde bei  $\Delta f = -140$  Hz erreicht. Das Topographiebild bei dieser Frequenzverschiebung entspricht der Ebene 2 in Abbildung 6.2, die genau parallel zu einer gedachten Ebene liegt, die durch die Kerne der Nickel- und der Sauerstoffatome der obersten Atomlage verläuft (siehe Ebene 3 in Abbildung 6.2). Von der Ebene 2 ausgehend wurden alle  $64 \times 64 = 4096$  Nahbereichsspektroskopiekurven in einem Gebiet von  $1,2 \times 1,2$  nm<sup>2</sup> gefahren, wobei jeweils  $z_{\text{Start}} = 0$  und  $z_{\text{Ende}} = -430$  pm mit  $\Delta z = 4,6$  pm gewählt wurde. An jedem Messpunkt wurde über 20 Messwerte gemittelt. Der Spitze-Probe-Abstand bei  $z_{\text{Ende}}$  lag dabei näher an der Probe als das zuvor bei  $\Delta f = -175$  Hz aufgezeichnete Topographiebild (vgl. Abb. 6.2). Parallel zur Frequenzverschiebung wurden auch die Amplitude  $A$  und die Dissipation  $a_{\text{exc}}$  aufgenommen (vgl. Abbildung 6.3).
- 3.) Zur Überprüfung und Quantifizierung der lateralen Drift wurde ein Topographiebild mit denselben Parametern wie vor dem Spektroskopiefeld und damit bei einer Frequenzverschiebung von  $\Delta f = -175$  Hz aufgenommen (vgl. Abbildung 6.10). Die relative laterale Verschiebung der beiden Bilder gegeneinander beträgt dabei ca. 60 pm. Anschließend wurde der Regelkreis bei  $\Delta f = -175$  Hz ausgeschaltet und eine einzelne  $\Delta f(z)$ -Kurve zur Bestimmung der langreichweitigen Wechselwirkung von  $z_{\text{Start}} = 0$  nm bis  $z_{\text{Ende}} = 40$  nm mit  $\Delta z = 40$  pm gefahren. Im Anfangsbereich bei  $z_{\text{Start}}$  überlappt diese Fernbereichskurve mit den Nahbereichskurven des Spektroskopiefeldes, so dass die Einzelkurve mit den Kurven des Spektroskopiefeldes zusammengefügt werden kann.
- 4.) Um die Drift des Demodulators während der Spektroskopiemessung zu bestimmen, wird die Resonanzfrequenz nach Ende der Messung erneut bestimmt, wodurch ein Vergleich mit der Resonanzfrequenz zu Beginn der Messung möglich ist. Die Differenz lag bei ca. 1 Hz und ist in Anbetracht der maximal erreichten Frequenzverschiebungen vernachlässigbar.

Die Messung wurde in einem Magnetfeld der Flussdichte  $B = 1$  T durchgeführt, welches zur magnetischen Ausrichtung der nickelbedampften Spitze dient (vgl. Kapitel 2.1). Die Gesamtaufnahmedauer des Spektroskopiefeldes betrug ca. 24 min. Durch die vergleichsweise kleine Messzeit und die geringe

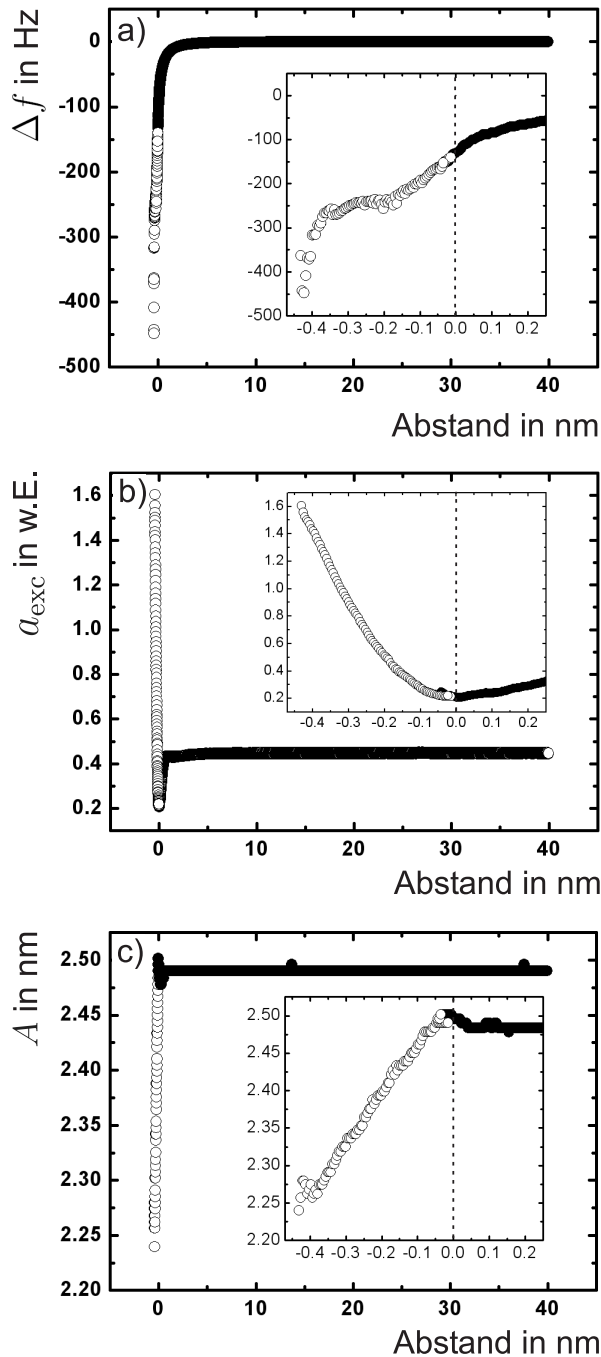
Drift des verwendeten Mikroskops zeigt das Spektroskopiefeld keine nennenswerten Verzerrungen. Dabei konnte in keinem der drei parallel aufgenommenen Spektroskopiefelder  $\Delta f(x, y, z)$ ,  $A(x, y, z)$  und  $a_{\text{exc}}(x, y, z)$  innerhalb des Messzeitraumes eine sprunghafte Änderung eines der Messsignale detektiert werden, die auf eine Umkonfiguration der vordersten Spitzenatome hindeuten würde.

Das geschilderte Messverfahren ermöglicht es bei einer entsprechenden Optimierung aller Messparameter, eine sehr hohe Kurvenzahl aufzunehmen, bei gleichzeitig vernachlässigbarer Drift. So konnte mit dieser Methode eine ganze Reihe von Spektroskopiefeldern aufgenommen werden. Das größte Feld umfasste  $128 \times 128 = 16384$  Nahbereichskurven mit jeweils 46 Messpunkten. Aufgrund der Einkopplung einer starken externen Störung während der Messung ist der Datensatz allerdings von geringerer Qualität als der hier diskutierte Datensatz und wird daher an dieser Stelle nicht besprochen.

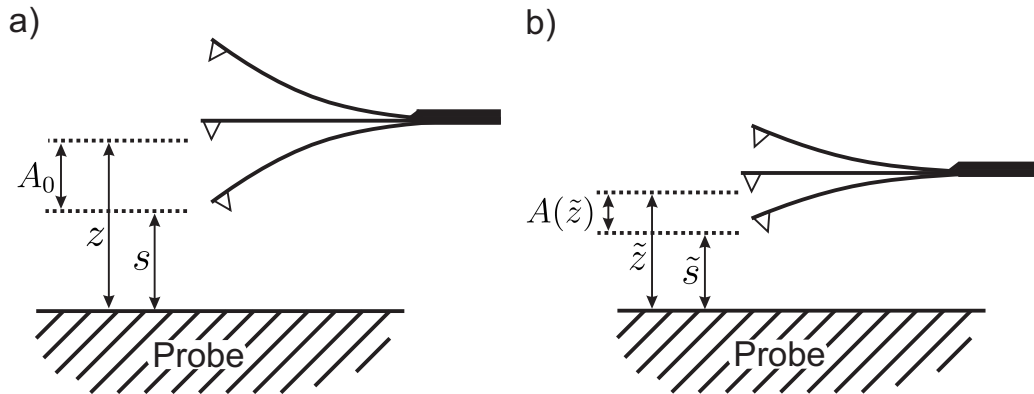
### 6.3 Umrechnung der $\Delta f(z)$ -Kurven

In Kapitel 1.2.4 wurde bereits beschrieben, wie im CA-Modus eine Umrechnung der  $\Delta f(z)$ -Spektroskopiekurven in  $F(z)$ -Kurven möglich ist. In der Praxis hat sich bei den Messungen auf der (001)-Oberfläche von NiO jedoch gezeigt, dass oft trotz einer sorgfältigen Einstellung des Amplitudenregelkreises die Amplitude während der einzelnen Spektroskopiekurven nicht perfekt konstant gehalten werden kann, ohne dass sich die Messzeiten extrem verlängern. Im vorangegangenen Abschnitt wurde bereits erläutert, dass die Ursache dafür in der relativ starken Dissipation während der Messung im Bereich der atomaren Auflösung und der hohen Güte des Federbalkens liegt. Der Einbruch der Amplitude wird auch in Abbildung 6.3 deutlich, wo eine Beispielkurve aus dem hier untersuchten Datensatz in allen drei Datenkanälen betrachtet wird. Im Nahbereich der Probe bricht die Amplitude der Schwingung deutlich ein bei gleichzeitigem Anstieg der Dissipationsenergie. Der Einbruch der Amplitude ist abhängig von der relativen Position der Kurve zum atomaren Gitter und liegt während der 430 pm langen Annäherung bei etwa 100 bis 300 pm.

Bei einer Sollamplitude von  $A = \pm 2,5$  nm entspricht eine solche Abnahme der Amplitude zwar nur einer Abnahme um maximal 12 %, allerdings wird dadurch im Extremfall der reale Abstand zwischen dem unteren Umkehrpunkt der Spitze und der Probe während der Messkurve lediglich um ca. 130 pm statt um 430 pm verringert (siehe Abbildung 6.4). Daher liegt in diesem Fall kein reiner CA-Modus vor, so dass der in Kapitel 1.2.4 vorgestellte Algorithmus für die Umrechnung von  $\Delta f(x, y, z)$ -Daten in  $E_{\text{SP}}(x, y, z)$ - bzw.



**Abbildung 6.3:** Beispiel für die drei parallel aufgenommenen Datenkanäle. Es wird jeweils eine Kurve gezeigt, die aus einer der 4096 Nahbereichskurven (mit  $\circ$  markiert) und aus der Fernbereichskurve (mit  $\bullet$  markiert) zusammengesetzt wurde. Der Nullpunkt der Abstandsskala markiert hier den Punkt, an dem die beiden Kurven zusammengesetzt wurden. In allen Diagrammen ist der Nahbereich als Ausschnittsvergrößerung abgebildet. a) zeigt die  $\Delta f(z)$ -Kurve, b) die  $a_{\text{exc}}(z)$ -Kurve und c) die  $A(z)$ -Kurve. Die Frequenzverschiebung erreicht etwa -450 Hz. Die Werte für die Anregungsamplitude sind proportional zur Amplitude des Anregungspiezos, werden aber aus praktischen Gründen in willkürlichen Einheiten angegeben. Es ist deutlich zu sehen, dass  $a_{\text{exc}}$  im Nahbereich der Probe deutlich ansteigt, wohingegen die Amplitude einen annähernd linearen Einbruch aufweist. Obwohl der Amplitudenregelkreis aktiv ist, kann die Sollamplitude also nicht mehr aufrecht erhalten werden und die Amplitude bricht bei der hier gezeigten Messkurve von 2,49 nm ausgehend um ca. 0,22 nm ein. Zur Umrechnung dieser Kurven muss daher eine andere Vorgehensweise gewählt werden als beim herkömmlichen CA- oder CE-Modus. Messparameter:  $\Delta f = -175$  Hz,  $f_0 = 156.118$  Hz,  $A = \pm 2,5$  nm,  $c_z = 33$  N/m,  $Q_0 = 35.000$ ,  $B = 1$  T, Messsonde: SSS-NCL, Ni/SiO.



**Abbildung 6.4:** Einbrechen der Oszillationsamplitude bei Annäherung der Spitze an die Probenoberfläche. Während der mittlere Spitze-Probe-Abstand von  $z$  nach  $\tilde{z}$  sinkt, nimmt die Amplitude von  $A_0$  nach  $A(\tilde{z})$  ab. Daher ändert sich der Abstand zwischen dem unteren Umkehrpunkt der Oszillation und der Probenoberfläche weniger stark als der mittlere Spitze-Probe-Abstand. Es gilt also:  $(z - \tilde{z}) > (s - \tilde{s})$ . Wird die sich verändernde Amplitude mit aufgezeichnet, so kann mit Gleichung 6.1 der Abstand zwischen dem unteren Umkehrpunkt der Schwingung und der Probenoberfläche bestimmt werden. Relaxationseffekte der wechselwirkenden Spitzen- oder Probenatome, auf die in Kapitel 6.6 näher eingegangen wird, werden dabei nicht berücksichtigt.

$F_z(x, y, z)$ -Daten hier nicht verwendet werden kann. Da der Amplitudenregler zumindest teilweise die Amplitudenänderung durch eine Erhöhung der Anregungsamplitude  $a_{\text{exc}}$  ausgleicht (vgl. Abbildung 6.3), liegt auch kein reiner CE-Modus vor. Vielmehr handelt es sich um eine Mischform aus CA- und CE-Modus, da die Amplitude einbricht bei gleichzeitigem Anstieg der Anregungsamplitude. Dieses Verhalten muss auch bei der Berechnung der Dissipation berücksichtigt werden (siehe Kapitel 6.4).

Zur Umrechnung von  $\Delta f(z)$ -Kurven in  $E_{\text{SP}}(z)$ - und  $F(z)$ -Kurven wird in [42, 43] ein Algorithmus angegeben, der es ermöglicht,  $\Delta f(z)$ -Kurven, die im CE-Modus, also mit einer nicht-konstanten Schwingungsamplitude, aufgenommen wurden, in Kraft-Distanz-Kurven umzurechnen. Eine solche Umrechnung sollte auch bei der hier vorliegenden Mischform der beiden Modi möglich sein, solange die tatsächliche Amplitude in einem bestimmten Abstand bekannt ist. Deshalb ist es erforderlich, die Abstandsabhängigkeit der wahren Schwingungsamplitude in Form einer  $A(z)$ -Kurve aufzuzeichnen. Es wird dabei mit Hilfe der  $A(z)$ -Kurve zunächst eine Reskalierung der Abstandsänderung vorgenommen, da sich der Abstand weniger stark ändert, wenn die Amplitude während der Annäherung sinkt.

Ist  $s$  der untere Umkehrpunkt der Oszillation des Federbalkens (vgl. Abbildung 6.4), so gilt:

$$s = z - A(z) \quad (6.1)$$

Mit Gleichung 1.28 lässt sich nun die normalisierte Frequenzverschiebung  $\gamma(s)$  berechnen. Aus Gleichung 1.27 wird dann:

$$F(s) \cong \sqrt{2} \frac{\partial}{\partial s} \int_s^\infty \frac{\gamma(z')}{\sqrt{z' - s}} dz' \quad (6.2)$$

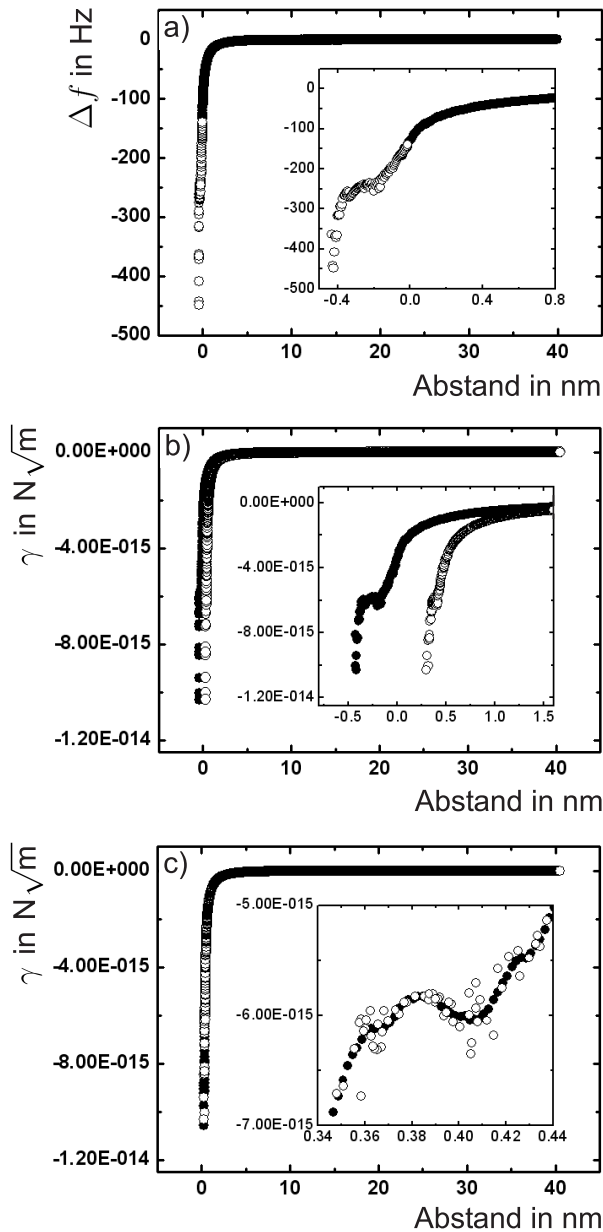
Der Gültigkeitsbereich ist auch hier auf Amplituden beschränkt, die groß sind im Vergleich zur Reichweite der Wechselwirkungen.

Da im vorliegenden Fall 4096 Kurven für einen Datensatz umgerechnet werden müssen, ist die Automatisierung der Umrechnung mittels einer Software erforderlich. Dafür wurden im Rahmen dieser Doktorarbeit einige Programmroutinen unter MATLAB<sup>†</sup> geschrieben, die eine schnelle Umrechnung der  $\Delta f(x, y, z)$ -Felder erlauben. Im Folgenden werden nun die einzelnen Umrechnungsschritte, die von der geschriebenen Software für alle Kurven durchgeführt werden, erläutert.

- 1.) Zusammenfügen der 4096 Nahbereichskurven mit der Fernbereichskurve.
- 2.) Umwandeln der so entstandenen Gesamtkurven in  $\gamma(z)$ -Kurven (siehe Glg. 1.28).
- 3.) Berechnung einer neuen  $z$ -Skala unter Einbeziehung der Amplitude nach Glg. 6.1.
- 4.) Glättung der Daten und Erstellung einer äquidistant verteilten  $z$ -Skala mit entsprechender Interpolation der  $\gamma(z)$ -Werte.
- 5.) Umrechnung der  $\gamma(z)$ -Kurven in  $E_{\text{SP}}(z)$ -Kurven.
- 6.) Glättung der Daten.
- 7.) Ableitung der Potentialkurven nach  $z$ , um  $F_z(z)$ -Kurven zu erhalten.
- 8.) Erstellung der dreidimensionalen Felder  $E_{\text{SP}}(x, y, z)$  und  $F_z(x, y, z)$  aus den gewonnenen  $E_{\text{SP}}(z)$ - bzw.  $F_z(z)$ -Kurven.

---

<sup>†</sup>MATLAB ist eine Programmiersprache der Firma The MathWorks, Inc., die sich besonders gut zur Arbeit mit Matrizen eignet. Auch die grafische Darstellung der Schnitte durch die Spektroskopiefelder in diesem Kapitel wurde unter MATLAB realisiert. Es wurde die Version 7.3.0 verwendet.



**Abbildung 6.5:** Demonstration der Umrechnungsroutine am Beispiel einer einzelnen  $\Delta f(z)$ -Kurve. In den Graphen wird jeweils zusätzlich eine Ausschnittsvergrößerung der Kurve gezeigt. In a) wird aus einer der 4096 Kurven aus dem Spektroskopiefeld im Nahbereich der Probe und der Fernbereichskurve (markiert durch die Symbole  $\circ$  bzw.  $\bullet$ ), eine Gesamtkurve zusammengefügt. Die gemessene Frequenzverschiebung geht in diesem Fall bis ca. -450 Hz. Diese Kurve wird in b) in eine  $\gamma(z)$ -Kurve umgerechnet (markiert durch  $\bullet$ ). Die  $z$ -Skala wird mit Hilfe von Gleichung 6.1 umgerechnet. Dadurch erhält die Kurve einen anderen Verlauf ( $\circ$ -Symbole). Die neue  $z$ -Skala der Kurve wurde hier zusätzlich in den positiven Bereich geschoben, was allerdings keine Auswirkungen auf die weitere Umrechnung hat. In c) wird die  $\gamma(z)$ -Kurve aus b) (hier als  $\circ$  markiert) geglättet und es wird eine Interpolation durchgeführt. Dadurch wird eine Abstandsskala mit äquidistant verteilten Punkten gewonnen. Die daraus resultierende  $\gamma(z)$ -Kurve gibt den Verlauf der ursprünglichen Kurve wieder (siehe  $\bullet$ -Symbole).

Es folgt nun eine genauere Diskussion der Punkte. Insbesondere wird dabei auf die Abbildungen 6.5 und 6.6 Bezug genommen, in der einige wichtige Umrechnungsschritte an Hand einer Beispielkurve vorgestellt werden.

zu 1.) Wie in Kapitel 6.2 beschrieben, wurde nur eine Kurve aufgenommen, die im Abstandsbereich bis 40 nm auch die langreichweitigen Wechselwirkungen abdeckt. Zur weiteren Auswertung wird jeder der 4096 Nahbereichskurven mit dieser Kurve zusammengefügt. Da es einen deutlichen



Überlapp zwischen der Nahbereichskurve und der Fernbereichskurve gibt, ist ein Zusammenfügen problemlos möglich (siehe Abbildung 6.5 a)). Die gezeigte Beispielkurve weist eine maximale Frequenzverschiebung von ca. -450 Hz auf. Betrachtet man alle Kurven des Feldes, variieren die erreichten Frequenzverschiebungen von ca. -250 Hz bis -600 Hz. Damit wird hier zwar das Minimum der  $\Delta f(z)$ -Kurve nicht überschritten (Bereich 5 in Abbildung 6.1) aber der Bereich 4 ist nun zugänglich, der mit einer Topographiemessung nicht erreichbar gewesen wäre.

Aus Abbildung 6.5 wird zudem ersichtlich, dass bei der hier untersuchten Messung der Großteil der Signaländerung in einem Bereich  $< 1$  nm auftritt. Damit ist die Reichweite der Wechselwirkung, die hier vorrangig gemessen wird, kleiner als die verwendete Amplitude, so dass hier die Umrechnung nach dem oben vorgestellten Algorithmus durchgeführt werden kann.

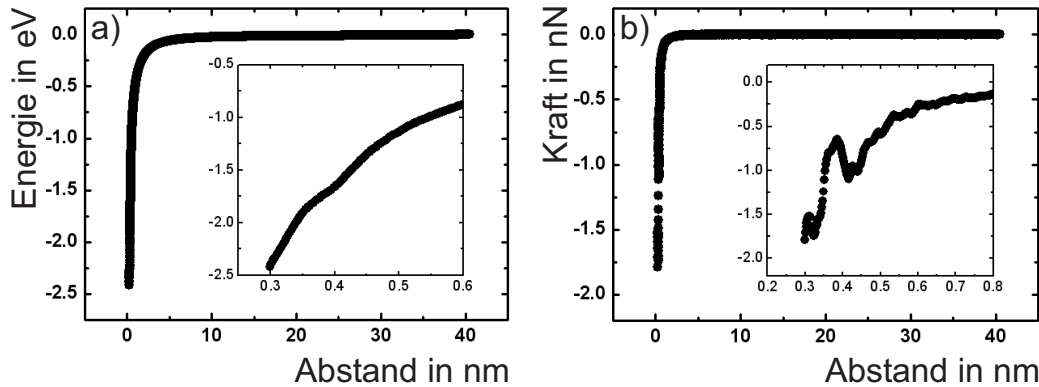
zu 2.) Die Kurve wird nach Gleichung 1.28 in die normalisierte Frequenzverschiebung umgewandelt, wobei für jeden Punkt  $z$  die momentane Amplitude  $A(z)$  zur Berechnung von  $\gamma(z)$  verwendet wurde.

zu 3.) Mit der Gleichung 6.1 wird aus der eingestellten  $z$ -Position und der momentanen Amplitude  $A(z)$  die wahre Abstandsänderung  $s$  zwischen dem vordersten Spitzenende und der Probenoberfläche berechnet und im Folgenden als  $z$ -Skala verwendet (vgl. Abb. 6.4). In Abbildung 6.5 b) wird der unterschiedliche Kurvenverlauf anhand zweier  $\gamma(z)$ -Kurven dargestellt, bei denen eine solche Umrechnung der  $z$ -Skala vorgenommen wurde. Da die Amplitudenänderung lokal variiert, ist der kleinste Spitze-Probe-Abstand danach nicht mehr für alle Spektroskopiekurven gleich.

zu 4.) Es ist zu beachten, dass nach Schritt 3.) im allgemeinen eine Kurve resultiert, deren  $z$ -Werte nicht mehr äquidistant verteilt sind. Da sich die  $A(z)$ -Kurven für die 4096 Kurven alle voneinander unterscheiden, gibt es nach dieser Umrechnung keine zwei identischen  $z$ -Skalen mehr innerhalb des Datensatzes. Auch die Länge der neuen  $z$ -Achsen ist bei verschiedenen Kurven unterschiedlich, da die Amplitude in Abhängigkeit von der Position auf der Probe unterschiedlich stark einbricht.

Für die weitere Auswertung wurde nun aus praktischen Erwägungen eine Interpolation vorgenommen, um wieder eine einzelne äquidistante  $z$ -Skala zu erhalten, die für alle Kurven identisch ist. Um Artefakte zu vermeiden, wird dabei keine Extrapolation über das Ende der jeweiligen Kurve hinaus durchgeführt.

Als Interpolationsmethode wurde eine stückweise Hermitesche Interpolation gewählt, die bei den gegebenen Daten zu sehr guten Ergebnissen führt. In Abbildung 6.5 c) ist das Resultat einer solchen Interpolation zu sehen. Vor der Interpolation wurde hier eine leichte Glättung der Kurve mit einem Savitzky-Golay-Filter vorgenommen, die zu einer Verringerung des Rauschens führt,



**Abbildung 6.6:** In a) wird das Wechselwirkungspotential  $E_{\text{SP}}(z)$  und in b) die vertikale Kraft  $F_z(z) = -dE_{\text{SP}}/dz$  des in Abb. 6.5 gezeigten Datensatzes gezeigt. Die Vergrößerungen zeigen jeweils den Nahbereich. Insbesondere in (b) fällt der unregelmäßige Verlauf im Nahbereich auf. Dieser Aspekt wird in Kapitel 6.6 diskutiert.

aber signifikante Signaländerungen nicht verfälscht. Die Intensität der Glättung kann dabei problemlos an die jeweilige Messsituation angepasst werden. Für die hier diskutierte Auswertung wurden verschiedene Parameter für die durchgeführte Glättung getestet, um gut geeignete Parameter zu finden, die die Rohdaten nicht verfälschen bei gleichzeitig guter Rauschunterdrückung.

zu 5.) In Abbildung 6.6 a) wird eine Kurve gezeigt, die durch die beschriebene Auswertung erstellt wurde. Sie zeigt das Wechselwirkungspotential zwischen der Spitze und der Probe.

zu 6.) Da die im Anschluss an diesen Umrechnungsschritt folgende Ableitung der Potentialkurve nach  $z$  zu einem starken Anstieg des Rauschniveaus führt, wurde an dieser Stelle nochmals eine Glättung mittels eines Savitzky-Golay-Filters durchgeführt. Auch hier wurde in umfangreichen Tests überprüft, dass keine Verfälschung der eigentlichen Rohdaten erfolgt.

zu 7.) Durch Differenzierung der  $E_{\text{SP}}(z)$ -Kurve nach  $z$  erhält man eine  $F_z(z)$ -Kurve wie sie in Abbildung 6.6 b) zu sehen ist.

zu 8.) Nachdem alle Kurven umgerechnet worden sind, kann daraus ein dreidimensionaler Quader erstellt werden, so dass das Potential und die Kraft zwischen Spitze und Probe an allen Orten innerhalb dieses Quaders oberhalb der Probe bekannt sind. Alle Kurven verfügen jetzt über eine gemeinsame  $z$ -Skala. Dadurch ist es problemlos möglich, Schnitte durch den Datenquader zu legen, die eine genauere Untersuchung des Feldes erlauben.

## 6.4 Berechnung der dissipierten Energie

Neben der Betrachtung der Potentiallandschaft und der dreidimensionalen Kraftlandkarte oberhalb der Probenoberfläche kann auch die Energie betrachtet werden, die infolge von nicht-konservativen Wechselwirkungen zwischen Spitze und Probe dissipiert wird (vgl. Kapitel 1.2.6). Betrachtet man den CA-Modus, so kann für den Zusammenhang zwischen der dissipierten Energie und der Anregungsamplitude nach [50] die folgende Formel angegeben werden<sup>†</sup>:

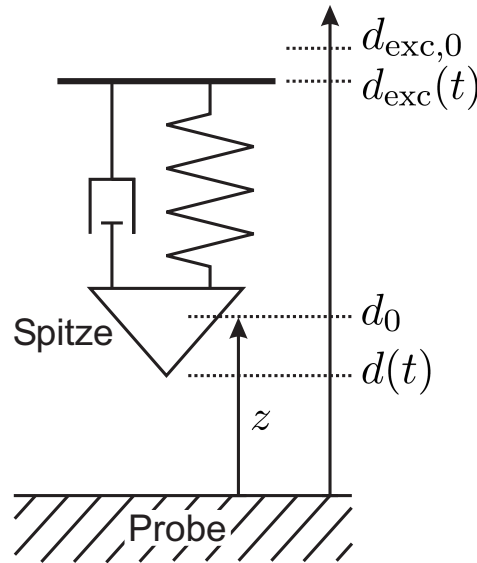
$$a_{\text{exc}} = A_0 \frac{\Delta E_{\text{Diss,CA}} + \Delta E_0}{2\pi E_{\text{FB}}} \quad (6.3)$$

Es sind hier  $A_0$  die Schwingungsamplitude des Federbalkens (mit  $A_0 = A(z) = \text{const}$ , da im CA-Modus gearbeitet wird),  $\Delta E_{\text{Diss,CA}}$  die Energie, die infolge von Spitze-Probe-Wechselwirkungen dissipiert wird,  $\Delta E_0$  die Schwingungsenergie, die pro Schwingungszyklus aufgrund der intrinsischen Dämpfung des Federbalkens verloren geht und  $E_{\text{FB}}$  die im Federbalken gespeicherte Schwingungsenergie (siehe Gleichung 1.30 in Kapitel 1.2.6). Da sich im CA-Modus sowohl  $\Delta E_0$  als auch  $E_{\text{FB}}$  während einer Spektroskopiekurve nicht verändern, führt eine große dissipative Wechselwirkung  $\Delta E_{\text{Diss,CA}}$  dazu, dass eine deutliche Vergrößerung der Anregungsamplitude erforderlich ist, um die Amplitude konstant zu halten. Da der Amplitudenregelkreis eine gewisse Trägheit aufweist, ist mit der Erhöhung der Anregungsamplitude eine Zeitverzögerung verbunden, die sich nachteilig auf die Messdauer von Kurven im reinen CA-Modus auswirkt. Dieser Faktor kommt zu der Zeitverzögerung hinzu, die durch die hohe Güte des Federbalkens verursacht wird (vgl. Kapitel 6.2).

Bei der vorliegenden Arbeit wurden Messzeiten für die einzelnen Kurven verwendet, bei denen die Amplitude trotz Amplitudenregelkreises aufgrund der dissipativen Wechselwirkungen eingebrochen ist. Im Folgenden wird gezeigt, dass die Dissipationsenergie dennoch berechnet werden kann, sofern die Amplitude  $A(z)$  und die Anregungsamplitude  $a_{\text{exc}}(z)$  für alle Abstände  $z$  bekannt sind.

Abhängig von dem verwendeten Messmodus wird die Dissipationsenergie auf unterschiedliche Weise berechnet. Bei Messungen im CE-Modus führt die Energiedissipation zur Abnahme der Schwingungsamplitude  $A$  in Abhängigkeit des Abstandes, während die Anregungsamplitude konstant gehalten wird. Im CA-Modus dagegen ist  $A$  konstant, während die Anregungsamplitude  $a_{\text{exc}}$  bei steigender Dissipation ebenfalls zunimmt. Damit wird für

<sup>†</sup>Die hier aufgeführte Gleichung lässt sich auch aus Gleichung 6.13 herleiten.



**Abbildung 6.7:** Der Federbalken als gedämpfter harmonischer Oszillator. Die mit der Probe wechselwirkende Spitze ist über eine Feder mit der Federkonstanten  $c_z$  und einem Dämpfungselement mit dem Dämpfungsfaktor  $\alpha$  (siehe Gleichung 6.9) mit dem Anregungspiezo verbunden. Wird kein Anregungssignal an das Piezoelement angelegt, so befindet es sich an der Position  $d_{\text{exc},0}$ , während die Spitze die Position  $d_0$  einnimmt. Gezeigt wird der Zustand zum Zeitpunkt  $t$ , an dem der Anregungspiezo um  $d_{\text{exc}}(t)$  und die Spitze um  $d(t)$  ausgelenkt sind. Der Abstand zwischen der Ruhelage der Spitze und der Probenoberfläche ist  $z$ .

die Berechnung der Energiedissipation beim CE-Modus die  $A(z)$ -Kurve und beim CA-Modus die  $a_{\text{exc}}(z)$ -Kurve ausgewertet.

Für die hier untersuchte Messung besteht eine besondere Komplikation bei der Berechnung der dissipierten Energie, da eine Mischform aus CE- und CA-Modus vorliegt, die bislang nicht explizit in der Literatur diskutiert wurde. Bei diesem Modus sind weder die Anregungsamplitude  $a_{\text{exc}}$  noch die Schwingungsamplitude  $A$  in Abhängigkeit von der Spitze-Probe-Entfernung konstant, so dass die üblicherweise verwendeten Formeln aus der Literatur (vgl. Glg. 6.13 und Glg. 6.14) hier nicht verwendet werden können. Im Folgenden wird nun die Herleitung einer Formel beschrieben, die auch eine Berechnung der Dissipationsenergie im hier vorliegenden Modus erlaubt. Die Herleitung orientiert sich dabei an [102–104].

Es wird zunächst eine Bewegungsgleichung aufgestellt, die den schwingenden Federbalken beschreibt. Es gilt:

$$m_{\text{eff}}\ddot{d}(t) + \alpha\dot{d}(t) + c_z d(t) = F_{\text{SP}}(z + d(t)) + F_{\text{exc}}(t) \quad (6.4)$$

Hier bezeichnet  $d(t)$  die zeitlich abhängige Auslenkung des Federbalkens

und  $z$  den Abstand des Federbalkens in Ruhelage von der Probenoberfläche (siehe dazu auch Abbildung 6.7). Des Weiteren gilt für die effektive Masse  $m_{\text{eff}} = c_z/(2\pi f_0)^2$  und für den Dämpfungsfaktor  $\alpha = c_z/(2\pi f Q_0)$ .

Zwischen Spitze und Probe wirkt dabei die Kraft  $F_{\text{SP}}$ , während zur Anregung der Schwingung eine Kraft  $F_{\text{exc}}$  verwendet wird. Da es sich bei dem vorliegenden System um einen selbstangeregten Oszillator handelt, wird das Schwingungssignal des Federbalkens von der Auslenkungsdetektion in den Amplitudenregler gegeben. Hier wird es mit einer Zeitverzögerung  $t_{\text{Phase}}$  und einer Verstärkung  $V$  versehen, um anschließend als  $a_{\text{exc}}$  zur Anregung des Federbalkens zu dienen (vgl. hierzu auch Kapitel 1.2.1).

Es gilt damit:  $V \cdot A = a_{\text{exc}}$ . Daraus lässt sich für  $F_{\text{exc}}$  die folgende Beziehung angeben:

$$F_{\text{exc}}(t) = \frac{a_{\text{exc}}}{A} c_z d(t - t_{\text{Phase}}) \quad (6.5)$$

Um die Energie zu berechnen, die durch Spitze-Probe-Wechselwirkungen dissipiert wird, kann eine Energiebilanz durchgeführt werden:

$$\overline{P}_{\text{in}} = \overline{P}_0 + \overline{P}_{\text{SP}} \quad (6.6)$$

Die Leistung, die dem System zugeführt wird, ist hier  $\overline{P}_{\text{in}}$ . Die Leistung  $\overline{P}_0$  ist die Verlustleistung, die durch die intrinsische Dämpfung des Federbalkens verloren geht, während  $\overline{P}_{\text{SP}}$  die gesuchte dissipierte Leistung ist. Die Leistung  $\overline{P}_{\text{in}}$  wird dem System durch die Anregung mit dem Anregungspiezo zugeführt. Für  $P_{\text{in}}(t)$  kann der folgende Ausdruck angegeben werden:

$$P_{\text{in}}(t) = F_{\text{exc}}(t) \dot{d}_{\text{exc}}(t) = c_z [d(t) - d_{\text{exc}}(t)] \dot{d}_{\text{exc}}(t) \quad (6.7)$$

Unter der Annahme, dass eine harmonische Anregung vorliegt, kann man ansetzen:  $d_{\text{exc}}(t) = a_{\text{exc}} \cos(2\pi ft)$ . Die Auslenkung der Spitze am Ende des Federbalkens gehorcht der folgenden Beziehung:  $d(t) = A \cos(2\pi ft - \varphi)$ . Dabei stellt  $\varphi$  die Phasenverschiebung dar mit  $0 \leq \varphi \leq \pi$ . Damit lässt sich nun die Leistung  $\overline{P}_{\text{in}}$  berechnen:

$$\overline{P}_{\text{in}} = \frac{1}{T} \int_0^T P_{\text{in}}(t) dt = c_z \pi f a_{\text{exc}} A \sin(\varphi) \quad (6.8)$$

Der maximale Übertrag der Energie liegt demnach bei einer Phasenverschiebung von  $\varphi = \pi/2$  vor.

Die intrinsische Dämpfung  $P_0$  kann wie folgt berechnet werden:

$$P_0 = \frac{1}{2}\alpha(\dot{d}(t))^2 \quad (6.9)$$

Daraus lässt sich wiederum die mittlere intrinsische Verlustleistung bestimmen:

$$\bar{P}_0 = \frac{1}{2}\alpha\omega^2 A^2 = 2\alpha\pi^2 f^2 A^2 \quad (6.10)$$

Aus den Gleichungen 6.6, 6.8 und 6.10 lässt sich damit für die dissipierte Energie nun die folgende Gleichung angeben:

$$\bar{P}_{\text{SP}} = \bar{P}_{\text{in}} - \bar{P}_0 = \frac{\pi c_z f}{Q_0} \left( Q_0 a_{\text{exc}} A \sin \varphi - A^2 \frac{f}{f_0} \right) \quad (6.11)$$

Diese Formel ist für alle dynamischen Modi der Rasterkraftmikroskopie gültig, solange eine harmonische Anregung vorliegt. Betrachtet man den Frequenzmodulationsmodus mit selbstangeregter Federbalkenoszillation, können einige Annahmen gemacht werden, mit denen die Formel weiter vereinfacht werden kann. Es gilt in diesem Fall  $\varphi = \pi/2$  und  $f \approx f_0$ . Des Weiteren gilt dann für den ungestörten harmonischen Oszillator in großem Abstand zur Probe:  $a_{\text{exc},0} = A_0/Q_0$ . Mit  $a_{\text{exc}} = a_{\text{exc}} \cdot \frac{a_{\text{exc},0}}{a_{\text{exc},0}}$  und  $\bar{P}_{\text{SP}} = \Delta E_{\text{Diss}} \cdot f_0$  erhält man so:

$$\Delta E_{\text{Diss}} = \frac{\pi c_z}{Q_0} \left( \frac{a_{\text{exc}}}{a_{\text{exc},0}} A_0 A - A^2 \right) \quad (6.12)$$

Diese Formel kann nun zur Berechnung der dissipierten Energie verwendet werden. Damit ist auch die Auswertung der hier durchgeführten Messungen im beschriebenen Mischmodus aus CE- und CA-Modus möglich. Es gehen sowohl  $A_0$ , also die Amplitude in großer Entfernung, als auch die momentane Amplitude  $A$  in die Berechnung ein. Dabei ist es von Vorteil, dass in Gleichung 6.12 das Verhältnis der Anregungsamplituden  $a_{\text{exc}}$  und  $a_{\text{exc},0}$  verwendet wird. Damit ist es ausreichend, wenn ein Signal vorliegt, welches proportional zu der Anregungsamplitude ist. So können z.B. die Spannungen, die an den Anregungspiezo gegeben werden, direkt für die Berechnung verwendet werden, sofern die Auslenkung des Piezoelements einen linearen Zusammenhang mit der angelegten Spannung aufweist.

Es ist zu beachten, dass die aus der Literatur bekannten Formeln für den CE- bzw. den CA-Modus Spezialfälle dieser Gleichung sind. Mit  $A = A_0$  gilt für den CA-Modus:

$$\Delta E_{\text{Diss,CA}} = \frac{\pi c_z A^2}{Q_0} \left( \frac{a_{\text{exc}}}{a_{\text{exc},0}} - 1 \right) \quad (6.13)$$

Für den CE-Modus lässt sich Gleichung 6.12 mit der Annahme  $a_{\text{exc}} = a_{\text{exc},0}$  zu der folgenden Formel umformen:

$$\Delta E_{\text{Diss,CE}} = \pi c_z \left( A a_{\text{exc}} - \frac{A^2}{Q_0} \right) \quad (6.14)$$

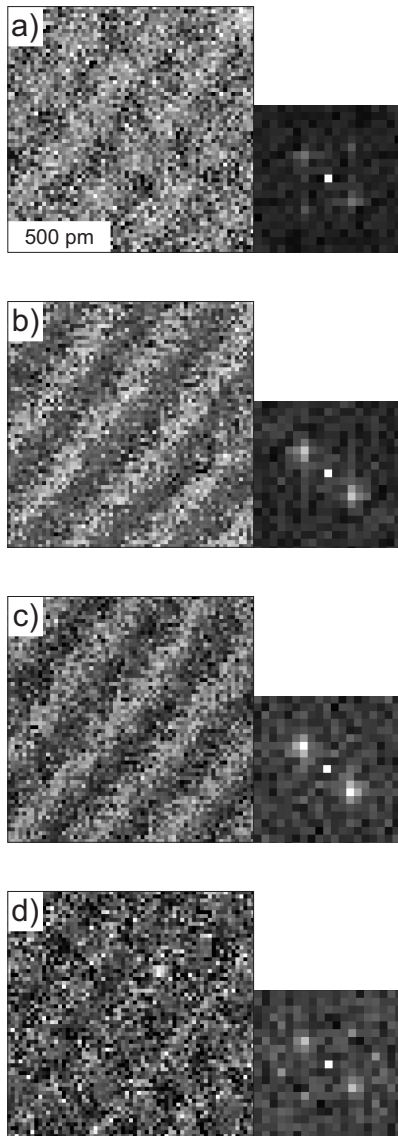
Die Gleichungen 6.13 und 6.14 entsprechen den aus der Literatur bekannten Beziehungen [42, 43, 50, 102–104].

Analog zu der Betrachtung für den CE-Modus in [43] wird die Dissipationsenergie im Folgenden auf die neue  $z$ -Skala bezogen, die auch in Kapitel 6.3 verwendet wurde (siehe Gleichung 6.1). Damit wird also  $\Delta E_{\text{Diss}}(s)$  berechnet. Die weitere Umrechnung erfolgt analog zu der in Kapitel 6.3 für die Behandlung der  $\gamma$ -Kurven beschriebenen Methode. Ähnlich wie unter Punkt 4.) in Kapitel 6.3 beschrieben, wird auch hier eine Interpolation nach der Nacheichung der  $z$ -Skala vorgenommen, mit der man eine einzige  $z$ -Skala erhält, die äquidistant verteilte Punkte aufweist und die für alle  $\Delta E_{\text{Diss}}$ -Kurven gültig ist. Des Weiteren ist die so erhaltene  $z$ -Skala identisch mit der Skala, die für die Kraft- und Potentialberechnung berechnet wurde, so dass damit direkte Vergleiche zwischen den Spektroskopiefeldern möglich sind. Die so erhaltenen dreidimensionalen Potential-, Kraft-, und Dissipationsenergiespektroskopiefelder werden im Folgenden näher untersucht.

## 6.5 Abstandsabhängige Untersuchung mit Hinblick auf die magnetische Austauschkraft

Sofern eine magnetische Austauschkraft detektiert wird, sollte der entsprechende Kontrast bei sehr kleinen Spitze-Probe-Abständen zusätzlich zur chemischen Auflösung des atomaren Gitters auftauchen. In Abbildung 5.1 a) und b) wurde bereits die Abstandsabhängigkeit der magnetischen Austauschkraft für zwei unterschiedliche Spitze-Probe-Abstände demonstriert. Um zu untersuchen, ob auch in der hier vorgestellten Spektroskopiemessreihe eine Messung der magnetischen Austauschkraft nachgewiesen werden kann, werden in Abbildung 6.8 mehrere horizontale Schnitte durch das  $F_z(x, y, z)$ -Feld gezeigt, die unterschiedlichen Messabständen entsprechen. Zusätzlich





**Abbildung 6.8:** Horizontale Schnitte durch den  $F_z(x, y, z)$ -Datenquader mit den dazugehörigen Fourierbildern. Im Vergleich zu a) wurde der Messabstand bei den Bildern b), c) und d) um 36, 70 bzw. 112 pm verkleinert. Die Abbildung des atomaren Gitters unterscheidet sich in Abhängigkeit vom Messabstand. Bei b) und c) sind nur die atomaren Reihen entlang einer Richtung deutlich zu erkennen, während die Periodizität senkrecht dazu kaum ausgeprägt ist. In d), also bei einem sehr kleinem Messabstand, ist die atomare Auflösung im  $F_z(x, y)$ -Bild nur sehr schwach ausgeprägt. Die Fourierbilder verdeutlichen die unterschiedliche Abbildung des atomaren Gitters. Es finden sich auch bei kleinen Messabständen keine Anzeichen für eine erfolgreiche Messung der magnetischen Austauschwechselwirkung. Der streifenartige Kontrast bei der Abbildung des atomaren Gitters wird in Kapitel 6.6 näher untersucht. Bildgröße:  $1,2 \times 1,2 \mu\text{m}^2$  bei einer Auflösung von  $64 \times 64$  Bildpunkten. Messparameter:  $f_0 = 156.118 \text{ Hz}$ ,  $A = \pm 2,5 \text{ nm}$ ,  $c_z = 33 \text{ N/m}$ ,  $Q_0 = 35.000$ ,  $B = 1 \text{ T}$ , Messsonde: SSS-NCL, Ni/SiO.

sind neben den  $F_z(x, y)$ -Bildern auch die entsprechenden Fourierbilder zu sehen. In einem Abstand zur Probe ist die atomare Auflösung dabei nur schwach sichtbar, wobei die Periodizität entlang der  $[110]$ -Richtung stärker ausgeprägt dargestellt wird als entlang der  $[1\bar{1}0]$ -Richtung (Abbildung 6.8 a)). Dies wird auch anhand des Fourierbildes deutlich, bei dem das linke obere und das rechte untere Maximum stärker ausgeprägt sind als die anderen beiden Maxima, die mit der chemischen Einheitszelle korrespondieren. Die Anzahl der Bildpunkte der Fourierbilder ist recht gering im Vergleich zu den Fourierbildern, die in Kapitel 5 gezeigt wurden. Dies liegt begründet im

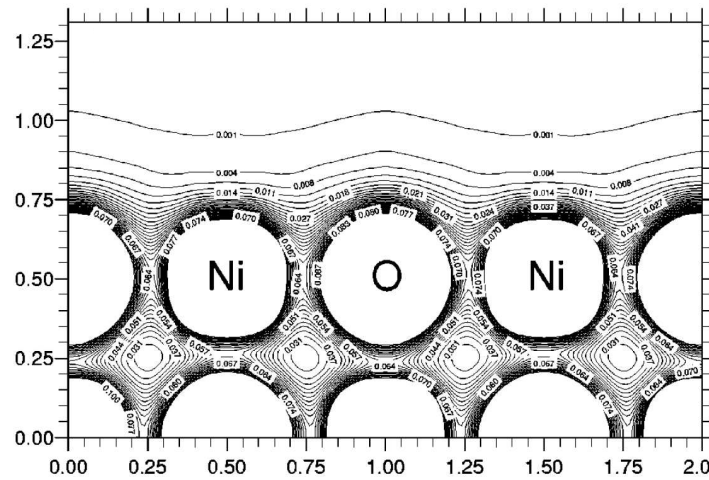
relativ kleinen Bildbereich sowie an der verhältnismäßig geringen Zahl der Bildpunkte der Ursprungsbilder. Bei einer Verkleinerung des Messabstandes in b) und c) verschwindet die Periodizität entlang der  $[1\bar{1}0]$ -Richtung nahezu völlig, während die atomaren Reihen der anderen Richtung einen deutlichen Kontrast zeigen. Die unterste, lückenlose Lage des Spektroskopiefeldes wird in Bild d) gezeigt<sup>†</sup>. Bei dem hier realisierten kleinen Spitze-Probe-Abstand ist die atomare Auflösung nur schemenhaft zu erkennen, wobei im Fourierbild wieder alle vier Punkte zu sehen sind, die mit der chemischen Einheitszelle korrespondieren. Die vor allem in den Bildern b) und c) beobachtete, asymmetrische Abbildung der Oberfläche wird im nun folgenden Abschnitt 6.6 näher diskutiert.

Trotz des anzunehmenden kleinen Messabstandes in den gezeigten Bildern sind keine signifikanten Zusatzmaxima in den Fourierbildern zu erkennen, welche auf eine Messung der magnetischen Austauschwechselwirkung hinweisen (siehe Kapitel 5.2). Zusätzlich zu den hier gezeigten  $F_z(x, y)$ -Bildern wurden auch die  $E_{SP}(x, y)$ - und die  $\Delta E_{Diss}(x, y)$ -Bilder sowie die Rohdatenkanäle  $\Delta f(x, y)$ ,  $A(x, y)$  und  $a_{exc}(x, y)$  bei verschiedenen Abständen untersucht. Auch hier zeigt sich kein Anzeichen einer Supermodulation. Eine erfolgreiche Abbildung der magnetischen Einheitszelle ist in diesem Fall also nicht gelungen. Mögliche Erklärungen dafür wurden bereits in Kapitel 5 diskutiert.

## 6.6 Charakterisierung des vordersten Spitzenendes an Hand des dreidimensionalen Spektroskopiefeldes

Während bei der bisherigen Diskussion die Abbildung der Oberflächeneigenschaften der Probe im Vordergrund stand, ist es ebenso möglich, Rückschlüsse über das vorderste Spitzenende zu gewinnen. Tatsächlich spiegelt der Abbildungsprozess sowohl die Eigenschaften der Probe als auch der Spitze wider. Das wird sofort bei Betrachtung der horizontalen Schnitte in Abbildung 6.8 deutlich. Der ausgeprägte streifenartige Kontrast in b) und c) entspricht offensichtlich nicht der  $(1 \times 1)$ -Symmetrie der quadratischen Oberflächeneinheitszelle, sondern ist den Eigenschaften der Spitze zuzuschreiben. Im Folgenden wird nun das periodische Potential, das durch die atomare Anordnung der Nickel- und Sauerstoffatome an der  $(001)$ -Oberfläche des Nickeloxids ge-

<sup>†</sup>Für kleinere Abstände liegen nicht in allen Spektroskopiekurven Punkte vor, so dass dafür keine vollständigen Bilder gezeigt werden können (vgl. Kapitel 6.3).

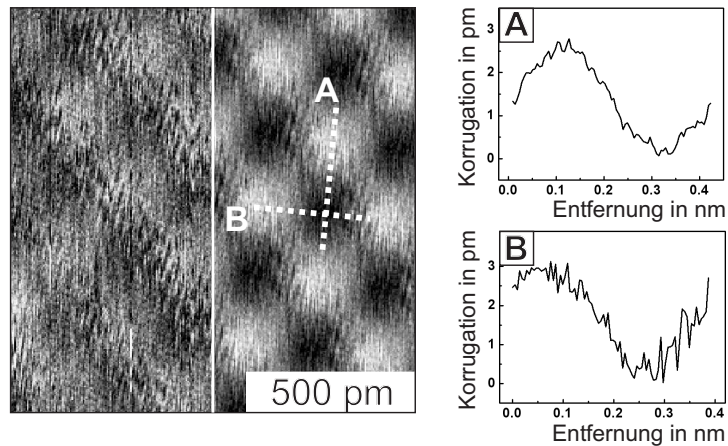


**Abbildung 6.9:** Berechnete Verteilung der Valenzelektronenladungsdichte an der NiO(001)-Oberfläche (aus [97]). Nimmt man an, dass bei der Abbildung mit dem Rasterkraftmikroskop im Wesentlichen die hier gezeigte Ladungsdichteverteilung wiedergegeben wird, so ist eine symmetrische Abbildung oberhalb der Sauerstoff- und der Nickelatome zu erwarten. Dabei ist die Ladungsdichte größer oberhalb der Sauerstoffatome.

bildet wird, verwendet, um das für die atomare Auflösung verantwortliche, vorderste Spitzenende zu charakterisieren.

Betrachtet man den Abbildungsprozess mit einem Rasterkraftmikroskop, so wird im Wesentlichen die totale Ladungsdichteverteilung der Probenoberfläche gemessen, sofern der Einfluss der Spitze vernachlässigbar klein ist [105]. Numerische Rechnungen zeigen eine hohe Symmetrie der Ladungsdichteverteilung oberhalb der NiO(001)-Oberfläche [97] (siehe Abbildung 6.9). Daher ist diese Probe gut geeignet, um die Abbildungsmechanismen auf atomarer Skala näher zu betrachten und die so gewonnenen Messdaten mit theoretischen Rechnungen zu vergleichen.

Die Auswertung dreidimensionaler Spektroskopiefelder erlaubt dabei wesentlich bessere Einblicke in die Beschaffenheit der Spitze als dies mit Einzelspektroskopiekurven oder einfachen Topographiebildern möglich ist. Zur Verdeutlichung wird in Abbildung 6.10 ein Topographiebild gezeigt, das nach der Aufnahme des hier diskutierten Spektroskopiefeldes bei  $\Delta f = -175$  Hz gemessen wurde. Dabei wurde zwischen den beiden Messungen kein Spitzenwechsel detektiert. Neben dem Rohdatenbild wird auch eine Darstellung gezeigt, die aus der gemittelten Einheitszelle zusammengesetzt wurde und die ein deutlich kleineres Rauschniveau zeigt (vgl. Anhang A.3). Die im Vergleich mit anderen Bildern aus den vorangegangenen Kapiteln geringe Bildqualität des Rohdatenbildes ist auf die sehr kleine Korrugation zurückzuführen. Diese liegt hier bei ca. 2,7 pm, wobei das Rohdatenbild ein RMS-Rauschen von etwa



**Abbildung 6.10:** Topographiebild, aufgenommen im Anschluss an das Spektroskopiefeld. Die linke Bildhälfte zeigt die Rohdaten, während in der rechten Bildhälfte eine Mittelung des Gesamtbildes zu sehen ist (vgl. Anhang A.3). Die beiden Schnitte entlang der [100]-Richtung (A) bzw. der [010]-Richtung (B) zeigen vergleichbare Korrugationen, die im Bereich von ca. 2,7 pm liegen. Die Abbildung gibt also die  $(1 \times 1)$ -Symmetrie der chemischen Oberflächeneinheit wieder. Das Rauschen des Rohdatenbildes liegt bei etwa 1,7 pm und konnte durch die Mittelung auf ca. 0,4 pm gesenkt werden. Messparameter:  $\Delta f = -175$  Hz,  $f_0 = 156.118$  Hz,  $A = \pm 2,5$  nm,  $c_z = 33$  N/m,  $Q_0 = 35.000$ ,  $B = 1$  T, Messsonde: SSS-NCL, Ni/SiO.

1,7 pm aufweist. Die abgebildeten Schnittlinien entlang der [100]- bzw. der [010]-Richtung zeigen keinen signifikanten Unterschied, so dass von diesem Bild ausgehend auf eine symmetrische Spitze zu schließen wäre.

Für die Untersuchung der Spitzeneigenschaften mittels eines Spektroskopiefeldes ist es aufgrund der periodischen Struktur der NiO-Oberfläche ausreichend, eine einzelne gemittelte Oberflächeneinheit zu betrachten. Analog zum Mittelungsverfahren zur Bildauswertung, das z.B. in Abbildung 6.10 zum Einsatz kam und im Anhang A.3 näher beschrieben wird, kann auch über komplette Spektroskopiekurven an äquivalenten Punkten des Atomgitters gemittelt werden. Dadurch wird ein statistisches Rauschen in den Kurven signifikant gesenkt. Eine solche Analyse ist nur dann möglich, wenn wie im vorliegenden Fall die laterale Drift über den Bereich des gesamten Spektroskopiefeldes vernachlässigbar klein ist und es während der Messung keinen Spitzenwechsel gibt. Da für dieses Mittelungsverfahren keine Software verfügbar war, wurde eine entsprechende Routine unter MATLAB implementiert.

Für den in diesem Kapitel ausgewerteten Datensatz wurden die  $\Delta f(x, y, z)$ -,  $A(x, y, z)$ - und  $a_{exc}(x, y, z)$ -Matrizen vor der weiteren Umrechnung durch das beschriebene Mittelungsverfahren bearbeitet. Dabei entstand für die verschiedenen Datenkanäle aus den Matrizen mit  $64 \times 64$  Kurven je-

weils eine gemittelte Matrix mit  $14 \times 13$  Kurven, die für die anschließende Umrechnung in eine  $E_{\text{SP}}(x, y, z)$ -, eine  $F_z(x, y, z)$ -, bzw. eine  $\Delta E_{\text{Diss}}(x, y, z)$ -Matrix verwendet wurden. Zur besseren Darstellung der Periodizität der Oberfläche wurde die gemittelte Einheitszelle wieder zu einer Matrix aus  $64 \times 64$  Kurven zusammengefügt, ähnlich wie es in Anhang A.3 für Bilddaten beschrieben wird.

### 6.6.1 Betrachtung des $E_{\text{SP}}(x, y, z)$ - und des $F_z(x, y, z)$ -Feldes

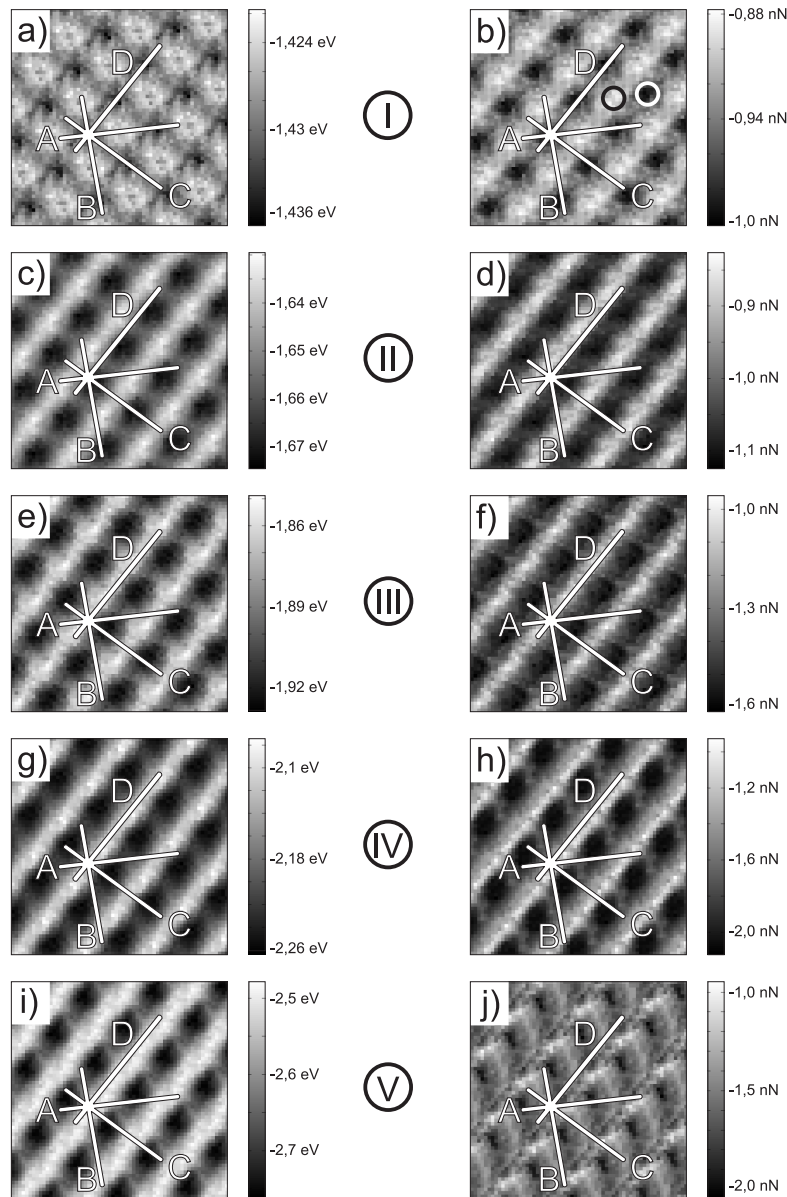
In Abbildung 6.11 ist das Resultat der beschriebenen Mittelung zu sehen. Ähnlich wie in Abbildung 6.8 in Kapitel 6.5 werden bei verschiedenen konstanten Spitze-Probe-Abständen horizontale Schnitte gezeigt, wobei hier in der linken Spalte  $E_{\text{SP}}(x, y)$ -Schnitte und in der rechten Spalte  $F_z(x, y)$ -Schnitte abgebildet sind. Der Vergleich zeigt, dass durch die Mittelung das Rauschen in den  $F_z(x, y)$ -Bildern gegenüber Abbildung 6.8 deutlich gesenkt werden konnte. Insbesondere liefert auch der Bereich sehr kleiner Spitze-Probe-Abstände klare Bilder (h) und j)) während in diesem Abstandsbereich in den  $F_z(x, y)$ -Schnitten ohne Mittelung die atomare Auflösung nur sehr schwach erkennbar ist (siehe Abbildung 6.8 d)). Der deutliche Unterschied erklärt sich daraus, dass durch das Senken des Rauschens vor der Umrechnung Folgefehler minimiert werden. Vor allem bei der Ableitung des Potentials nach  $z$  bei der Berechnung der Kraft wird ein kleines Rauschen in der Potentialkurve in deutliche Ausschläge in der Kraftkurve umgesetzt. Eine Minimierung des statistischen Rauschens vor der Umrechnung erweist sich also als besonders vorteilhaft.

Die Grauskalen der Bilder wurden unterschiedlich gewählt, um eine gute Sichtbarkeit der Bildmerkmale zu gewährleisten. Während z.B. bei den Schnitten durch das Kraftfeld zwischen dem hellsten und dem dunkelsten Bildpunkt in b) nur ca. 0,12 nN liegen, ist der Signalhub bei j) mit mehr als 1 nN am größten. Analog wurde auch bei den Schnitten durch das Wechselwirkungspotential verfahren.

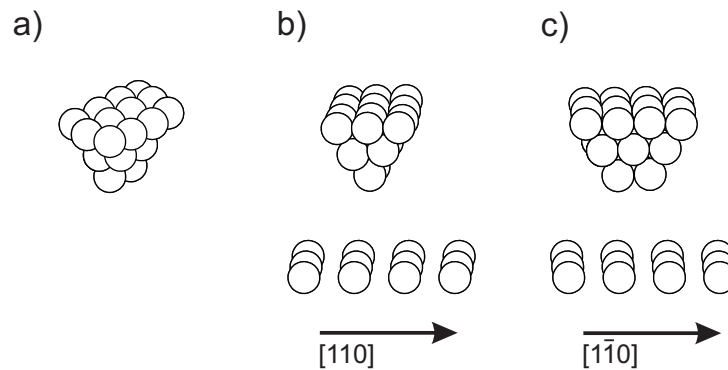
#### Streifenartiger Kontrast auf atomarer Skala

Bei Betrachtung der  $(x, y)$ -Schnitte wird deutlich, dass bei großen Spitze-Probe-Abständen die  $(1 \times 1)$ -Symmetrie der Oberflächeneinheitszelle klar wiedergegeben wird (Ebene I), wohingegen der atomare Kontrast entlang der  $[1\bar{1}0]$ -Richtung bei kleineren Spitze-Probe-Abständen (Ebene III und IV) abnimmt. Dieser Effekt, der auch schon in Abbildung 6.8 zu erkennen war, tritt sowohl beim Wechselwirkungspotentialfeld als auch beim Kraftfeld auf. Bild





**Abbildung 6.11:** Abstandsabhängige horizontale Schnitte durch das  $E_{SP}(x, y, z)$ - (links) und das  $F_z(x, y, z)$ -Feld (rechts). Dargestellt wird die regelmäßige, atomare Struktur von NiO(001), die aus der umgerechneten, gemittelten Einheitszelle erstellt wurde (siehe Text). Das Signal-zu-Rauschverhältnis der  $F_z(x, y)$ -Schnitte konnte durch die Mittelung im Vergleich zu Abbildung 6.8 deutlich verbessert werden. Während Ebene I dem Spitze-Probe-Abstand von Abbildung 6.8 a) entspricht, wurde der Abstand von I nach V verkleinert, wobei die  $z$ -Position der Schnitte aus Abb. 6.21 hervorgeht. Anders als bei großen Abständen (Ebene I), bei der die  $(1 \times 1)$ -Oberflächeneinheitszelle abgebildet wird, zeigen die beiden  $\langle 110 \rangle$ -Richtungen bei kleineren Abständen einen unterschiedlich starken atomaren Kontrast. Da für die Messung eine nickelbeschichtete Messspitze verwendet wurde, sollten die Sauerstoffatome an der Probenoberfläche in beiden Datenkanälen als dunkel dargestellte Minima zu sehen sein. Allerdings zeigen die Maxima und Minima in Abhängigkeit des Spitze-Probe-Abstandes eine laterale Verschiebung, die anhand der Schnitte A bis D in den Abbildungen 6.16 und 6.17 näher untersucht wird. In b) sind die Positionen der in Abbildung 6.21 untersuchten Spektroskopiekurven mit Kreisen markiert. Messparameter: siehe Abb. 6.8.



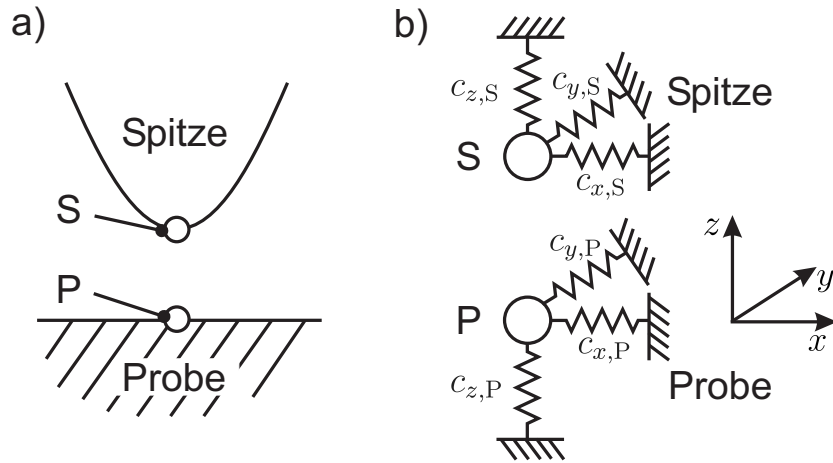
**Abbildung 6.12:** Erklärung des streifenartigen Kontrastes mittels einer keilförmigen Spitze. In a) ist eine perspektivische Ansicht des vordersten Spitzenendes einer möglichen, keilförmigen Spitze zu sehen. Bild b) und c) unterscheiden sich in der Blickrichtung, mit der die Spitze betrachtet wird. Entlang der  $[110]$ -Richtung ist atomare Auflösung möglich (Bild b)), während entlang der  $[1\bar{1}0]$ -Richtung nur ein schwacher atomarer Kontrast zu erwarten ist.

j), das bei einem sehr kleinen Spitze-Probe-Abstand aufgenommen wurde, zeigt dagegen eine atypische Abbildung der Atome, wobei die Periodizität entlang beider Gitterrichtungen deutlicher hervortritt als bei den Bildern, die im größeren Abstand aufgenommen wurden.

Für die unterschiedlichen Kontraste der atomaren Auflösung entlang der  $\langle 110 \rangle$ -Richtungen werden im Folgenden zwei Erklärungsmöglichkeiten diskutiert. Eine Erklärung basiert darauf, dass an der Abbildung der Oberfläche nicht nur das vorderste Spitzenatom beteiligt ist, sondern vielmehr eine keilförmige Spitze vorliegt, wie sie beispielhaft in Abbildung 6.12 gezeigt wird. Während die Spitze entlang der  $[110]$ -Richtung atomare Auflösung ermöglicht (Bild 6.12 b)), gelangt die Spitze entlang der  $[1\bar{1}0]$ -Richtung nicht in die Potentialminima, so dass die atomare Auflösung hier nur schwach ausgeprägt ist. Steht eines der kontrastgebenden Atome am vordersten Spitzeende etwas weiter hervor, so wird die Abbildung bei größeren Spitze-Probe-Abständen von diesem einzelnen Atom bestimmt, während bei kleineren Abständen beide Atome zur Abbildung beitragen. Mit einer solchen Spitze lässt sich also auch die Abstandsabhängigkeit des streifenartigen Kontrastes erklären.

Eine andere Erklärungsmöglichkeit ergibt sich aus Relaxationseffekten, die am vordersten Spitzeende eine wichtige Rolle spielen können. In Abbildung 6.13 wird ein entsprechendes Modell der Spitze skizziert. Im gezeigten Modell sind sowohl das vorderste Spitzenatom S als auch das damit wechselwirkende Probenatom P nicht starr mit der Spitze bzw. Probe verbunden, sondern weisen Bindungen auf, die hier modellhaft durch Federn symbolisiert

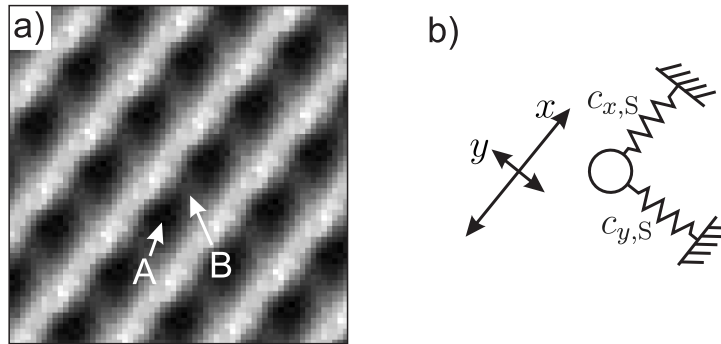




**Abbildung 6.13:** Modell für die Beschreibung der Relaxationen an Spitze und Probe. In a) ist eine Spitze oberhalb einer Probenoberfläche abgebildet, wobei das Atom S das vorderste Ende der Spitze bildet, das mit dem Probenatom P wechselwirkt. Bei näherer Betrachtung sind die Atome S und P nicht starr mit der restlichen Spitze verbunden, so dass es zu Relaxationen kommen kann. In b) werden die Bindungen zwischen den Atomen S und P und der Spitze bzw. der Probe modellhaft durch Federn entlang der drei Raumrichtungen beschrieben. Es werden hier die Federkonstanten  $c_{x,S}$ ,  $c_{y,S}$  und  $c_{z,S}$  für das Spitzenatom und  $c_{x,P}$ ,  $c_{y,P}$  und  $c_{z,P}$  für das Probenatom definiert. Sind die Federkonstanten groß und damit die Bindungen sehr stark im Vergleich zur Stärke der Spitze-Probe-Wechselwirkung, tastet das vorderste Spitzenatom im Wesentlichen das ungestörte periodische Potential ab, das durch die Anordnung der Oberflächenatome gegeben ist. Im Fall schwacher Bindungen kommt es zu nicht-vernachlässigbaren Relaxationen der Atome S und P, wodurch die Abbildung der Probenoberfläche deutlich beeinflusst wird. Nimmt man große Federkonstanten für  $c_{x,P}$ ,  $c_{y,P}$  und  $c_{z,P}$  an, so können bei der Messung auf einer bekannten Probenoberfläche Rückschlüsse über die Bindungen des vordersten Spitzenatoms gewonnen werden. Die hier angenommene harmonische Näherung mit einem parabolischen Potential ist nur für geringe Verschiebungen der Atome S und P aus ihren Gleichgewichtslagen gültig.

sind. Im Fall weicher Federn an Spitze und Probe kommt es zu deutlichen Relaxationen bei der Annäherung der Spitze an die Probe. Daraus ergeben sich zwei wichtige Konsequenzen: Zum einen ist damit der Abstand zwischen dem vordersten Spitzenatom und dem Probenatom nicht mehr genau bekannt<sup>†</sup>. Zum anderen weichen die gemessenen Spitze-Probe-Wechselwirkungen von den Wechselwirkungen ab, die bei einer starren Spitze und einer starren Probe zu erwarten wären. Die Messung des Oberflächenpotentials wird somit also verfälscht. Aufgrund der Symmetrie an der Oberfläche und der damit verbundenen größeren Anzahl an Bindungspartnern wird im Folgenden da-

<sup>†</sup>Es ist zu beachten, dass auch der in Kapitel 6.3 vorgestellte Algorithmus diese Abweichung nicht kompensiert.



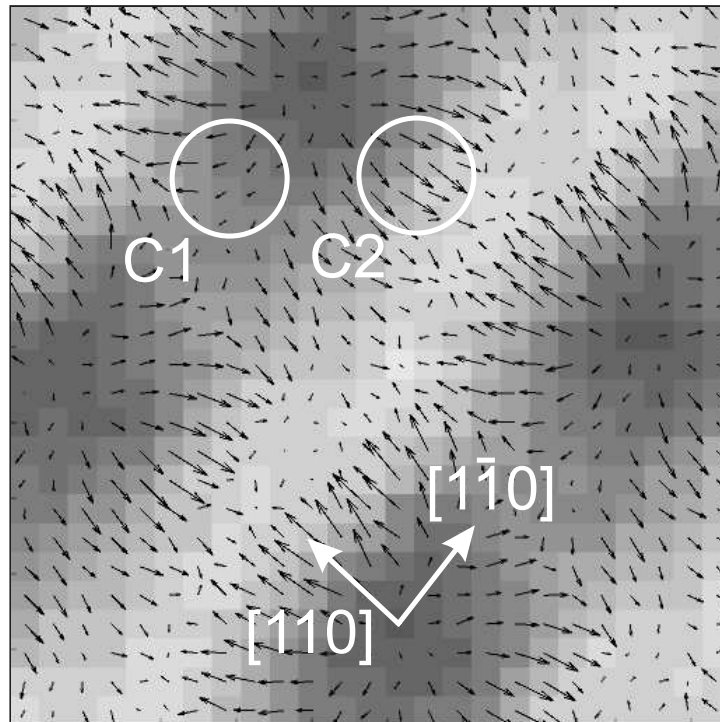
**Abbildung 6.14:** Erklärung des streifenartigen Kontrastes mit Hilfe des in Abbildung 6.13 vorgestellten Spitzenmodells. In a) ist ein horizontaler Schnitt bei Ebene IV durch das gemittelte  $E_{\text{SP}}(x, y, z)$ -Feld abgebildet (vgl. Abbildung 6.11 g)). Dabei ist deutlich der streifenartige Kontrast zu sehen, bei dem die  $[110]$ - gegenüber der  $[\bar{1}\bar{1}0]$ -Richtung einen wesentlich klareren atomaren Kontrast zeigt. In b) ist die Draufsicht einer modellhaften Spitze zu sehen, wie sie in Abb. 6.13 vorgestellt wurde, wobei die  $x$ - und die  $y$ -Richtung an den  $\langle 110 \rangle$ -Richtungen ausgerichtet wurden. Nimmt man jetzt für die Federkonstanten an, dass  $c_{x,S} \ll c_{y,S}$ , so ist der Freiheitsgrad des Spitzenatoms entlang der  $x$ -Richtung deutlich erweitert, wie es auch in der Pfeilskizze verdeutlicht wird. Befindet sich das vorderste Spitzenatom im Bereich oberhalb des Potentialmaximums B, so kann es relativ leicht lateral in Richtung des Potentialminimums in A ausgelenkt werden. Wie stark die Verschiebung ist, hängt von der Größe der Federkonstante relativ zum Potentialgradienten ab. Dieser kann ohne Zusatzinformationen nicht direkt aus der vorliegenden Messung bestimmt werden, da nur das effektive Spitze-Probe-Wechselwirkungspotential aus dem Spektroskopiefeld rekonstruiert werden kann. Entlang der  $y$ -Richtung wird das vorderste Spitzenatom aufgrund der höheren Federkonstanten nur wenig ausgelenkt, so dass die atomare Auflösung hier einen klareren Kontrast aufweist.

von ausgegangen, dass das Atom P stärker an die Probe gebunden ist als das Atom S an die Spitze. Ist die Potentiallandschaft oberhalb der Probe bekannt, kann damit direkt auf die Spitzeneigenschaften geschlossen werden.

Um den streifenartigen Kontrast zu erklären, wie er in Abbildung 6.8 und Abbildung 6.11 beobachtet wurde, kann ein Modell angesetzt werden, bei dem das vorderste Spitzenatom unterschiedlich starke Bindungen entlang der  $x$ - und der  $y$ -Richtung aufweist. Dieser Fall wird in Abbildung 6.14 skizziert. Entlang der eingezeichneten  $x$ -Richtung ist das vorderste Spitzenatom deutlich beweglicher als entlang der  $y$ -Richtung. Damit sinkt die Aufenthaltsdauer des Spitzenatoms oberhalb der Position B, da das Spitzenatom immer in Richtung des Potentialminimums bei A ausweicht. Daher ist das Potentialmaximum bei B nur schwach zu erkennen. Entlang der  $y$ -Richtung wird das vorderste Spitzenatom aufgrund der höheren Federkonstanten nur wenig ausgelenkt, so dass die atomare Auflösung entlang dieser Richtung deutlicher hervortritt.

### Betrachtung der Lateralkräfte

Bleibt man in diesem Erklärungsmodell, so ist für diesen Fall auch eine quantitative Abschätzung der Kräfte möglich, die auf das vorderste Spitzenatom in lateraler Richtung wirken. In Abbildung 6.15 sind die Lateralkräfte aufgetragen, die innerhalb der probennächsten  $(x, y)$ -Ebene gemessen werden. Diese wurden durch Gradientenbildung aus dem Wechselwirkungspotential gewonnen. Obwohl es sich um kristallographisch identische Punkte handelt, unterscheiden sich die Lateralkräfte zwischen Bereich C1 und C2 um etwa 0,4 nN, wobei die Kräfte bei C2 deutlich größer sind.



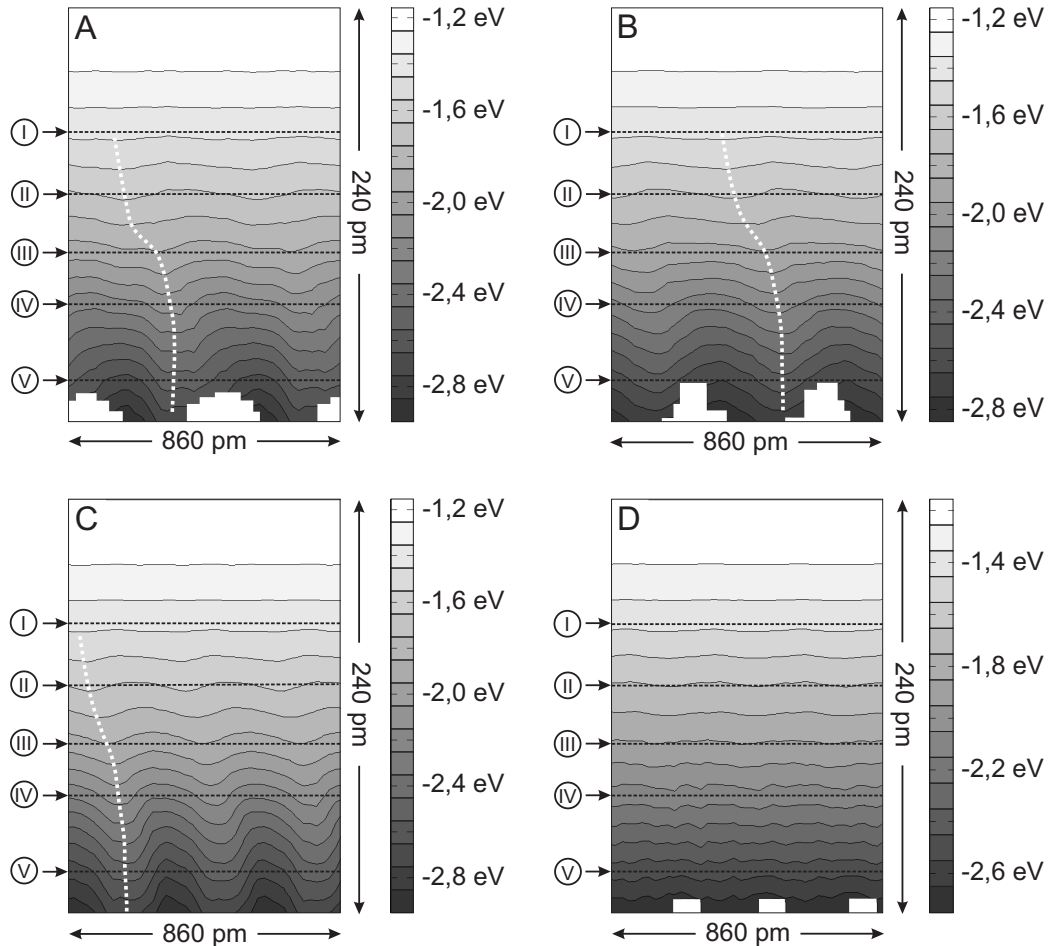
**Abbildung 6.15:** Wechselwirkungspotentialbild mit eingezeichneten Lateralkräften. Es wird ein Ausschnitt des Bildes 6.11 i) gezeigt, so dass der Abstand also der Lage V entspricht. Die Graustufen des Bildes wurden hier anders gewählt, um eine gute Sichtbarkeit der Pfeile zu gewährleisten. Die Pfeile zeigen die Richtung und Stärke der Lateralkraft innerhalb der  $(x, y)$ -Ebene. Es sind zwei äquivalente Bereiche mit C1 und C2 markiert. Während die Größe der Lateralkräfte im Bereich C1 im Mittel bei ca. 0,15 nN und bei einem Maximalwert von etwa 0,25 nN liegt, sind sie bei C2 deutlich größer. Hier werden im Mittel ca. 0,54 nN und als Maximalwert etwa 0,65 nN gemessen. Zwischen C1 und C2 herrscht also eine Differenz in der Lateralkraft von ca. 0,4 nN. Dieser Unterschied kann durch ein bewegliches vorderstes Spitzenatom erklärt werden.

Vergleicht man diese Werte für die Lateralkräfte mit Literaturwerten, so wird die Annahme gestützt, dass bei der hier vorliegenden Messung ein verhältnismäßig schwach gebundenes vorderstes Spitzenatom kontrastgebend war. In [45] wurde ein dreidimensionales Spektroskopiefeld, das auch in [44, 70] diskutiert wurde, auf Lateralkräfte hin untersucht. Dabei wurden mit einer eisenbeschichteten Spitze auf der NiO(001)-Oberfläche Lateralkräfte im Bereich von ca. 4 nN gemessen. Dieser Wert liegt etwa eine Größenordnung oberhalb der in der vorliegenden Arbeit gemessenen Werte. Da die Lateralkräfte abstandsabhängig sind und der absolute Spitze-Probe-Abstand nicht bekannt ist, kann zum Vergleich die in  $z$ -Richtung wirkende Kraft betrachtet werden. In dem Abstandsbereich, in dem jeweils die Lateralkräfte gemessen wurden, liegen in [45] die vertikal wirkenden Kräfte im Bereich von ca. -0,7 bis -1,1 nN, während in der hier vorliegenden Arbeit Werte zwischen -1,6 nN und -2,0 nN gemessen werden (vgl. Abbildung 6.17 und 6.21). Obwohl in der hier untersuchten Messung also größere Kräfte in  $z$ -Richtung beobachtet werden, was für einen kleineren Spitze-Probe-Abstand spricht, liegt die Lateralkraft deutlich unter den Literaturwerten. Dies kann mit einer deutlich erhöhten Mobilität des vordersten Spitzenatoms innerhalb der  $(x, y)$ -Ebene erklärt werden. Geht man davon aus, dass in [45] eine Spitze mit einem praktisch starren Spitzenende verwendet wurde, kann damit grob abgeschätzt werden, dass Kräfte in der Größenordnung von ca. 3,4 bis 3,8 nN bei der vorliegenden Spitze bereits für signifikante laterale Verschiebungen des vordersten Spitzenatoms sorgen.

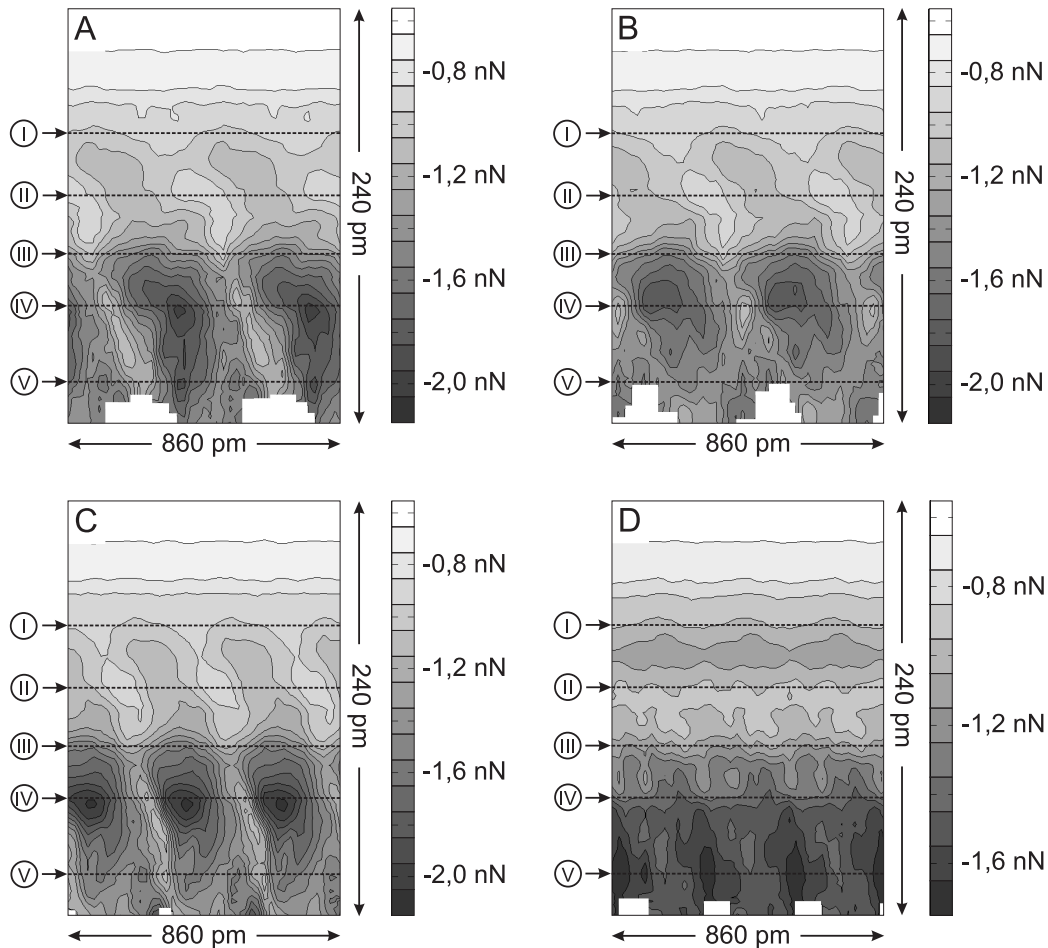
### Laterale Verschiebung in Abhängigkeit des Abstandes

Eine weitere Auffälligkeit in Abbildung 6.11 betrifft die abstandsabhängige laterale Verschiebung des Atomgitters. Diese kann z.B. beim Vergleich der Lage des Atomgitters mit der eingezeichneten Linie D beobachtet werden. Während die Linie in Ebene I entlang einer dunklen Atomreihe liegt, wandert in den Ebenen II bis V ein helles Maximum scheinbar unter der Linie durch. Um diesen Effekt näher zu betrachten, wurden in Abbildung 6.11 die vier Schnittlinien A bis D in die Bilder eingezeichnet, an denen im Folgenden vertikale Schnitte durch die Felder gelegt werden.

In Abbildung 6.16 und 6.17 werden diese Schnitte durch den gemittelten  $E_{\text{SP}}(x, y, z)$ - bzw. den  $F_z(x, y, z)$ -Datenquader gezeigt. Die Schnittlinien wurden entlang kristallographischer Achsen gelegt, um die Spitze-Probe-Wechselwirkungen mit atomarer Auflösung zu untersuchen. Zur Orientierung wurde auch die Lage der Ebenen aus Abbildung 6.11 eingezeichnet. Bei beiden untersuchten Feldern zeigen die vertikalen Schnitte A, B und C klar die atomare Periodizität. Während der atomare Kontrast beim  $E_{\text{SP}}(x, y, z)$ -Feld



**Abbildung 6.16:** Vertikale Schnitte durch das gemittelte  $E_{SP}(x,y)$ -Feld. Die Lage der Schnitte A bis D geht aus Abbildung 6.11 hervor. Dabei entspricht A der  $[100]$ -, B der  $[010]$ -, C der  $[110]$ - und D der  $[1\bar{1}0]$ -Richtung. Am linken Rand der Schnitte werden die  $z$ -Positionen der Ebenen aus Abbildung 6.11 dargestellt. Die einzelnen Graustufen der Schnitte entsprechen einer Änderung des Potentials um  $0,1$  eV. Die atomare Auflösung setzt bei ca.  $-1,5$  eV ein. In den Schnitten A, B und C sind deutliche laterale Verschiebungen der Maxima und Minima zu sehen, während bei D kaum eine Verschiebung zu erkennen ist. Der Kontrast der atomaren Auflösung ist dabei nur schwach ausgeprägt. Zur besseren Sichtbarkeit wurden weiße, gestrichelte Linien eingezeichnet, die den ungefähren Verlauf des Minimums markieren. Eine genauere Untersuchung dieser Verschiebung erfolgt in Abbildung 6.19. Die Schnitte durch das Feld wurden, wie im Anhang A.5 beschrieben, nachbearbeitet. Messparameter:  $f_0=156.118$  Hz,  $A=\pm 2,5$  nm,  $c_z=33$  N/m,  $Q_0=35.000$ ,  $B=1$  T, Messsonde: SSS-NCL, Ni/SiO.



**Abbildung 6.17:** Vertikale Schnitte durch das gemittelte  $F_z(x, y, z)$ -Feld aus Abbildung 6.11. Die Bezeichnungen wurden analog zur Abbildung 6.16 gewählt. Die Graustufen der Schnitte entsprechen einer Änderung der Kraft um 0,1 nN. Der atomare Kontrast setzt zwischen -0,8 und -1,0 nN ein. In den Schnitten A, B und C sind deutliche laterale Verschiebungen der Minima und Maxima zu erkennen, die in Abhängigkeit des eingestellten Abstandes auftreten. Bei D liegt zwischen II und III auf voller Breite des Schnittes ein lokales Minimum. Die Schnitte durch das Feld wurden, wie im Anhang A.5 beschrieben, nachbearbeitet. Messparameter:  $f_0=156.118$  Hz,  $A=\pm 2,5$  nm,  $c_z=33$  N/m,  $Q_0=35.000$ ,  $B=1$  T, Messsonde: SSS-NCL, Ni/SiO.



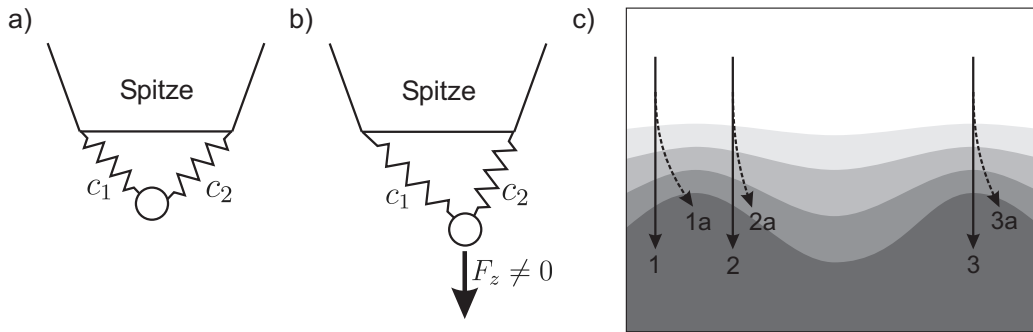
im großen Spitze-Probe-Abstand einsetzt und bei kleineren Abständen immer größer wird, existiert beim  $F_z(x, y, z)$ -Feld ein Kraftminimum im Bereich der Ebene IV. Es wird sowohl im Potential- als auch im Kraftfeld eine deutliche, seitliche, abstandsabhängige Verschiebung der atomaren Maxima und Minima in den Schnitten A, B und C festgestellt.

Da die Schnittebene D parallel zur  $[1\bar{1}0]$ -Richtung liegt, ist die atomare Auflösung hier bei beiden Feldern nur schwach ausgeprägt (vgl. Abbildung 6.11). Im Fall des Kraftfeldes wird bei Schnitt D zwischen der Ebene I und II auf der ganzen Breite des Schnittes ein lokales Kraftminimum durchlaufen.

Besonders auffällig ist bei den in Abbildung 6.16 und Abbildung 6.17 gezeigten vertikalen Schnitten die Verschiebung des atomaren Gitters in Abhängigkeit des Abstandes, die auch in den horizontalen Schnitten in Abbildung 6.11 erkennbar ist. Zur Verdeutlichung wurde dazu in Abbildung 6.16 eine gestrichelte Linie eingezeichnet, die den ungefähren Verlauf des Potentialminimums markiert.

Als Erklärung für die seitliche Verschiebung der Minima und Maxima scheiden Probeneigenschaften aufgrund der Symmetrie der (001)-Oberfläche des Nickeloxids aus (vgl. Abbildung 6.9). Vielmehr spielt für diesen Effekt wiederum das vorderste Spitzenende der Messsonde eine wichtige Rolle. So lässt sich die Verschiebung mit einem schwach gebundenen vordersten Spitzenatom erklären, das sich in Abhängigkeit von der Spitze-Probe-Wechselwirkung seitlich verschiebt. Eine mögliche Spitzenkonfiguration, die einen solchen Effekt erklären kann, wird in Abbildung 6.18 beispielhaft an einer zweidimensionalen Spitze gezeigt. Hier ist ein Spitzenatom zu sehen, das über zwei Bindungen mit der restlichen Spitze verbunden ist. Da eine der beiden Bindungen wesentlich schwächer ist als die andere, entsteht bereits eine seitliche Verschiebung des Atoms, wenn eine Kraft in  $z$ -Richtung darauf einwirkt (siehe Abbildung 6.18 b)). Wird eine solche Spitze in ein Kraftfeld gebracht, wie es in c) zu sehen ist, kommt es oberhalb der Maxima und Minima zu einer seitlichen Verschiebung des Spitzenatoms in Abhängigkeit von der Stärke der Spitze-Probe-Wechselwirkungen. Wird die Probe also an die Spitze angenähert, weicht das vorderste Spitzenatom seitlich aus, so dass sich auch die Position des Maximums und des Minimums seitlich verschiebt. Betrachtet man die Linie 3, die eine geradlinige Annäherung des vordersten Spitzenatoms entlang der  $z$ -Richtung beschreibt, tritt durch den Einfluss der Spitze eine seitliche Abweichung auf (Linie 3a), obwohl oberhalb des Maximums keine Lateralkräfte auf das Spitzenatom einwirken. Spielen auch Lateralkräfte eine Rolle, so findet man eine unterschiedlich starke Ablenkung des vordersten Spitzenatoms von der geraden Linie entlang der  $z$ -Richtung in Abhängigkeit von der atomaren Position (vgl. Linie 1 und 2 mit 1a und 2a).





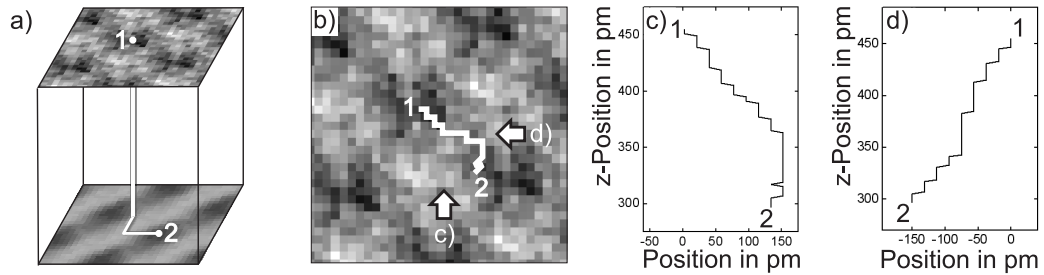
**Abbildung 6.18:** Erklärungsmodell für die laterale Verschiebung des atomaren Gitters in Abhängigkeit vom Abstand. In a) wird ein Modell einer Spitze gezeigt, bei der das vorderste Spitzenatom über zwei Federn der Federkonstanten  $c_1$  und  $c_2$  mit der restlichen Spitze verbunden ist. Die Bindungen des Atoms sind unterschiedlich stark und es ist  $c_1 \ll c_2$ . Wirkt eine Kraft in  $z$ -Richtung auf das vorderste Spitzenatom ein, so kommt es sowohl zu einer Bewegung des vordersten Spitzenatoms in  $z$ -Richtung als auch in lateraler Richtung, wie es in b) zu sehen ist. Ein solches Spitzenatom erfährt in einem symmetrischen Kraftfeld (c) auch oberhalb eines Maximums eine seitliche Ablenkung (Linie 3a) während der Annäherung der Spitze entlang der  $z$ -Achse (Linie 3). Auch die Bereiche links und rechts eines Maximums (Linie 1 und 2) werden anders abgebildet, als dies für eine starre Spitze zu erwarten wäre. Mit einer solchen Spitze kann die abstandsabhängige laterale Verschiebung des atomaren Gitters, wie sie in den Abbildungen 6.11, 6.17 und 6.16 zu sehen ist, erklärt werden.

Damit kommt eine abstandsabhängige seitliche Verschiebung der Maxima und Minima zustande, obwohl ein symmetrisches Feld gemessen wird.

Die beschriebene Spitze liefert demnach eine qualitative Erklärung für den beobachteten Effekt, wobei auch andere Erklärungsmodelle denkbar sind. Eine genaue Untersuchung der Vorgänge am vordersten Spitzenende könnte mit Hilfe von Simulationsrechnungen erfolgen, die eine bessere Einschätzung der zu erwartenden spitzeninduzierten Effekte erlauben würden.

Geht man von der beschriebenen Erklärung der Effekte mit einem beweglichen Spitzenatom aus, so ist damit zu rechnen, dass  $(x, y)$ -Schnitte in großer Entfernung zur Probe ein annähernd realistisches Abbild der Lage des atomaren Gitters zeigen, während bei kleineren Abständen die Verschiebungseffekte am Spitzenende zu einer seitlich verschobenen Abbildung der Oberfläche führen. Daher wurde die Auswahl der Position der vertikalen Schnittebenen A bis D an  $(x, y)$ -Schnitten in großer Entfernung von der Probe durchgeführt.

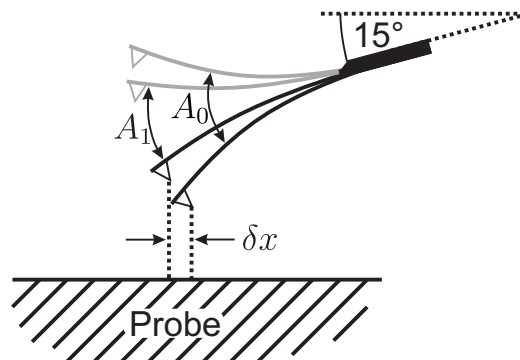
Um den Verschiebungseffekt zu quantifizieren, wurden mittels einer MATLAB-Routine für alle  $z$ -Positionen horizontale  $E_{SP}(x, y)$ -Schnitte durch das gemittelte Potentialfeld angefertigt, wie sie auch in Abbildung 6.11 zu sehen sind. In jeder dieser Ebenen wurde das lokale Minimum gesucht und dessen Position aufgezeichnet. Das Ergebnis dieser Auswertung ist in Abbil-



**Abbildung 6.19:** Visualisierung der lateralen Verschiebung am Beispiel des  $E_{SP}(x, y, z)$ -Feldes. Dafür wurde das aus der gemittelten Einheitszelle zusammengesetzte Feld untersucht. In a) wird deutlich, dass zwischen dem atomaren Minimum am Punkt 1 in großer Entfernung von der Probe und dem Minimum am Punkt 2 nahe der Probe eine deutliche laterale Verschiebung existiert. Um die Verschiebung näher zu untersuchen, wurde für jede horizontale Schicht des Potentialfeldes das Potentialminimum bestimmt. Die weiße Linie zeigt in b) den lateralen Verlauf der Minima über alle Schichten, wobei die dargestellte  $E_{SP}(x, y)$ -Ebene am Startpunkt der Kurve in großer Probenentfernung liegt. Vergleicht man also das erste und das letzte betrachtete Bild, so liegt zwischen den jeweiligen Potentialminima eine Entfernung von ca. 200 pm. Dieser Wert liegt im Bereich der halben Gitterkonstanten des Nickeloxids. In c) und d) wird der entsprechende Verlauf von 1 nach 2 aus den in b) markierten Blickwinkeln angezeigt. Daraus wird deutlich, dass die Verschiebung nicht entlang einer geraden Linie verläuft.

Abbildung 6.19 zu sehen. Hier wird in b) die laterale Verschiebung zwischen der gezeigten Ebene und der Ebene, die dem kleinsten Spitze-Probe-Abstand entspricht, als eine Linie von 1 nach 2 dargestellt. Zusätzlich wird in c) und d) die Verschiebung aus der seitlichen Perspektive in Abhängigkeit vom Abstand gezeigt. Es ist deutlich zu erkennen, dass es sich nicht um eine geradlinige Bewegung handelt. Die Haupt-Bewegungsrichtung ist dabei annähernd parallel zur [110]-Richtung und liegt damit fast senkrecht zur Schnittlinie D aus Abbildung 6.11, so dass damit das Erscheinungsbild dieser Schnittebenen erklärbar wird. Aus b) geht hervor, dass es bei einer Annäherung der Probe an die Spitze um nominell etwa 200 pm zu einer lateralen Gesamtverschiebung von 1 nach 2 um ca. 200 pm kommt.

Es soll nicht unerwähnt bleiben, dass für die beobachtete, seitliche Verschiebung des atomaren Gitters prinzipiell auch Messartefakte verantwortlich sein könnten, was für den vorliegenden Fall allerdings als unwahrscheinlich erscheint. Grundsätzlich kommen für die beobachteten Effekte verschiedene Messfehler in Betracht. Zum einen könnte ein nicht-lineares Verhalten des Röhrenpiezos, mit dem die Probe während der Spektroskopiekurven verfahren wird, dazu führen, dass neben einer Bewegung entlang der  $z$ -Richtung auch eine seitliche Verschiebung auftritt. Diese Erklärung erscheint im vorliegenden Fall jedoch als unrealistisch, da während einer Annäherung der Probe



**Abbildung 6.20:** Auswirkungen einer einbrechenden Amplitude auf die laterale Position der Spitze am unteren Umkehrpunkt der Oszillation. Sinkt die Amplitude von  $A_0$  auf  $A_1$  entsteht durch die Verkipfung des Federbalkens zur Probenoberfläche eine seitliche Verschiebung  $\delta x$ . Im vorliegenden Fall könnte so eine Verschiebung in der Größenordnung von 60 pm zustande kommen, die parallel zur Federbalkenachse auftreten würde. Die Positionsänderung des unteren Umkehrpunktes in  $z$ -Richtung wird bei der Auswertung berücksichtigt. Die Skizze ist nicht maßstabsgerecht, insbesondere sind die Amplituden stark übertrieben.

an die Spitze um etwa 200 pm eine laterale Bewegung in ähnlicher Größenordnung auftritt und damit die Bewegung des Piezoröhrchens in einem Winkel von etwa  $45^\circ$  zur erwünschten Auslenkungsrichtung erfolgen müsste. Mit diesem Argument lassen sich auch eine verkippte Probenoberfläche oder ein nicht senkrecht zur Probenoberfläche stehendes Piezoröhrchen als Ursache für die Verschiebung ausschließen.

Auch eine Torsion des Federbalkens bzw. eine Durchbiegung der Spitzenpyramide an dessen Ende könnten theoretisch eine solche Verschiebung verursachen. Am Federbalken könnte eine Torsion in Abhängigkeit von der in  $z$ -Richtung wirkenden Kraft auftreten, die ebenfalls zu einem solchen Effekt führen würde. Dies erscheint als unwahrscheinlich, da die Torsionsfederkonstante eines Federbalkens wesentlich größer ist als seine Federkonstante der Durchbiegung, so dass der Effekt an dieser Stelle vernachlässigbar klein sein dürfte. Da eine superscharfe Siliziummesssonde verwendet wurde, könnte auch eine Verbiegung dieser scharfen Spitzenpyramide auftreten. Gegen einen solchen Effekt spricht die hohe Steifigkeit des Siliziummaterials und die dementsprechend hohen zu erwartenden Kräfte, die für eine solche Durchbiegung aufgebracht werden müssten.

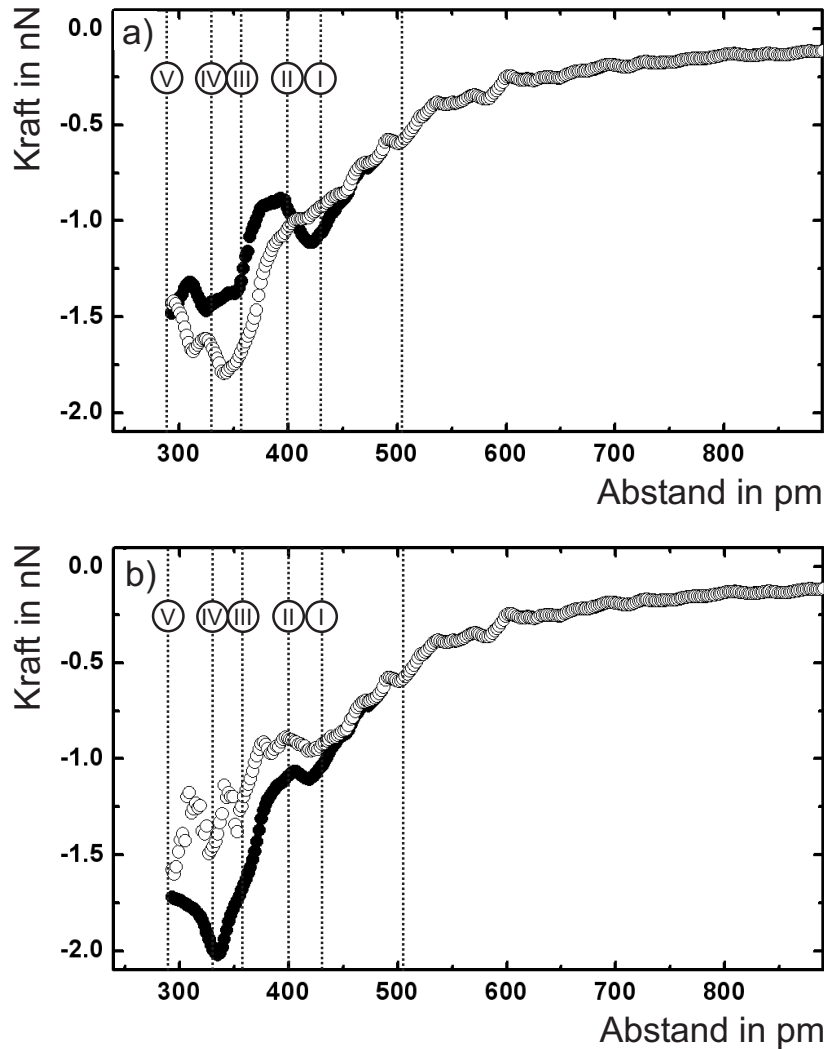
Ein anderer möglicher Effekt wird durch die einbrechende Oszillationsamplitude während der Annäherung der Probe an die Spitze verursacht (siehe Abbildung 6.20). Da der Federbalken der Messsonde in einem Winkel von etwa  $15^\circ$  zur Probenebene verkippt angebracht ist, kommt es am unteren Umkehrpunkt der Oszillation bei einem Einbrechen der Amplitude zu einer

lateralen Verschiebung des vordersten Spitzenendes relativ zur Probenoberfläche. Eine Abschätzung zeigt, dass ein solcher Effekt bei der gegebenen Messung zu einer Verschiebung des atomaren Gitters um ca. 60 pm führen würde. Damit ist dieser Effekt deutlich zu klein, als dass er eine alleinige Erklärung für die laterale Verschiebung der Maxima und Minima liefern könnte. Ein weiteres Argument gegen diese Erklärung ist die Ausrichtung des Federbalkens, der parallel zum Bildrahmen orientiert ist. Eine Bewegung entlang der [110]-Richtung, wie sie in Abbildung 6.19 zu sehen ist, kann so nicht erklärt werden. Da dieser Effekt von der Stärke des Amplitudenrückgangs abhängt, kann er bei Messungen mit einem starken Amplitudeneinbruch, also vor allem bei Messungen im CE-Modus, zu nicht-vernachlässigbaren Messfehlern führen und sollte daher bei der Auswertung entsprechender Daten berücksichtigt werden.

Neben den genannten Punkten, die gegen die aufgeführten Messartefakte sprechen, ist auch zu bedenken, dass bereits aus dem streifenartigen Kontrast auf eine nicht-ideale Spitze geschlossen werden kann, deren vorderstes Spitzenende für den beobachteten Effekt verantwortlich ist. Weiterhin können mit der beschriebenen seitlichen Verschiebung eines beweglichen vordersten Spitzenatoms nicht nur die laterale Verschiebung des atomaren Gitters im Wechselwirkungspotential- und Kraftkanal erklärt werden, sondern auch die entsprechenden Effekte im Dissipationskanal, die in Kapitel 6.6.2 beschrieben werden.

### Betrachtung einzelner Spektroskopiekurven

Betrachtet man zwei gemittelte Kraft-Distanzkurven aus dem Spektroskopiefeld, die an der Maximal- bzw. Minimalposition in Abbildung 6.11 b) aufgenommen wurden, so zeigt sich die laterale Verschiebung in Form eines untypischen Kurvenverlaufs (siehe Abbildung 6.21 a)). Dieser unterscheidet sich deutlich von der modellhaften Kurvenform, wie sie z.B. in Abb. 6.1 gezeigt wird. So liegt zwischen I und II in der mit •-Symbolen markierten Kurve ein lokales Minimum und bei II eine Überschneidung der beiden Kurven. Diese Effekte, die durch eine seitliche Verschiebung des vordersten Spitzenatoms erklärt werden können, lassen sich mit der folgenden Methode kompensieren. Ähnlich wie in Abbildung 6.19 für das Wechselwirkungspotentialfeld demonstriert, wird beim hier diskutierten, gemittelten Kraftfeld in jeder  $(x, y)$ -Ebene das Kraftminimum und -maximum gesucht. Damit erhält man für jede Lage des Kraftfeldes minimale und maximale Kraftwerte, die je nach der Stärke der lateralen Verschiebung deutlich von den in Abbildung 6.21 a) aufgetragenen Werten abweichen können. Die seitliche Verschiebung wird also kompensiert und man erhält die in Abbildung 6.21 b) gezeigte Kur-



**Abbildung 6.21:** Kraft-Distanzkurven an zwei verschiedenen Gitterplätzen vor und nach der Kompensierung der lateralen Verschiebung. Die Positionen der Kurven sind in Abbildung 6.11 b) eingezeichnet. Die mit einem • markierte Kurve korrespondiert dabei mit der Position des Minimums in 6.11 b) während die ○-Kurve dem Maximum entspricht. Des Weiteren ist die Lage der horizontalen Schnitte in Abbildung 6.11 eingezeichnet. Die nicht markierte, gestrichelte Linie stellt die Oberkante der gezeigten vertikalen Schnitte dar (vgl. Abbildung 6.16, 6.17 und 6.25). Der Nullpunkt der  $z$ -Skala der Kurve wurde willkürlich gewählt, da der absolute Abstand zwischen Oberfläche und Spitze unbekannt ist. In a) zeigen die Kurven aufgrund der lateralen Verschiebung, die in Abb. 6.11 beobachtet wurde, einen anderen Verlauf, als z.B. die modellhafte Kurve aus Abb. 6.1. Insbesondere tritt hier ein lokales Minimum in der mit • markierten Kurve auf. Des Weiteren kommt es in den Bereichen II und V zu einer Überschneidung der beiden Kurven. In b) wurde die laterale Verschiebung innerhalb der  $(x, y)$ -Ebenen kompensiert (siehe Text). Es kommt zu keinen Überschneidungen mehr zwischen den Kurven. Messparameter: siehe Abb. 6.17.

ve. Hier wird in der Kurve, die durch  $\bullet$ -Symbole ( $\circ$ -Symbole) gekennzeichnet wird, der Verlauf der lagenweise bestimmten maximalen (minimalen) Kraftwechselwirkung aufgetragen. Im Vergleich zu den Kurven aus Abbildung 6.21 a) zeigen diese Kurven keine Überschneidungen mehr und die Form der Kurven im Nahbereich wurde deutlich verändert. Auffällig ist hier das deutliche Minimum in der mit  $\bullet$  markierten Kurve, wobei es sich um das globale Minimum der Kraftkurve handeln könnte. Auch nach der Kompensation der lateralen Verschiebung befindet sich zwischen I und II bei beiden Kurven ein lokales Minimum. Diese Unregelmäßigkeit der Kurven könnte auf Relaxationen am Spitzenende in  $z$ -Richtung zurückgeführt werden, die hier nicht ausgeglichen worden sind und die in Anbetracht eines beweglichen vordersten Spitzenatoms als wahrscheinlich erscheinen.

Die erwähnten Unregelmäßigkeiten in den Kraft-Distanz-Kurven wurden auch in einer früheren Arbeit beobachtet, die ebenfalls auf der (001)-Oberfläche von NiO durchgeführt wurde [34, 48]. In der betreffenden Arbeit wurde eine Siliziummesssonde verwendet, die mit nativem  $\text{SiO}_2$  belegt war und anschließend in einer Kollision mit der Probe modifiziert wurde. Dabei gehen die Autoren davon aus, dass ein NiO-Cluster aufgesammelt wurde. Nachdem von der Kraft-Distanz-Kurve der langreichweitige Kraftanteil abgezogen wurde, so dass nur die kurzreichweitigen Wechselwirkungen betrachtet werden, wurde oberhalb eines atomaren Maximums eine maximale Wechselwirkung von ca.  $-2,5$  nN gemessen, während auf dem Minimum ein Wert von  $-1,8$  nN erreicht wurde. Der Kurvenverlauf oberhalb des Maximums zeigt mehrere lokale Minima, wohingegen oberhalb des Minimums nur ein ausgeprägtes Minimum in der Kurve gemessen wird. Als Erklärung für die lokalen Minima werden Relaxationseffekte an der Probenoberfläche diskutiert. Die nächsten Nachbarn, die das untersuchte Probenatom umgeben, könnten bei kleinen Spitze-Probe-Abständen mit der Spitze wechselwirken und eine laterale Verschiebung zeigen, die zu einer veränderten Kraft-Distanz-Kurve führen würde. Eine andere mögliche Ursache, die in [34] genannt wird, bezieht sich auf den Einfluss der Spitzenatome, die in der Lage hinter dem vordersten Spitzenatom liegen. Laterale Verschiebungen am vordersten Spitzenatom werden in der Arbeit nicht diskutiert, können allerdings in Anbetracht der in der vorliegenden Arbeit diskutierten Ergebnisse und da in [34] nur Einzelspektroskopiekurven vorliegen, nicht ausgeschlossen werden.

Bei einer anderen Studie liegen im Nahbereich der Probe nur sehr wenige Datenpunkte vor, so dass hier keine Aussage über die mögliche Existenz von lokalen Minima getroffen werden kann [44, 70]. Die maximalen Wechselwirkungen liegen hier oberhalb eines atomaren Maximums bei ca.  $-1,1$  nN,

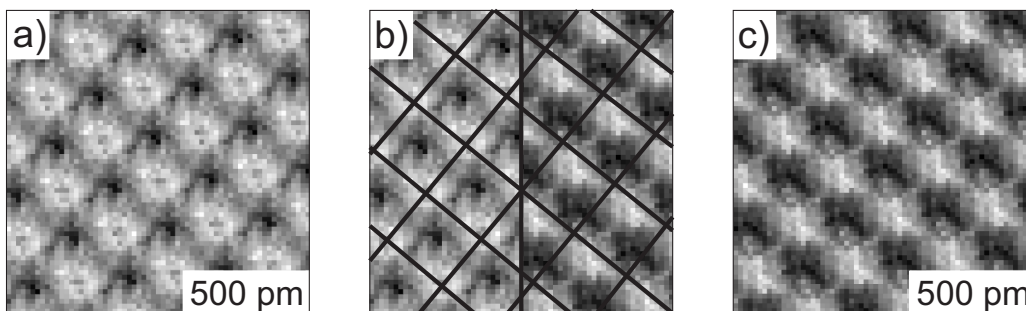
während auf dem Minimum etwa  $-0,7$  nN erreicht wurden. Für die Messung wurde eine Messspitze verwendet, die nach dem Abtrag der Oxidschicht durch Argonionenätzen mit einer Eisenschicht bedampft wurde.

Betrachtet man die Kräfte, die in der hier vorliegenden Arbeit gemessen werden, so findet man bei den Kurven in Abb. 6.21 b) bei der mit  $\circ$  markierten Kurve eine maximale Wechselwirkung bei etwa  $-1,6$  nN, während bei der anderen Kurve etwa  $-2,0$  nN erreicht werden.

Für die unterschiedliche Größe der gemessenen Kräfte bei den verschiedenen Studien kommen verschiedene Ursachen in Betracht. Zum einen spielt für die Stärke der Spitze-Probe-Wechselwirkung die Art der Spitzenbeschichtung eine wichtige Rolle. Zum anderen hat auch die Form des vordersten Spitzenendes sowie die Stärke der Bindungen des vordersten Spitzenatoms zur restlichen Spitze einen großen Einfluss auf die gemessenen Kräfte.

### 6.6.2 Untersuchung des dissipativen Kontrastes

Neben der Auswertung des Potential- und des Kraftfeldes wurde mit Hilfe des in Kapitel 6.4 vorgestellten Umrechnungsalgorithmus auch eine Auswertung der Dissipationsenergie, also des  $\Delta E_{\text{Diss}}(x, y, z)$ -Feldes durchgeführt. Es wurde bereits in Kapitel 4.5 beschrieben, dass die topographische und die dissipative Abbildung einer Oberfläche eine laterale Verschiebung zueinander aufweisen können. Auch zwischen dem bereits vorgestellten Wechselwirkungspotentialfeld und dem hier behandelten Dissipationsenergiefeld ist eine



**Abbildung 6.22:** Vergleich zweier horizontaler Schnitte des gemittelten Wechselwirkungspotential- bzw. Dissipationsenergiefeldes. In a) wird ein Schnitt durch das gemittelte Potentialfeld gezeigt, das auch in Bild 6.11 a) zu sehen ist. Das Bild c) zeigt einen Schnitt durch das Dissipationsenergiefeld, das wie Bild a) der Ebene I entspricht. In der Mitte wird in b) der direkte Vergleich der beiden Bilder gezeigt. Dabei wird deutlich, dass die Maxima nicht aufeinander liegen, sondern eine laterale Verschiebung zwischen diesen beiden vorliegt, ähnlich wie es auch bei der topographischen und dissipativen Abbildung in Kapitel 4.5 beobachtet wurde. Messparameter:  $f_0=156.118$  Hz,  $A=\pm 2,5$  nm,  $c_z=33$  N/m,  $Q_0=35.000$ ,  $B=1$  T, Messsonde: SSS-NCL, Ni/SiO.

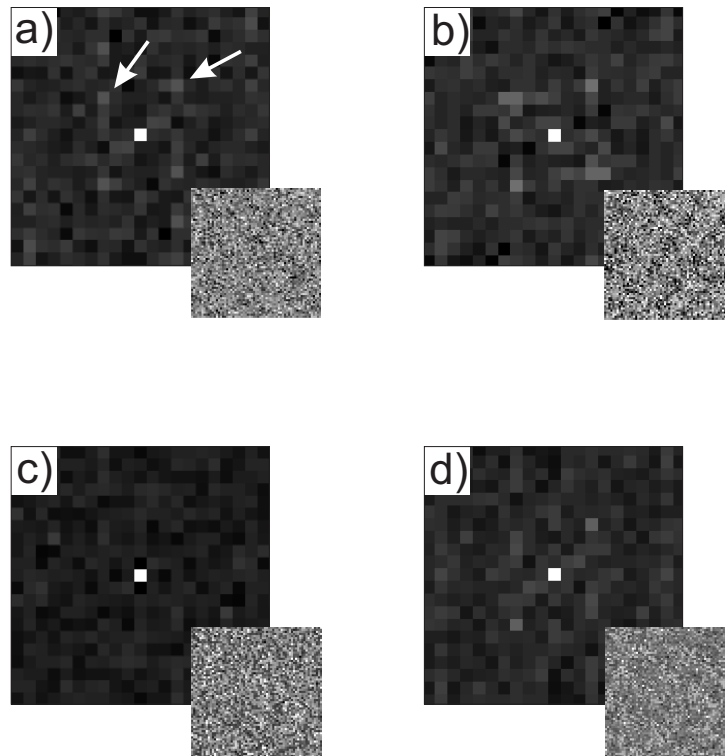


solche laterale Verschiebung festzustellen. Zum Vergleich sind in Abbildung 6.22 zwei horizontale Schnitte dargestellt, die bei jeweils gleichem Spitze-Probe-Abstand einmal eine Abbildung des Wechselwirkungspotentials (a)) und einmal die Abbildung der Dissipationsenergie (c)) zeigen. In b) ist jeweils die Hälfte des Bildes aus a) und aus c) dargestellt, wobei eine deutliche laterale Verschiebung zwischen beiden Bildern deutlich wird. Da die Schnitte bei der Position I (vgl. Abbildungen 6.11, 6.16, 6.17 und 6.21) liegen, ist der Spitze-Probe-Abstand relativ groß, so dass nur eine verhältnismäßig schwache Wechselwirkung zwischen Spitze und Probe vorliegt und nur kleine Verschiebungseffekte am vordersten Spitzenende zu erwarten sind.

Die Verschiebung zwischen dem Wechselwirkungspotentialbild und dem Dissipationsbild kommt zustande, da in den beiden Kanälen unterschiedliche physikalische Größen gemessen werden. Tritt eine seitliche Verschiebung des vordersten Spitzenatoms auf, wie sie im vorangegangenen Abschnitt angesprochen wurde, könnte es während eines Oszillationszyklus zu einer Hysterese der Bewegung des Atoms zwischen Ab- und Aufwärtsbewegung der Spitze kommen, ähnlich wie sie für Verschiebungen des Spitzenatoms entlang der  $z$ -Richtung in Kapitel 1.2.6 beschrieben wurde. Damit wäre die Dissipation an die laterale Verschiebung gekoppelt. Ein Maximum des Dissipationssignals würde für einen solchen Fall im Bereich der maximalen Lateralkräfte liegen, die die Ursache für die seitliche Verschiebung des Atoms sind. Dieser Bereich ist nahe der Wendepunkte des Potentials zu finden. Zusätzlich zu dieser lateralen Hysterese könnte es auch noch in  $z$ -Richtung zu Hystereseeffekten kommen, so dass die Position der Dissipationsmaxima nicht direkt auf den Wendepunkten des Potentials liegt, sondern davon abweichen kann.

Neben der lateralen Verschiebung gibt es auch Unterschiede in der Abstandsabhängigkeit des Kontrastes zwischen dem Kraft- und dem Dissipationskanal. Das Einsetzen des atomaren Kontrastes in den verschiedenen Kanälen kann besonders gut in Fourierbildern verglichen werden. In Abbildung 6.23 sind bei zwei verschiedenen Abständen jeweils die  $F(x, y)$ - bzw. die  $\Delta E_{\text{Diss}}(x, y)$ -Schnitte zusammen mit den entsprechenden Fourierbildern dargestellt. Hier wird deutlich, dass bei größeren Abständen zunächst der Kontrast im  $F(x, y)$ -Schnitt zu sehen ist, bevor nach einer weiterer Annäherung um etwa 10 pm auch im Dissipationskanal die atomare Auflösung sichtbar wird. Ein ähnliches Verhalten wurde bereits in Abbildung 5.16 in Kapitel 5.5 beobachtet.

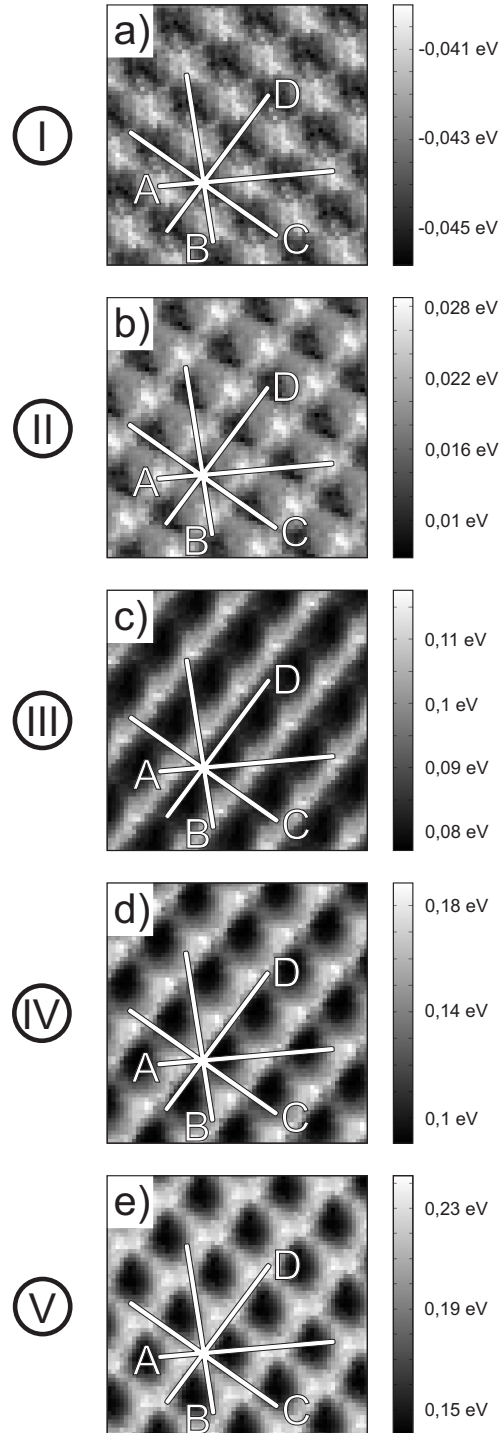
Eine Erklärung für diese unterschiedliche Abstandsabhängigkeit könnte darin liegen, dass zunächst bei größeren Abständen zwischen der Spitze und der Probe aufgrund der relativ schwachen Wechselwirkungen keine Hysteresevorgänge auftreten, so dass nur ein Kontrast im Kraftkanal beobachtet wird. Die dissipativen Prozesse treten erst bei stärkeren Auslenkungen des



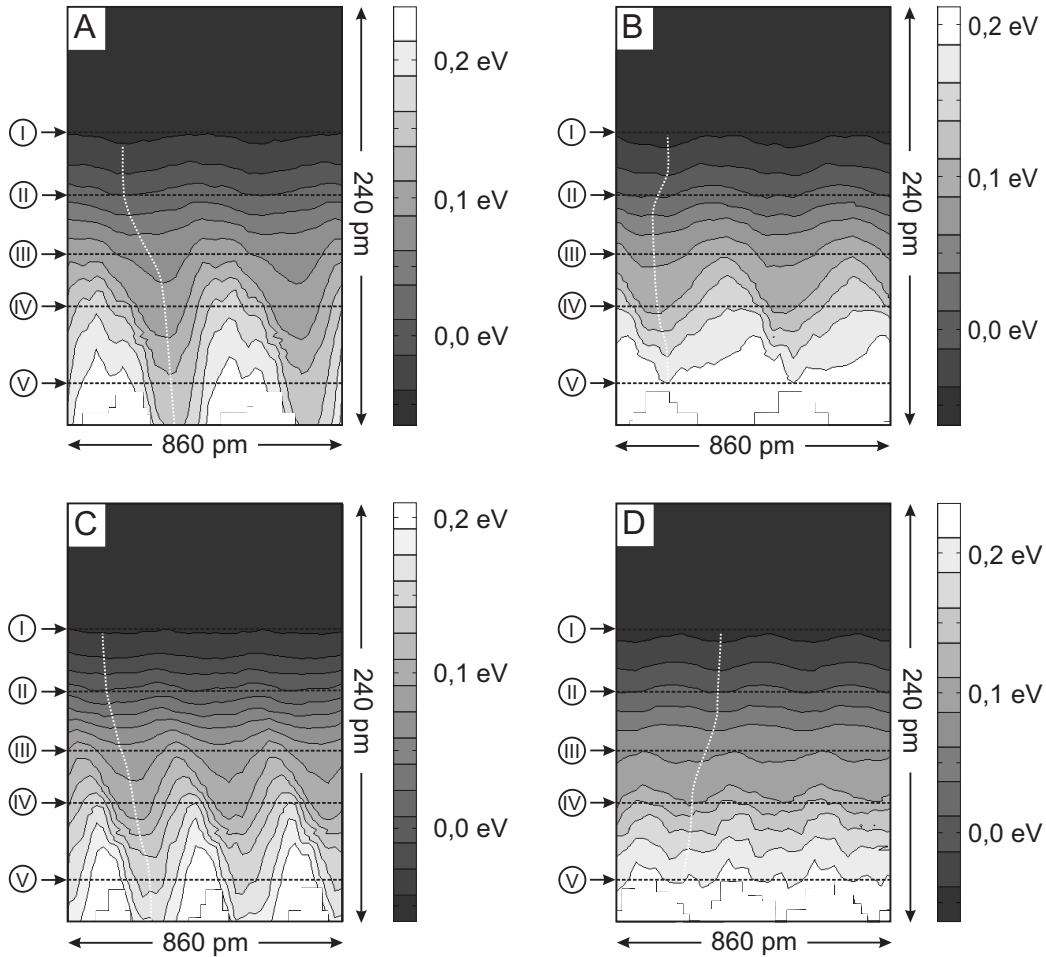
**Abbildung 6.23:** Unterschiedliche Abstandsabhängigkeit der atomaren Auflösung im Kraft- und im Dissipationskanal. Es werden jeweils die Fourierbilder der rechts unten dargestellten horizontalen Schnitte durch die Felder der Kraft (a) und b)) bzw. der Dissipationsenergie (c) und d)) gezeigt. a) zeigt die Ebene aus dem dreidimensionalen Kraftspektroskopiefeld, bei dem als erstes ein atomarer Kontrast detektiert wird. Dementsprechend ist das Signal selbst im Fourierbild nur sehr schwach. In derselben Ebene des Dissipationskanals kann die atomare Auflösung noch nicht detektiert werden. Erst nachdem der Abstand um 10 pm reduziert wurde, ist auch im Dissipationskanal in d) die atomare Struktur erkennbar. Messparameter:  $f_0=156.118$  Hz,  $A=\pm 2,5$  nm,  $c_z=33$  N/m,  $Q_0=35.000$ ,  $B=1$  T, Messsonde: SSS-NCL, Ni/SiO.

vordersten Spitzenatoms auf, so dass dafür eine stärkere Wechselwirkung erforderlich ist, die erst bei kleinen Spitze-Probe-Abständen erreicht wird.

Analog zu Abbildung 6.11 werden in Abbildung 6.24 bei verschiedenen Spitze-Probe-Abständen horizontale Schnitte durch das gemittelte  $\Delta E_{\text{Diss}}(x, y, z)$ -Feld dargestellt. Auch hier wird eine laterale Verschiebung der Maxima und Minima des atomaren Gitters in Abhängigkeit vom Spitze-Probe-Abstand gemessen. Anders als es bei den horizontalen Schnitten durch das Kraft- und das Potentialfeld beobachtet wurde, sind in den Bildern a), b), d) und e) die Gitterperiodizitäten entlang beider  $\langle 110 \rangle$ -Richtungen deutlich zu erkennen, aber auch leicht asymmetrisch. In c) ist die Gitterperiodizität



**Abbildung 6.24:** Horizontale Schnitte durch das gemittelte  $\Delta E_{\text{Diss}}(x, y, z)$ -Feld. Im Vergleich zu a) wurde der Messabstand bei den Bildern b), c), d) und e) sukzessive verkleinert. Die Entfernungen sind mit I bis V gekennzeichnet wobei diese den in Abbildung 6.21 angegebenen Abständen entsprechen. Anders als bei den Schnitten durch die Felder der Kraft bzw. des Wechselwirkungspotentials ist hier bei den Abständen I, II, IV und V ein praktisch gleich starker Kontrast entlang der  $[110]$ - und der  $[\bar{1}\bar{1}0]$ -Richtung zu erkennen. Der Bildkontrast variiert von ca. 5 meV pro Schwingungszyklus in a) bis etwa 0,1 eV pro Schwingungszyklus in e). Die eingezeichneten Schnitte A bis D liegen aufgrund der lateralen Verschiebung zwischen Kraft- und Dissipationsenergiebildern (vgl. Abbildung 6.22) an etwas anderen Positionen als in Abbildung 6.11. Auch in den hier gezeigten  $\Delta E_{\text{Diss}}(x, y)$ -Bildern ist eine laterale Verschiebung der Maxima und Minima in Abhängigkeit des Spitze-Probe-Abstandes festzustellen. Zusätzlich tritt noch eine Kontraständerung auf, die dazu führt, dass in a) die dunklen Bereiche zusammenhängen, und in e) die hellen Bereiche des Bildes eine zusammenhängende Struktur bilden. Angegeben ist jeweils die pro Schwingungszyklus dissipierte Energie. Messparameter:  $f_0=156.118$  Hz,  $A=\pm 2,5$  nm,  $c_z=33$  N/m,  $Q_0=35.000$ ,  $B=1$  T, Messsonde: SSS-NCL, Ni/SiO.



**Abbildung 6.25:** Vertikale Schnitte durch das gemittelte  $\Delta E_{\text{Diss}}(x, y, z)$ -Feld aus Abbildung 6.24. Die Position der Schnitte A bis D geht aus Abbildung 6.24 hervor. Dabei entspricht A der [100]-, B der [010]-, C der [110]- und D der  $[1\bar{1}0]$ -Richtung. Am linken Rand der Schnitte werden die  $z$ -Positionen der Ebenen aus Abbildung 6.11 dargestellt. Die einzelnen Graustufen der Schnitte entsprechen in A, B und D einer Änderung der Dissipationsenergie um 25 meV pro Schwingungszyklus und in C um etwa 16 meV pro Schwingungszyklus. Die atomare Auflösung setzt hier zwischen -25 meV und 0 eV pro Schwingungszyklus ein. In allen Schnitten sind deutliche laterale Verschiebungen der Maxima und Minima zu sehen. Zur besseren Sichtbarkeit wurden weiße, gestrichelte Linien eingezeichnet, die den ungefähren Verlauf des Minimums markieren. Angegeben ist jeweils die pro Schwingungszyklus dissipierte Energie. Die Schnitte durch das Feld wurden, wie im Anhang A.5 beschrieben, nachbearbeitet. Messparameter:  $f_0=156.118$  Hz,  $A=\pm 2,5$  nm,  $c_z=33$  N/m,  $Q_0=35.000$ ,  $B=1$  T, Messsonde: SSS-NCL, Ni/SiO.

entlang der  $[1\bar{1}0]$ -Richtung fast verschwunden. Die unterschiedliche Abbildung im hier gezeigten Feld im Vergleich zum Kraftfeld und zum Wechselwirkungspotentialfeld kann auf die unterschiedlichen physikalischen Mechanismen zurückgeführt werden, die den Datenkanälen zugrunde liegen.

Zur weiteren Untersuchung werden vertikale Schnitte durch das Spektroskopiefeld gelegt. Die Positionen dieser Schnitte sind in Abbildung 6.24 eingezeichnet. Aufgrund der lateralen Verschiebung zwischen Kraft- und Dissipationsbild, die in Abbildung 6.22 beschrieben wurde, wurden die Positionen der Schnitte gegenüber den zuvor verwendeten Positionen verändert. Wie im Fall des Potential- und des Kraftfeldes in Kapitel 6.6.1 wurde die Auswahl der Position der Schnitte anhand des Bildes vorgenommen, welches bei der größten Spitze-Probe-Entfernung aufgenommen wurde. Hier herrschen nur verhältnismäßig schwache Wechselwirkungen, so dass die lateralen Verschiebungseffekte am vordersten Spitzenende nur schwach ausgeprägt sein sollten. Damit ist anzunehmen, dass bei diesem Abstand die Abbildung des atomaren Gitters der wahren Position der Atome am ehesten entspricht.

In Abbildung 6.25 sind die vertikalen Schnitte bei den Schnittlinien A bis D abgebildet. Deutlich ist hier die atomare Auflösung zu erkennen. Es zeigt sich eine klare Abstandsabhängigkeit im beobachteten Kontrast. Die maximal dissipierte Energie liegt hier bei etwa 0,225 eV pro Schwingungszyklus. Auffällig ist hier, dass es in den gezeigten Schnitten keine lokalen Minima gibt, wie sie z.B. beim Kraftfeld in Schnitt D beobachtet wurden (vgl. Abbildung 6.17). Die  $\Delta E_{\text{Diss}}(z)$ -Kurven, aus denen die Schnitte zusammengesetzt sind, zeigen im Nahbereich der Probe bei kleiner werdendem Abstand ausnahmslos einen stetigen Anstieg der Dissipationsenergie. Die in den horizontalen Schnitten bereits beobachtete laterale Verschiebung der relativen Maxima und Minima in Abhängigkeit vom Abstand lässt sich auch in den hier gezeigten Schnitten nachvollziehen. Zur Verdeutlichung wurden die Minima der verschiedenen  $\Delta E_{\text{Diss}}(x, y)$ -Ebenen mit einer gestrichelten Linie verbunden.

Zusätzlich tritt auch eine Asymmetrie um die Maxima und Minima auf. Dies lässt sich beispielsweise bei Schnitt B im Bereich von  $\Delta E_{\text{Diss}}=0,125$  eV pro Schwingungszyklus beobachten. Hier ist die Flanke links des Maximums flacher als auf der rechten Seite.

Anders als bei den Schnitten durch das Kraft- bzw. Potentialfeld, sind hier auch die atomaren Maxima und Minima in Schnitt D gut zu erkennen. Allerdings ist der Kontrast hier deutlich schwächer als bei den anderen Schnitten. Das  $\Delta E_{\text{Diss}}(x, y, z)$ -Feld zeigt also die oben diskutierten Merkmale des  $E_{\text{SP}}(x, y, z)$ - und des  $F_z(x, y, z)$ -Feldes in anderer Ausprägung.

Die bei der Diskussion des  $E_{\text{SP}}(x, y, z)$ - und des  $F_z(x, y, z)$ -Feldes angeführte Erklärung der abstandsabhängigen, seitlichen Verschiebung des atomaren Gitters mit einem schwach gebundenen vordersten Spitzenatom, das

während der Annäherung eine laterale Bewegung ausführt, steht auch im Einklang mit den hier diskutierten Dissipationsdaten. Die Erklärung der dissipativen Prozesse wird allerdings verkompliziert durch die Tatsache, dass ein Hystereseprozess in jede Raumrichtung erfolgen kann, so dass keine klare Trennung zwischen Effekten, die auf Verschiebungen in lateraler Richtung zurückgehen und Hystereseeffekten in  $z$ -Richtung vorgenommen werden kann.

### Zusammenfassung

Im vorliegenden Kapitel konnte gezeigt werden, dass es möglich ist, eine große Zahl von Spektroskopiekurven mit dem beschriebenen Verfahren aufzunehmen und auszuwerten. Für den verwendeten Messmodus, bei dem trotz aktivierten Regelkreises die Schwingungsamplitude während der Spektroskopiekurven abnimmt, konnte eine Formel zur Berechnung der Dissipationsenergie hergeleitet werden. Des Weiteren konnten das Wechselwirkungspotential sowie die Kraft zwischen Spitze und Probe quantifiziert werden. Die resultierenden Felder zeigen keine Hinweise auf die erfolgreiche Detektion der magnetischen Austauschwechselwirkung, allerdings erlauben sie es, einige Aussagen über die Beschaffenheit des vordersten Spitzenendes zu treffen. Für den beobachteten Linienkontrast, der bei kleinen Spitze-Probe-Abständen auftritt sowie für die seitliche Verschiebung der atomaren Minima und Maxima in Abhängigkeit vom Abstand, konnten Erklärungsmodelle angegeben werden, die im wesentlichen darauf basieren, dass das kontrastgebende vorderste Spitzenatom über asymmetrische und verhältnismäßig schwache Bindungen zur restlichen Messspitze verfügt. Da aus dem Feld des Wechselwirkungspotentials auch die Lateralkräfte hervorgehen, kann eine grobe Abschätzung der Stärke der Bindungen vorgenommen werden. Um die hier getroffenen qualitativen Aussagen zu verifizieren, wäre eine theoretische Betrachtung des untersuchten System wünschenswert. Insbesondere könnten mit Hilfe von Simulationsrechnungen verschiedene Spitzenmodelle angesetzt und überprüft werden, so dass nähere Aussagen über die Natur der hier verwendeten Spitze möglich wären.

Von experimenteller Seite aus wäre sicherlich eine Wiederholung der Messung mit dem Ziel der quantitativen Messung der magnetischen Austauschkräfte wünschenswert. Dazu würden sich nach dem bisherigen Kenntnisstand besonders eisenbeschichtete Spitzen in Magnetfeldern mit Flussdichten von ca. 5 T anbieten. Um die Spitzencharakterisierung weiter voranzutreiben, sollten weitere Spitzen auf die beschriebene Art und Weise untersucht werden. Dafür ist die Variation des Beschichtungsmaterials sowie die Vergrößerung der lateralen Auflösung, d.h. die Aufnahme einer noch größeren Kurvenanzahl von besonderem Interesse.





# Kapitel 7

## Zusammenfassung und Ausblick

Die vorliegende Arbeit behandelt die erstmalige, eindeutige, experimentelle Realisierung der magnetischen Austauschkraftmikroskopie (MAKM). Die MAKM basiert auf der dynamischen Nichtkontakt-Rasterkraftmikroskopie und erlaubt die atomar aufgelöste und spinsensitive Abbildung von Oberflächen, unabhängig von deren elektrischer Leitfähigkeit, durch Messung der magnetischen Austauschkräfte zwischen Messsonde und Probe.

Im ersten Teil der Arbeit wird das generelle Konzept der Rasterkraftmikroskopie und der magnetischen Austauschkraftmikroskopie erklärt und es werden die experimentellen Anforderungen an die Messapparatur formuliert, die erfüllt sein müssen, um ein erfolgreiches MAKM-Experiment durchführen zu können. Des Weiteren wird die verwendete Messapparatur beschrieben, und es wird die Präparation und die Charakterisierung der verwendeten Messsonden ausführlich diskutiert.

Die Messergebnisse werden im zweiten Teil der Arbeit vorgestellt. Zunächst werden hier einige topographische Untersuchungen der NiO(001)-Oberfläche gezeigt. Dabei wird auf die Untersuchung von Oberflächendefekten, die atomare Auflösung im Topographie- und im Dissipationskanal, sowie auf den Einfluss von strukturellen Änderungen am vordersten Spitzenende auf die Abbildungsqualität eingegangen. Daran anschließend werden Messungen zur magnetischen Austauschkraftmikroskopie präsentiert. Es wurden in einem Magnetfeld der Flussdichte 5 T Messungen bei einer Temperatur von 8 K durchgeführt, bei denen mit Hilfe einer eisenbeschichteten Messsonde simultan die chemische ( $1\times 1$ )- und die magnetische ( $2\times 1$ )-Oberflächeneinheit zelle der (001)-Oberfläche des antiferromagnetischen Isolatoren NiO abgebildet werden konnte. Der magnetische Kontrast ist dabei sowohl im Topographie- als auch im Dissipationskanal sichtbar. Dabei zeigen die verwendeten Messspitzen ein unterschiedliches Abbildungsverhalten. In manchen Abbildungen ist ausschließlich auf den Nickelatomen ein magne-

tischer Kontrast zu sehen, während mit anderen Messsonden auch auf den Sauerstoffatomen Höhenmodulationen beobachtet wurden. Zudem traten in einigen Abbildungen diskrete Änderungen im magnetischen Kontrast auf, die mit strukturellen und magnetischen Spitzenwechseln erklärbar sind.

Testweise wurden auch andere Kombinationen aus Spitzen- und Probenmaterial für Messungen im Magnetfeld eingesetzt, um einen vergrößerten magnetischen Kontrast zu erzielen. Konkret wurden dabei auf der NiO(001)-Oberfläche Messungen mit nickel- bzw. gadoliniumbedampften Messsonden durchgeführt, während mit eisenbedampften Messsonden die MnO(001)-Oberfläche abgebildet wurde. Mit allen diesen Materialkombinationen war eine atomar aufgelöste Abbildung der Oberfläche möglich, allerdings konnte der magnetische Austauschkontrast bei diesen Untersuchungen nicht nachgewiesen werden.

Im letzten Teil der Arbeit wurden rasterkraftspektroskopische Untersuchungen der NiO(001)-Oberfläche mit einer nickelbedampften Messsonde durchgeführt. Dabei wurde in einem Magnetfeld der Flussdichte 1 T ein atomar aufgelöstes Spektroskopiefeld aus  $64 \times 64$  Kurven aufgenommen. Durch eine Optimierung der Messparameter und aufgrund der großen Stabilität des verwendeten Mikroskops gelang es, eine praktisch driftfreie Messung durchzuführen, wobei es allerdings nicht möglich war, magnetische Auflösung zu erzielen. Aus den Messdaten konnten das Wechselwirkungspotential, das Kraftfeld sowie die dissipierte Energie zwischen Spitze und Probe mit hoher räumlicher Auflösung rekonstruiert werden. Entgegen der üblichen Vorgehensweise lag hier bei der Auswertung der Daten der Schwerpunkt nicht auf einer Untersuchung der Eigenschaften der Probe, sondern es wurde die Abbildung der symmetrischen (001)-Oberfläche von NiO ausgenutzt, um Aussagen bezüglich der Struktur und der Relaxationseffekte am vordersten Spitzenende zu machen.

In zukünftigen Messungen könnten weitere Untersuchungen mittels hoch auflösender Rasterkraftspektroskopie erfolgen, die auf den Nachweis der magnetischen Austauschwechselwirkung in Kraft-Distanz-Kurven abzielen. Gegenüber den bisher durchgeführten Experimenten sollte dabei das angelegte externe Magnetfeld erhöht werden. Damit sollte eine genauere, abstandsabhängige und quantitative Untersuchung der zwischen Spitze und Probe herrschenden magnetischen Austauschkräfte möglich sein. Durch Verwendung verschiedener Spitzen- bzw. Probenmaterialien könnten dabei wichtige Rückschlüsse über die Materialabhängigkeit der hier wirkenden magnetischen Austauschwechselwirkungen gewonnen werden. Beispielsweise wäre dafür auch eine Wiederaufnahme der Messungen auf der MnO(001)-Oberfläche nach einer verbesserten Probenpräparation möglich. Auch andere Spitzenbeschichtungsmaterialien könnten auf ihre Eignung hin getestet werden. Dabei

könnten auch vergleichende Studien zu den verschiedenen Austauschwechselwirkungen (direkter Austausch, Superaustausch, RKKY-artiger Austausch, etc.) angestellt werden. Mit Hilfe theoretischer Rechnungen könnte auch die Untersuchung der Spitzeneigenschaften durch die Analyse von Spektroskopiefeldern weiter vorangetrieben werden.

Für weitere magnetisch sensitive Untersuchungen sind auch magnetische Moleküle, die auf ein isolierendes Trägersubstrat aufgebracht werden, interessant. Im Gegensatz zur Präparation auf metallischen Substraten können hier störende Hybridisierungseffekte vermieden werden. Dadurch könnte es möglich sein, magnetische Kopplungsvorgänge auf sehr kleiner Größenskala noch besser zu untersuchen.

Ein weiteres vielversprechendes Betätigungsfeld bietet die Untersuchung dissipativer Prozesse. Unter Umständen ist es hier möglich, genauere Einblicke in Prozesse wie z.B. die Magnonenanregung zu erhalten.



# Literaturverzeichnis

- [1] S. Wolf *et al.* *Spintronics: A Spin-Based Electronics Vision for the Future*. Science **294**, 1488 (2001).
- [2] R. Wiesendanger *et al.* *Observation of vacuum tunneling of spin-polarized electrons with the scanning tunneling microscope*. Phys. Rev. Lett. **65**, 247 (1990).
- [3] M. Bode. *Spin-Polarized Scanning Tunnelling Microscopy*. Rep. Prog. Phys. **66**, 523 (2003).
- [4] G. Binnig *et al.* *Tunneling through a controllable vacuum gap*. Appl. Phys. Lett. **40**, 178 (1982).
- [5] G. Binnig *et al.* *Surface Studies by Scanning Tunneling Microscopy*. Phys. Rev. Lett. **49**, 57 (1982).
- [6] G. Binnig, C. F. Quate und C. Gerber. *Atomic Force Microscope*. Phys. Rev. Lett. **56**, 930 (1986).
- [7] F. J. Giesibl. *Atomic Resolution of the Silicon(111)-(7×7) Surface by Atomic Force Microscopy*. Science **267**, 68 (1995).
- [8] Y. Martin und H. Wickramasinghe. *Magnetic imaging by “force microscopy” with 1000 Å resolution*. Appl. Phys. Lett. **50**, 1455 (1987).
- [9] A. Hubert und R. Schaefer. *Magnetic Domains*. Springer-Verlag, Berlin (1999).
- [10] S. Blundell. *Magnetism in Condensed Matter*. Oxford University Press, Oxford (2001).
- [11] H. A. Kramers. *L’interaction entre les atomes magnétogènes dans un cristal paramagnétique*. Physica **1**, 182 (1934).

- [12] P. W. Anderson. *Antiferromagnetism. Theory of Superexchange Interaction*. Phys. Rev. **79**, 350 (1950).
- [13] P. W. Anderson. *New Approach to the Theory of Superexchange Interactions*. Phys. Rev. **115**, 2 (1959).
- [14] C. Zener. *Interaction between the d-Shells in the Transition Metals. II. Ferromagnetic Compounds of Manganese with Perovskite Structure*. Phys. Rev. **82**, 403 (1951).
- [15] M. A. Rudermann und C. Kittel. *Indirect Exchange Coupling of Nuclear Magnetic Moments by Conduction Electrons*. Phys. Rev. **96**, 99 (1954).
- [16] T. Kasuya. *A Theory of Metallic Ferro- and Antiferromagnetism on Zener's Model*. Prog. Theo. Phys. **16**, 45 (1956).
- [17] K. Yosida. *Magnetic Properties of Cu-Mn Alloys*. Phys. Rev. **106**, 893 (1957).
- [18] Alle verwendeten Messsonden wurden bei der Firma Nanosensors bezogen ([www.nanosensors.de](http://www.nanosensors.de)). Nanosensors, Rue Jaquet-Droz 1, Case Postale 216, CH-2002 Neuchâtel, Schweiz.
- [19] D. Sarid. *Scanning Force Microscopy*. Oxford University Press (1991).
- [20] J. E. Sader *et al.* *Method of calibration of atomic force microscope cantilevers*. Rev. Sci. Instr. **66**, 3789 (1995).
- [21] U. Rabe, K. Janser und W. Arnold. *Vibrations of free and surface-coupled atomic force microscope cantilevers: Theory and experiment*. Rev. Sci. Instr. **67**, 3281 (1996).
- [22] J. Israelachvili. *Intermolecular and Surface Forces*. Academic Press, London (1991).
- [23] F. J. Gießibl. *Forces and frequency shifts in atomic-resolution dynamic-force microscopy*. Phys. Rev. B **56**, 16010 (1997).
- [24] C. Argento und R. H. French. *Parametric tip model and force-distance relation for Hamaker constant determination from atomic force microscopy*. J. Appl. Phys. **80**, 6081 (1996).
- [25] W. Allers *et al.* *Dynamic scanning force microscopy at low temperatures on a van der Waals surface: graphite (0001)*. Appl. Surf. Sci. **140**, 247 (1999).

- 
- [26] H. Hölscher *et al.* Interpretation of “true atomic resolution” images of graphite (0001) in noncontact atomic force microscopy. *Phys. Rev. B* **62**, 6967 (2000).
- [27] M. Ashino *et al.* Atomic-Resolution Dynamic Force Microscopy and Spectroscopy of a Single-Walled Carbon Nanotube: Characterization of Interatomic van der Waals Forces. *Phys. Rev. Lett.* **93**, 136101 (2004).
- [28] W. Allers *et al.* Dynamic scanning force microscopy at low temperatures on a noble-gas crystal: Atomic resolution on the xenon(111) surface. *Europhys. Lett.* **48**, 276 (1999).
- [29] M. Guggisberg *et al.* Separation of interactions by noncontact force microscopy. *Phys. Rev. B* **61**, 11151 (2000).
- [30] U. Hartmann. *Magnetic Force Microscopy*. *Ann. Rev. Mat. Sci.* **29**, 53 (1999).
- [31] C. Kittel. *Einführung in die Festkörperphysik*. R. Oldenbourg Verlag, München, 4. Aufl. (1976).
- [32] R. Pérez *et al.* Role of Covalent Tip-Surface Interactions in Noncontact Atomic Force Microscopy on Reactive Surfaces. *Phys. Rev. Lett.* **78**, 678 (1997).
- [33] F. Gießibl *et al.* Subatomic Features on the Silicon (111)-(7×7) Surface Observed by Atomic Force Microscopy. *Science* **289**, 422 (2000).
- [34] R. Hoffmann *et al.* Atomic resolution imaging and frequency versus distance measurements on NiO(001) using low-temperature scanning force microscopy. *Phys. Rev. B* **67**, 085402 (2003).
- [35] M. A. Lantz *et al.* Quantitative Measurement of Short-Range Chemical Bonding Forces. *Science* **291**, 2580 (2001).
- [36] U. Dürig. Relations between interaction force and frequency shift in large-amplitude dynamic force microscopy. *Appl. Phys. Lett.* **75**, 433 (1999).
- [37] F. J. Gießibl. A direct method to calculate tip-sample forces from frequency shifts in frequency-modulation atomic force microscopy. *Appl. Phys. Lett.* **78**, 123 (2001).
- [38] U. Dürig. Extracting interaction forces and complementary observables in dynamic probe microscopy. *Appl. Phys. Lett.* **76**, 1203 (2000).



- [39] T. R. Albrecht *et al.* *Frequency modulation detection using high- $Q$  cantilevers for enhanced force microscope sensitivity.* J. Appl. Phys. **69**, 668 (1991).
- [40] R. Schmidt. *Rasterkraftspektroskopie auf Ag(111) und Gd/W(110).* Diplomarbeit, Universität Hamburg (2005).
- [41] J. E. Sader und S. P. Jarvis. *Accurate formulas for interaction force and energy in frequency modulation force spectroscopy.* Appl. Phys. Lett. **84**, 1801 (2004).
- [42] H. Hölscher, B. Gotsmann und A. Schirmeisen. *Dynamic force spectroscopy using the frequency modulation technique with constant excitation.* Phys. Rev. B **68**, 153401 (2003).
- [43] A. Schirmeisen *et al.* *Dynamic force spectroscopy using the constant-excitation and constant-amplitude modes.* Nanotechnology **16**, S13 (2005).
- [44] S. M. Langkat *et al.* *Determination of site specific interatomic forces between an iron coated tip and the NiO(001) surface by force field spectroscopy.* Surf. Sci. **527**, 12 (2003).
- [45] A. Schwarz *et al.* *Three-Dimensional Force Field Spectroscopy.* Proceedings of the 12th International Conference on STM/STS and Related Techniques, Hrsg.: P. M. Koenraad und M. Kemerink. AIP Conf. Proc. (2003).
- [46] H. J. Hug und A. Baratoff. *Measurement of Dissipation Induced by Tip-Sample Interactions.* In *Noncontact Atomic Force Microscopy*, Hrsg.: S. Morita, R. Wiesendanger und E. Meyer, Kap. 20. Springer (2002).
- [47] M. Gauthier *et al.* *Interplay between Nonlinearity, Scan Speed, Damping, and Electronics in Frequency Modulation Atomic-Force Microscopy.* Phys. Rev. Lett. **89**, 146101 (2002).
- [48] R. Hoffmann. *Magnetic and Interatomic Forces Measured by Low Temperature Scanning Force Microscopy.* Dissertation, Universität Basel (2001).
- [49] R. Bennewitz *et al.* *Atomically Resolved Steps and Kinks on NaCl Islands on Cu(111): Experiment and Theory.* Phys. Rev. B **62**, 2074 (2000).

- 
- [50] F. J. Gießibl. *Advances in atomic force microscopy*. Rev. Mod. Phys. **75**, 949 (2003).
- [51] N. Sasaki und M. Tsukada. *Effect of Microscopic Nonconservative Process on Noncontact Atomic Force Microscopy*. Jpn. J. Appl. Phys. **39**, L1334 (2000).
- [52] T. Trevethan und L. Kantorovich. *Molecular dynamics simulation of atomic scale processes at close approach in non-contact atomic force microscopy*. Nanotechnology **16**, S79 (2005).
- [53] R. Wiesendanger *et al.* *Vacuum tunneling of spin-polarized electrons detected by scanning tunneling microscopy*. J. Vac. Sci. Technol. B **9**, 519 (1991).
- [54] S. Heinze *et al.* *Real-Space Imaging of Two-Dimensional Antiferromagnetism on the Atomic Scale*. Science **288**, 1805 (2000).
- [55] A. Kubetzka *et al.* *Revealing Antiferromagnetic Order of the Fe Monolayer on W(001): Spin-Polarized Scanning Tunneling Microscopy and First-Principles Calculations*. Phys. Rev. Lett. **94**, 87204 (2005).
- [56] D. Rugar, C. Yannoni und J. Sidles. *Mechanical detection of magnetic resonance*. Nature **360**, 563 (1992).
- [57] D. Rugar *et al.* *Single spin detection by magnetic resonance force microscopy*. Nature **430**, 329 (2004).
- [58] Die Abbildung wurde zur Verfügung gestellt von Knud Lämmle.
- [59] K. Mukasa *et al.* *Exchange Interaction between Magnetic Moments of Ferromagnetic Sample and Tip: Possibility of Atomic-Resolution Images of Exchange Interactions using Exchange Force Microscopy*. Jpn. J. Appl. Phys. **33**, 2692 (1994).
- [60] K. Nakamura *et al.* *First-principles calculation of the exchange interaction and the exchange force between magnetic Fe films*. Phys. Rev. B **56**, 3218 (1997).
- [61] H. Ness und F. Gautier. *Theoretical study of the interaction between a magnetic nanotip and a magnetic surface*. Phys. Rev. B **52**, 7352 (1995).

- [62] A. S. Foster und A. L. Shluger. *Spin-contrast in non-contact SFM on oxide surfaces: theoretical modelling of NiO(001) surface*. Surf. Sci. **490**, 211 (2001).
- [63] H. Momida und T. Oguchi. *First-principles study on exchange force image of NiO(001) surface using a ferromagnetic Fe probe*. Surf. Sci. **590**, 42 (2005).
- [64] A. Foster. *Theoretical Modelling of Non-contact Atomic Force Microscopy on Insulators*. Dissertation, University College London (2000).
- [65] H. Hosoi. *Atomic resolved imaging of cleaved NiO(100) surfaces by NC-AFM*. Appl. Surf. Sci. **157**, 218 (2000).
- [66] H. Hosoi *et al.* *Non-contact atomic force microscopy of an antiferromagnetic NiO(100) surface using a ferromagnetic tip*. Appl. Phys. A **72**, S23 (2001).
- [67] H. Hosoi, K. Sueoka und K. Mukasa. *Investigations on the topographical asymmetry of non-contact atomic force microscopy images of NiO(001) surface observed with a ferromagnetic tip*. Nanotechnology **15**, 505 (2004).
- [68] S. Sueoka und M. Hosoi. *Magnetic imaging with scanning probe microscopy*. Nanotechnology **15**, S691 (2004).
- [69] W. Allers, S. Langkat und R. Wiesendanger. *Dynamic low-temperature scanning force microscopy on nickel oxide (001)*. Appl. Phys. A **72**, 27 (2001).
- [70] S. M. Langkat. *Tieftemperatur-Rasterkraftmikroskopie auf antiferromagnetischen Übergangsmetalloxiden*. Dissertation, Universität Hamburg (2002).
- [71] H. Hosoi *et al.* *Atomically Resolved Imaging of a NiO(001) Surface*. In *Noncontact Atomic Force Microscopy*, Hrsg.: S. Morita, R. Wiesendanger und E. Meyer, Kap. 7. Springer (2002).
- [72] M. Liebmann. *Aufbau und Charakterisierung eines Rasterkraftmikroskops für den Einsatz im Ultrahochvakuum, bei tiefen Temperaturen und im Magnetfeld*. Diplomarbeit, Universität Hamburg (2000).
- [73] M. Liebmann *et al.* *A low-temperature ultrahigh vacuum scanning force microscope with a split-coil magnet*. Rev. Sci. Instr. **73**, 3508 (2002).

- [74] U. Kaiser. *Magnetkraftmikroskopie im Ultrahochvakuum, bei tiefen Temperaturen und im Magnetfeld*. Diplomarbeit, Universität Hamburg (2002).
- [75] N. Plock. *Optimierung eines Tieftemperatur-Rasterkraftmikroskops zur Messung magnetischer Austauschkräfte auf der NiO(001)-Oberfläche*. Diplomarbeit, Universität Hamburg (2004).
- [76] P. J. Mulhern *et al.* *A scanning force microscope with a fiber-optic-interferometer displacement sensor*. Rev. Sci. Instr. **62**, 1280 (1991).
- [77] C. H. Metzger und K. Karrai. *Cavity cooling of a microlever*. Nature **432**, 1002 (2004).
- [78] N. W. Cheung *et al.* *Ni on Si(111): Reactivity and Interface Structure*. Phys. Rev. Lett. **45**, 120 (1980).
- [79] R. T. Tung, J. M. Gibson und J. M. Poate. *Formation of Ultrathin Single-Crystal Silicide Films on Si: Surface and Interfacial Stabilization of Si-NiSi<sub>2</sub> Epitaxial Structures*. Phys. Rev. Lett. **50**, 429 (1983).
- [80] R. Kläsger *et al.* *Formation of a ferromagnetic silicide at the Fe/Si(100) interface*. Phys. Rev. B **56**, 10801 (1997).
- [81] M. Yoshimura, I. Ono und K. Ueda. *STM observation of nickel silicides on Si(001)*. Appl. Phys. A **66**, S1043 (1998).
- [82] U. Landmann *et al.* *Atomistic Mechanisms and Dynamics of Adhesion, Nanoindentation, and Fracture*. Science **248**, 454 (1990).
- [83] E. Bussmann und C. C. Williams. *Single-electron tunneling force spectroscopy of an individual electronic state in a nonconducting surface*. Appl. Phys. Lett. **88**, 263108 (2006).
- [84] L. J. Klein, C. C. Williams und J. Kim. *Electronic tunneling detected by electrostatic force*. Appl. Phys. Lett. **77**, 3615 (2000).
- [85] L. J. Klein und C. C. Williams. *Single electron tunneling detected by electrostatic force*. Appl. Phys. Lett. **79**, 1828 (2001).
- [86] C. Schönenberger und S. F. Alvarado. *Observation of Single Charge Carriers by Force Microscopy*. Phys. Rev. Lett. **65**, 3162 (1990).
- [87] R. Stomp *et al.* *Detection of Single-Electron charging in an Individual InAs Quantum Dot by Noncontact Atomic-Force Microscopy*. Phys. Rev. Lett. **94**, 056802 (2005).

- [88] S.Orisaka *et al.* *The atomic resolution imaging of metallic Ag(111) surface by noncontact atomic force microscopy.* Appl. Surf. Sci. **140**, 243 (1999).
- [89] C. Loppacher und M. Bammerlin. *Phase variation experiments in non-contact dynamic force microscopy using phase locked loop techniques.* Appl. Surf. Sci. **140**, 287 (1999).
- [90] C. Loppacher *et al.* *Dynamic force microscopy of copper surfaces: Atomic resolution and distance dependence of tip sample interaction and tunneling current.* Phys. Rev. B **62**, 16944 (2000).
- [91] M. D. Towler *et al.* *Ab initio study of MnO and NiO.* Phys. Rev. B **50**, 5041 (1994).
- [92] J. Stöhr *et al.* *Images of the Antiferromagnetic Structure of a NiO(001) Surface by Means of X-Ray Magnetic Linear Dichroism Spectromicroscopy.* Phys. Rev. Lett. **83**, 1862 (1999).
- [93] F. U. Hillebrecht. *Magnetic moments at the surface of antiferromagnetic NiO(001).* Phys. Rev. Lett. **86**, 3419 (2001).
- [94] T. Okazawa, Y. Yagi und Y. Kido. *Rumpled surface structure and lattice dynamics of NiO(001).* Phys. Rev. B **67**, 195406 (2003).
- [95] Die verwendeten Einkristalle wurden bei der Firma MaTeCK bezogen (www.mateck.de). MaTeCK GmbH, Im Langenbroich 20, 52428 Jülich.
- [96] C. Barth und C. R. Henry. *Atomic Resolution Imaging of the (001) Surface of UHV Cleaved MgO by Dynamic Scanning Force Microscopy.* Phys. Rev. Lett. **91**, 196102 (2003).
- [97] M. Castell *et al.* *Unexpected differences in the surface electronic structure of NiO and CoO observed by STM and explained by first-principles theory.* Phys. Rev. B **59**, 7342 (1999).
- [98] T. J. Regan *et al.* *Chemical effects at metal/oxide interfaces studied by x-ray absorption spectroscopy.* Phys. Rev. B **64**, 214422 (2001).
- [99] J. E. Pask *et al.* *Structural, electronic, and magnetic properties of MnO.* Phys. Rev. B **64**, 024403 (2001).
- [100] P. A. Cox. *Transition Metal Oxides - An Introduction to their Electronic Structure and Properties.* Oxford Science Publications (1992).

- 
- [101] F. Gießibl *et al.* *Stability considerations and implementation of cantilevers allowing dynamic force microscopy with optimal resolution: the qPlus sensor.* Nanotechnology **15**, S79 (2004).
- [102] J. Cleveland *et al.* *Energy dissipation in tapping-mode atomic force microscopy.* Appl. Phys. Lett. **72**, 2613 (1998).
- [103] B. Anzcykowski *et al.* *How to measure energy dissipation in dynamic mode atomic force microscopy.* Appl. Surf. Sci. **140**, 376 (1999).
- [104] B. Gotsmann. *Dynamische Kraftspektroskopie.* Dissertation, Westfälische Wilhelms-Universität Münster (2000).
- [105] S. Ciraci, A. Baratoff und I. P. Batra. *Tip-sample interaction effects in scanning-tunneling and atomic-force microscopy.* Phys. Rev. B **41**, 2763 (1990).
- [106] L. R. Rabiner und B. Gold. *Theory and Application of Digital Signal Processing.* Prentice-Hall, Inc. (1975).
- [107] J. W. Cooley und J. W. Tukey. *An algorithm for the machine calculation of complex Fourier series.* Math. Comput. **19**, 297 (1965).
- [108] Bezug der piezoelektrischen Elemente über Staveley Sensors, Inc. ([www.staveleyndt.com](http://www.staveleyndt.com)). East Hartford, CT 06108, USA.





# Anhang A

## Methoden der Bildbearbeitung und -auswertung

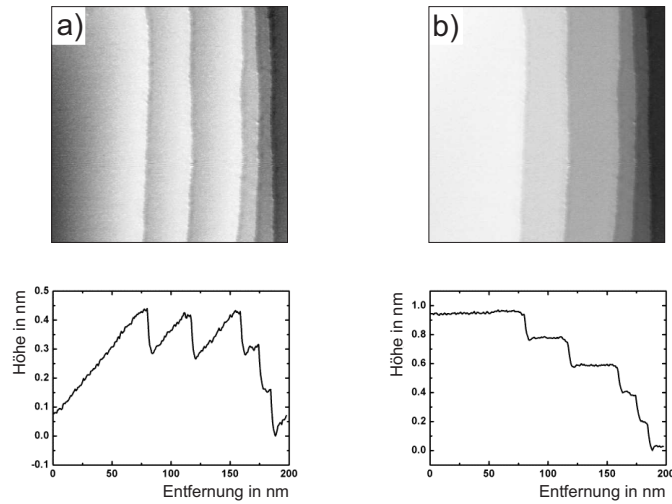
Für die Auswertung der gemessenen Bilddaten steht eine Reihe von Bildbearbeitungsmethoden zur Verfügung, die zur Aufbereitung der Messdaten verwendet werden können. Im Folgenden werden die für die vorliegende Arbeit wichtigen Verfahren beschrieben und erklärt.

### A.1 Ebenenabgleich

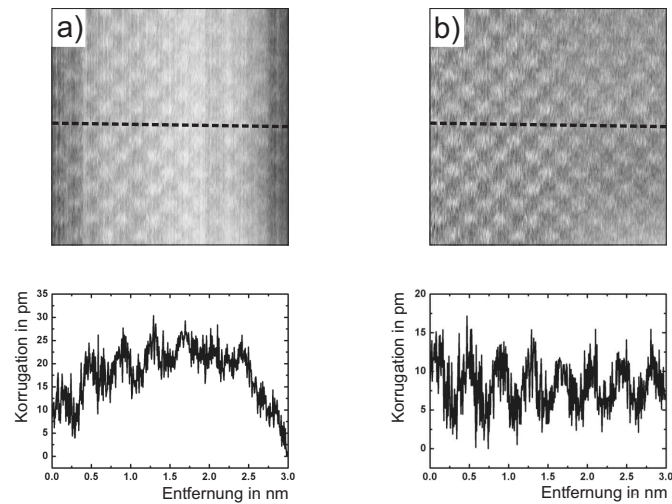
Der Ebenenabgleich (englisch: *plane fit*) kann verwendet werden, um eine Schräge, die das Bild überlagert, zu eliminieren. Dafür wird von den Bilddaten, die in der Form  $z(x, y)$  vorliegen, eine Ebene  $ax + by + c$  abgezogen, wobei  $a$ ,  $b$  und  $c$  geeignet gewählt werden. In Abbildung A.1 wird die Wirkungsweise des Ebenenabgleichs demonstriert. Während in Abbildung A.1 a) die monoatomaren Stufen des Bildes verkippt dargestellt werden, kann dies durch das Abziehen der Hintergrundschräge behoben werden. Damit entsprechen in Abbildung A.1 b) die Helligkeitsunterschiede den tatsächlichen Höhenunterschieden.

### A.2 Linienabgleich

Der Linienabgleich (auch *line fit* oder *flatten* genannt) kann verwendet werden um Rasterlinien, die in ihrer Höhe zueinander verschoben sind, anzugleichen. Dazu ist in Abbildung A.2 ein Bild dargestellt, in dem die Rasterlinien entlang der Vertikalen verlaufen und unterschiedliche Helligkeiten zeigen. Durch den Linienabgleich wird nun das mittlere Höhenniveau des Bildes bestimmt und jede einzelne Rasterlinie auf dasselbe Höhenniveau gezogen.

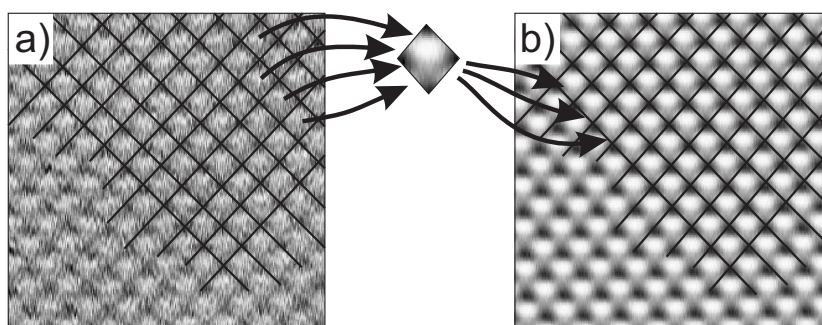


**Abbildung A.1:** Demonstration des Ebenenabgleichs anhand eines Bildes der Ni(111)-Oberfläche. In Bild a) werden die monoatomaren Stufen verkippelt dargestellt und zeigen auch in der dazugehörigen Schnittlinie eine deutliche Schräge. In b) wurde durch einen Ebenenabgleich die Hintergrundschräge des Bildes entfernt. Die Höheninformationen des Bildes werden damit durch die Helligkeit des Bildes richtig wiedergegeben.



**Abbildung A.2:** Linienabgleich am Beispiel eines Bildes der NiO-Oberfläche. In a) sind die einzelnen Rasterlinien in  $z$ -Richtung zum Teil sprunghaft gegeneinander verschoben. Hier reicht ein einfacher Ebenenabgleich zur Kompensation nicht aus. Bild b) entsteht durch einen Linienabgleich, also eine linienweise Höhenkompensation. Die Schnittlinie zeigt hier keine Krümmung mehr und auch die atomare Korrugation ist klar in der Linie zu erkennen.

## A.3 Mittelung über ein regelmäßiges Atomgitter



**Abbildung A.3:** Mittelung über ein regelmäßiges Atomgitter am Beispiel einer atomar aufgelösten NiO-Oberfläche. Bild a) zeigt das Rohdatenbild, auf das mittels einer Software ein Gitter gelegt wird (hier nur für einen Teil des Bildes gezeigt), welches die Periodizität der chemischen Einheitszelle widerspiegelt. Über die so festgelegten Einheitszellen wird gemittelt, und man erhält eine einzelne gemittelte Einheitszelle, die aus allen Bildpunkten des Bildes gewonnen wurde. Diese gemittelte Einheitszelle kann zu einem Bild der ursprünglichen Größe zusammenmontiert werden, um Periodizitäten besser sichtbar zu machen. In b) wird ein solches Bild gezeigt, wobei deutlich wird, dass das Rauschniveau durch den Mittelungsprozess wesentlich gesenkt werden konnte.

Bei der Untersuchung regelmäßiger Atomgitter kann das im Folgenden beschriebene Mittelungsverfahren zur Quantifizierung der Signalstärken verwendet werden. Dazu wird, wie in Abbildung A.3 a) gezeigt, mittels einer Routine der Auswertesoftware<sup>†</sup> ein Gitter auf die Oberfläche gelegt, das die Periodizität der chemischen (oder gegebenenfalls der magnetischen) Einheitszelle wiedergibt. Über die so eingeteilten Einheitszellen wird gemittelt, so dass man eine neue Einheitszelle erhält, die aus allen Bildpunkten des Rohdatenbildes entstanden ist. Um eventuelle Periodizitäten des gemittelten Bildes besser erkennen zu können, kann die einzelne Einheitszelle wieder zu einem Bild montiert werden, wie es in b) demonstriert wird. Dabei handelt es sich nicht um eine Ortsdarstellung der Oberfläche wie bei einem üblichen RKM-Bild, sondern um eine periodische Darstellung ein und derselben gemittelten Einheitszelle. Durch die Mittelung kann das Rauschniveau deutlich gesenkt werden. Bei einer Mittelung über  $n$  Einheitszellen verringert sich so das weiße Rauschen um den Faktor  $\sqrt{n}$ . Damit wird auch die Auswertung der Korrugation bei Bildern möglich, die über ein schlechtes Signal-zu-Rausch-Verhältnis

<sup>†</sup>Hier wurde das Programm WSxM 4.0 von Nanotec Electronica verwendet, welches kostenlos unter [www.nanotec.es](http://www.nanotec.es) erhältlich ist.

verfügen. Da die Anpassung des Gitters an das Bild manuell erfolgt, liegt hier eine potentielle Fehlerquelle des Verfahrens, die jedoch durch entsprechende Umsicht minimiert werden kann.

Das hier beschriebene Verfahren kann auch zur Auswertung eines dreidimensionalen Spektroskopiefeldes verwendet werden. Dabei wird zunächst anhand eines einzelnen horizontalen  $(x, y)$ -Schnittes durch das Feld ein Gitter für die Mittelung gewählt und anhand dieses Gitters die oben beschriebene Mittelung für alle  $(x, y)$ -Ebenen durchgeführt. Da für diese Art der Mittelung keine Software bereit stand, wurde eine entsprechende Routine unter MATLAB realisiert.

## A.4 Fouriertransformation

Neben der üblichen Darstellung der Bilddaten im Ortsraum kann auch eine Fouriertransformation durchgeführt werden, durch die eine Darstellung im Frequenzraum ermöglicht wird. Durch diese Darstellung werden auch schwache periodische Signale sichtbar, die in der Ortsdarstellung nur schlecht zu erkennen sind. Die Umrechnung basiert auf der diskreten Fouriertransformation und der inversen diskreten Fouriertransformation. Im Folgenden soll kurz der mathematische Hintergrund angerissen werden. Die gezeigte Darstellung orientiert sich an [106].

Ein periodisches Signal  $x_p$  in zwei Dimensionen kann wie folgt definiert werden:

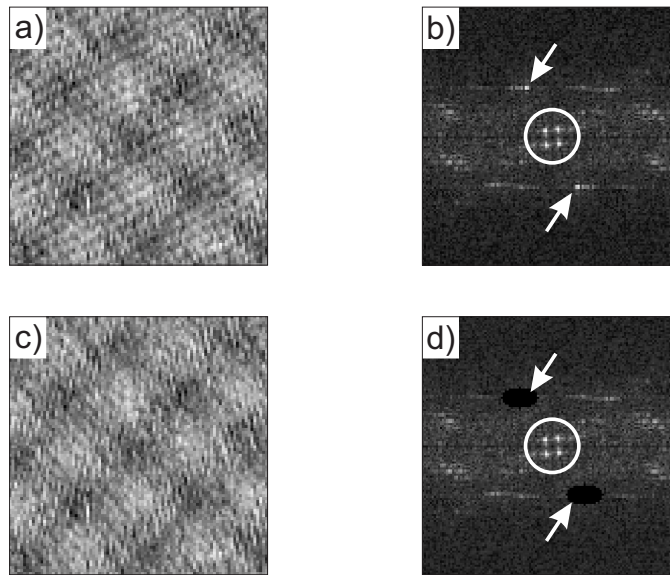
$$x_p(n_1, n_2) = x_p(n_1 + m_1 N_1, n_2 + m_2 N_2) \quad (\text{A.1})$$

Hier sind  $N_1$  und  $N_2$  die Perioden entlang der ersten bzw. zweiten Dimension und  $m_1$  bzw.  $m_2$  ganze Zahlen. Mit Hilfe der zweidimensionalen, inversen diskreten Fouriertransformation können solche periodischen Signale auch als Linearkombination aus Exponentialfunktionen ausgedrückt werden:

$$x_p(n_1, n_2) = \frac{1}{N_1 N_2} \sum_{k_1=0}^{N_1-1} \sum_{k_2=0}^{N_2-1} X_p(k_1, k_2) e^{2\pi i \frac{n_1 k_1}{N_1}} e^{2\pi i \frac{n_2 k_2}{N_2}} \quad (\text{A.2})$$

Dabei entsprechen die Fourierkoeffizienten  $X_p(k_1, k_2)$  der Amplitude von  $x_p(n_1, n_2)$  bei der Frequenz  $\omega_1 = (2\pi/N_1)k_1$  und  $\omega_2 = (2\pi/N_2)k_2$ . Sie können mithilfe der zweidimensionalen diskreten Fouriertransformation bestimmt werden:

$$X_p(k_1, k_2) = \sum_{n_1=0}^{N_1-1} \sum_{n_2=0}^{N_2-1} x(n_1, n_2) e^{-2\pi i \frac{n_1 k_1}{N_1}} e^{-2\pi i \frac{n_2 k_2}{N_2}} \quad (\text{A.3})$$



**Abbildung A.4:** Fourierfilterung eines atomar aufgelösten Bildes der NiO-Oberfläche. In a) wird das Rohdatenbild gezeigt, b) ist das dazugehörige Fourierbild. Innerhalb des eingezeichneten Kreises sind die vier Punkte zu sehen, die mit der atomaren Struktur korrespondieren. In Bild a) ist eine streifenartige, hochfrequente Störung zu erkennen, die in b) durch die beiden mit Pfeilen markierten hellen Maxima repräsentiert wird. In Bild d) wurden mittels einer Software die entsprechenden Bereiche entfernt. Nach einer Rücktransformation in den Ortsraum erhält man Bild c). Die periodische Störung aus a) wurde wirkungsvoll eliminiert.

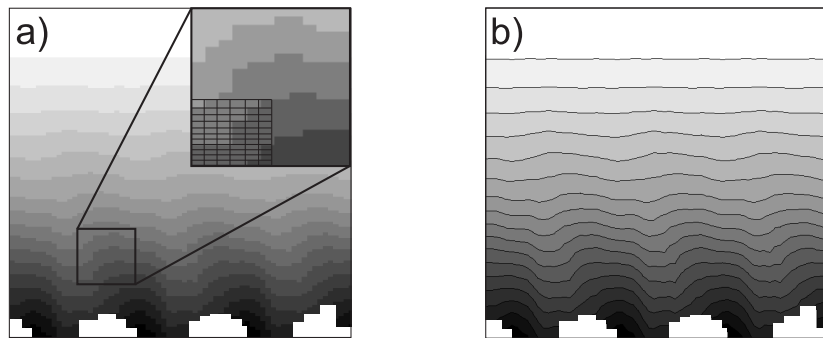
In der Praxis erfolgt die Umwandlung der Bilddaten in den Frequenzraum mittels entsprechender Routinen einer Auswertesoftware. Da die Umrechnung recht rechenintensiv sein kann, wird sie häufig mit einem sogenannten FFT-Algorithmus (dabei steht FFT für *fast Fourier transform*) vorgenommen, wie er von Cooley und Tukey vorgeschlagen wurde [107].

In Abbildung A.4 werden eine Fourieranalyse und die damit verbundenen Möglichkeiten zur Filterung demonstriert. Abbildung a) zeigt ein Bild der NiO-Oberfläche mit atomarer Auflösung, welches von einem periodischen Streifenmuster überlagert wird. Dieses kommt vermutlich durch eine äußere Störung, wie z.B. eine elektrische Einstreuung zu Stande. Bild b) zeigt das Fourierbild, also die Darstellung desselben Bildes im Frequenzraum, wobei im mittleren Bereich die tiefen und im Randbereich des Bildes die hohen Frequenzen aufgetragen sind. Das Fourierbild erscheint punktsymmetrisch zur Bildmitte, da im Spektrum zu jeder Frequenz  $f_1$  auch ein Maximum bei  $-f_1$  entsteht. Innerhalb des eingezeichneten Kreises sind die vier Punkte zu sehen, die mit der Periode des atomaren Gitters korrespondieren. Die Pfeile markieren die im Bild a) sichtbaren, periodischen Störungen. Neben diesen

beiden Maxima gibt es noch weitere Maxima im Außenbereich des Fourierbildes, die allerdings weniger dominant sind. In Bild d) wurden mittels der verwendeten Auswertesoftware die mit dem Pfeil markierten Maxima entfernt. Nach einer Rücktransformation in den Ortsraum erhält man Bild c), welches sich von a) nur darin unterscheidet, dass die periodische Störung entfernt wurde. Dieses Verfahren wird in der vorliegenden Arbeit nur bei wenigen Bildern angewandt, bei denen ein dominantes periodisches Störsignal auftritt und eine klare Trennung zwischen Nutzsignal und Störsignal möglich ist. Die Verwendung eines Fourierfilters wird dabei ausdrücklich in der Bildunterschrift genannt.

## A.5 Aufbereitung vertikaler Schnitte in Spektroskopiefeldern

Bei der Auswertung von Spektroskopiefeldern werden in Kapitel 6.6 auch vertikale Schnitte durch die Felder gezeigt. In Abbildung A.5 a) ist ein solcher Schnitt durch das gemittelte Potentialfeld zu sehen. In der Ausschnittsvergrößerung, die ebenfalls abgebildet wird, ist deutlich das Raster der Bildpunkte zu erkennen. Zur besseren Visualisierung wurden diese Schnitte nachbearbeitet und die einzelnen Graustufen mit einer Konturlinie versehen, so dass kein Raster mehr zu sehen ist (Bild b)). Da das Raster vor dieser Nachbearbeitung sehr feinmaschig ist, ist eine solche Bearbeitung unproblematisch.



**Abbildung A.5:** Vertikaler Schnitt durch das gemittelte Potentialfeld (vgl. Abbildung 6.16 a)). In a) wird das Raster der Bildpunkte sichtbar, während in b) zur besseren Visualisierung die Punktzahl erhöht wurde und eine entsprechende Interpolation durchgeführt wurde, so dass kein Raster mehr erkennbar ist. Zusätzlich wurden noch Konturlinien eingezeichnet, die den Übergang zwischen den einzelnen Graustufen verdeutlichen.

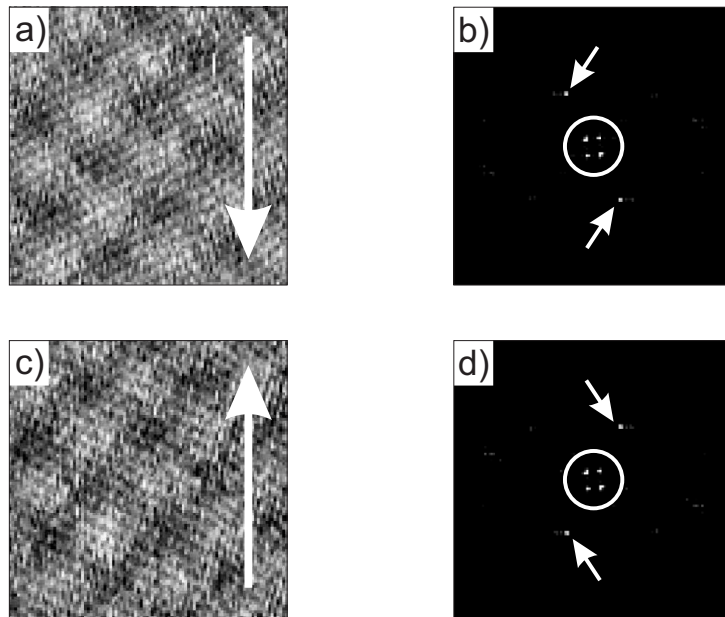
## Anhang B

# Einfluss oszillatorischer Rauschquellen

Oszillatorische Rauschquellen, die in das Messsignal einkoppeln, machen sich bei der Abbildung einer Oberfläche mit einem Rasterkraftmikroskop als streifenweise Modulation des Bildes bemerkbar. In Abbildung B.1 a) ist ein Topographiebild zu sehen, in dem neben der atomar aufgelösten Oberfläche auch eine hochfrequente Modulation präsent ist. Ähnlich wie in Abbildung A.4 zeigt das dazugehörige Fourierbild in Abbildung B.1 b) neben den vier Maxima, die auf die chemischen Einheitszelle zurückzuführen sind, auch zwei jeweils mit einem Pfeil markierte Zusatzmaxima, die durch die Störung entstehen. In Bild a) verläuft die langsame Rasterrichtung von rechts nach links, während die schnelle Rasterrichtung von oben nach unten verläuft, wie es auch durch den Pfeil markiert wird. In Abbildung B.1 c) ist das Bild dargestellt, welches auf dem Rückweg des Bildes a) aufgenommen wurde. Wie in Kapitel 1.2.1 erläutert, unterscheiden sich a) und c) also lediglich durch die Bewegungsrichtung der schnellen Rasterrichtung. Weil in Bild c) eine andere Phasenbeziehung zwischen der Bildaufnahmefrequenz und der Störfrequenz besteht als in Bild a), erscheinen die Streifen der dargestellten Störfrequenz gegenüber Bild a) gespiegelt. Das Verhalten lässt sich gut in den beiden Fourierbildern nachvollziehen. Die Richtung der Störfrequenz im Bild bliebe nur dann unverändert, wenn die Rasterfrequenz und die Störfrequenz genau in Phase wären. In diesem Fall würde man Streifen erhalten, die senkrecht zur schnellen Rasterrichtung verliefen.

Eine Rotation der schnellen Rasterrichtung erlaubt also den Nachweis oszillatorischer Störungen. Bei allen MAK-Messungen, die in Kapitel 5.2 behandelt werden, wurde über ein solches Verfahren eine äußere Störquelle als Ursache für die abgebildeten Modulationen ausgeschlossen. Dazu wurden einerseits die Bilder um  $30^\circ$  rotiert, wie es in Abbildung 5.2 gezeigt wird, und





**Abbildung B.1:** Einfluss äußerer periodischer Störungen auf die Abbildung mit einem Rasterkraftmikroskop. Bild a) und c) unterscheiden sich nur in ihrer schnellen Rasterrichtung, die durch den Pfeil angezeigt wird. In beiden Bildern ist eine hochfrequente Modulation zu sehen, welche auf eine äußere Störung zurückzuführen ist. Durch die Umkehrung der Rasterrichtung wird die Phasenbeziehung zwischen der Störfrequenz und der Rasterfrequenz verändert und die Richtung der streifenartigen Modulation des Bildes ändert sich. Die Störung ist auch in den Fourierbildern b) und d) gut zu erkennen. Im Gegensatz zu den vier eingekreisten Maxima, die durch die chemische Einheitszelle entstehen, ändern die äußeren Maxima, die zur Störfrequenz gehören, ihre relative Position im Fourierbild. Es ist so eine eindeutige Zuordnung der topographischen Signale und der Störsignale möglich.

andererseits wurde üblicherweise auch der Rückweg der Bilder aufgenommen, so dass oszillatorische Rauschquellen als Ursache für die beobachteten Modulationen ausgeschlossen werden können.

# Anhang C

## Störeffekte bei der Abbildung

Bei der Messung mit einem Rasterkraftmikroskop gibt es einige Effekte, die die Abbildung einer Oberfläche stören können. Diese sollen hier kurz genannt und diskutiert werden.

- 1.) Durch Variation der Mikroskoptemperatur kommt es zu thermischer Drift.
- 2.) Die Piezoelemente zeigen nichtlineares Verhalten.
- 3.) Die Ausgangsspannungen der Hochspannungsverstärker zeigen eine Drift.
- 4.) Es koppeln Störungen in die Hochspannungen am piezoelektrischen Stellelement ein.
- 5.) Die Resonanzfrequenz der Messsonde driftet.
- 6.) Die Referenzfrequenz des Frequenzdemodulators zeigt eine Drift.

zu 1.) Da bei tiefen Temperaturen gearbeitet wird und eine sehr gute thermische Ankopplung an einen Badkryostaten erfolgt, wird die thermische Drift weitestmöglich minimiert.

zu 2.) Grundsätzlich zeigen Piezoelemente ein nichtlineares Verhalten. So erfolgt nach Anlegen eines Spannungssprunges auf eine höhere Spannung ein Nachkriechen des Piezoelementes über einen gewissen Zeitraum. Durch die Arbeit bei tiefen Temperaturen und die Wahl eines geeigneten Piezomaterials (PZT-8, vertrieben unter der Bezeichnung EBL#4 [108]) wurde dieser Effekt minimiert. Vor den Messungen der Spektroskopiefelder in Kapitel 6 wurde eine angemessene Zeit gewartet, um den Einfluss des Piezokriechens zu minimieren.

zu 3.) Die Ausgangsspannung der Hochspannungsverstärker ist nicht beliebig stabil, da sich deren Umgebungstemperatur während des Betriebs ändert. Dieser Effekt spielt in der Praxis beim verwendeten System keine dominante Rolle.

zu 4.) Bei einer Reihe von Messungen wurden die Bilder im  $z$ -Stellelement von äußeren Störungen überlagert, die unregelmäßige Perioden im Minutenbereich aufweisen und deren Ursache sich bislang nicht klären ließ. Da diese Modulation des Topographiesignals langsam und ohne Sprünge auftritt, führen diese Störungen nicht zu Regelproblemen und sie lassen sich klar von den sprunghaften Änderungen während eines Spitzenwechsels trennen. Zur Auswertung solcher Bilder wird ein Linienabgleich verwendet, durch den die beschriebenen Störungen praktisch vollständig entfernt werden.

zu 5.) Da die Mikroskoptemperatur aufgrund der Ankoppelung an den Badkryostaten sehr stabil ist, ist die Drift der Resonanzfrequenz der Messsonde anders als bei Raumtemperaturmessungen unproblematisch.

zu 6.) Der verwendete Frequenzdemodulator wurde vom Hersteller auf eine geringe Drift hin optimiert. Das Gerät wird lange vor Beginn einer Messung eingeschaltet, um ein Driften infolge von Aufwärmeeffekten zu vermeiden.

Die beschriebenen Effekte sorgen für unphysikalische Höhenmodulationen in den Bilddaten, die eine Falschfarbendarstellung erschweren. Ein Linienabgleich, wie in Anhang A.2 beschrieben, entfernt diese störenden Effekte. Bei einer solchen Nachbearbeitung der Bilder werden allerdings sprunghafte Änderungen zwischen zwei benachbarten Zeilen ausgeglichen, die beispielsweise auf einen Spitzenwechsel hindeuten (siehe dazu auch Kapitel 4.6 und Kapitel 5.2.6). Deshalb ist bei der Bearbeitung der Rohdaten immer eine angemessene Vorsicht geboten.

# Veröffentlichungen

- *Domain nucleation and growth of  $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{Mn}_{0.3-\delta}/\text{LaAlO}_3$  films studied by low temperature MFM*,  
M. Liebmann, U. Kaiser, A. Schwarz, R. Wiesendanger, U.H. Pi, T.W. Noh, Z.G. Khim and D.-W. Kim,  
J. Appl. Phys. **93**, 8319 (2003).
- *Vortex dynamics in  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$  single crystals with low density columnar defects studied by magnetic force microscopy*,  
U.H. Pi, D.H. Kim, Z.G. Khim, U. Kaiser, M. Liebmann, A. Schwarz, and R. Wiesendanger,  
Proc. Int. Conf. Physics and Chemistry of Molecular and Oxide Superconductors, J. Low Temp. Phys. **131**, 993 (2003).
- *Tilted magnetization of a  $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3/\text{LaAlO}_3$  (001) thin film*  
M. Liebmann, U. Kaiser, A. Schwarz, R. Wiesendanger, U.H. Pi, T.W. Noh, Z.G. Khim, and D.W. Kim,  
J. Magn. Magn. Mater. **280**, 51 (2004).
- *Visualization of the Barkhausen Effect by Magnetic Force Microscopy*,  
A. Schwarz, M. Liebmann, U. Kaiser, R. Wiesendanger, T.W. Noh, and D.W. Kim,  
Phys. Rev. Lett. **92**, 77206 (2004).
- *Magnetization reversal of a structurally disordered manganite thin film with perpendicular anisotropy*,  
M. Liebmann, A. Schwarz, U. Kaiser, R. Wiesendanger, D.-W. Kim, and T.W. Noh,  
Phys. Rev. B **71**, 104431 (2005).
- *Magnetic Exchange Force Microscopy with Atomic Resolution*,  
U. Kaiser, A. Schwarz, and R. Wiesendanger,  
Nature **446**, 522 (2007).



# Konferenzbeiträge

- U. Kaiser, A. Schwarz, U.H. Pi, M. Liebmann, Z.G. Khim, T.W. Noh, D.W. Kim, and R. Wiesendanger, *Visualisierung der Barkhausen-Volumen einer ferromagnetischen Schicht mittels Magnetkraftmikroskopie*.  
67. Frühjahrstagung der Deutschen Physikalischen Gesellschaft, Dresden. 25.3.2003 (Vortrag)
- U. Kaiser, M. Liebmann, A. Schwarz, U.H. Pi, Z.G. Khim, T.W. Noh, D.W. Kim, and R. Wiesendanger, *Domain nucleation and growth of ferromagnetic  $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3/\text{LaAlO}_3$  films at variable magnetic fields studied with low-temperature MFM*.  
12th International Conference on STM, Eindhoven (Niederlande). 22.7.2003 (Poster)
- U. Kaiser, M. Liebmann, A. Schwarz, R. Wiesendanger, U.H. Pi, Z.G. Khim, T.W. Noh and D.W. Kim, *Magnetkraftmikroskopische Untersuchungen ferromagnetischer  $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_{0.3-\delta}/\text{LaAlO}_3$ -Filme in variablen Magnetfeldern*.  
68. Frühjahrstagung der Deutschen Physikalischen Gesellschaft, Regensburg. 9.3.2004 (Poster)
- U. Kaiser, N. Plock, A. Schwarz, and R. Wiesendanger, *Charged and non-charged surface defects on  $\text{NiO}(001)$  investigated by dynamic mode SFM*.  
7th International Conference on Noncontact Atomic Force Microscopy (NCAFM '04), Seattle, Washington (USA). 15.9.2004 (Vortrag)
- U. Kaiser, N. Plock, A. Schwarz, and R. Wiesendanger, *Charged and non-charged surface defects on  $\text{NiO}(001)$  investigated by AFM*.  
69. Frühjahrstagung der Deutschen Physikalischen Gesellschaft, Berlin. 4.3.2005 (Poster)

- U. Kaiser, A. Schwarz, and R. Wiesendanger, *Advances in 3D-Force-Field-Spectroscopy*.  
4th International Conference on Scanning Probe Spectroscopy (SPS'06) and 1st International Workshop on Spin-Polarized Scanning Tunneling Microscopy (SPSTM-1), Hamburg. 26.7.2006 (Poster)
- U. Kaiser, A. Schwarz, and R. Wiesendanger, *Magnetic Exchange Force Microscopy*.  
International Conference on Nanoscience and Technology, Basel (Schweiz). 4.8.2006 (Vortrag)
- U. Kaiser, A. Schwarz, and R. Wiesendanger, *Magnetic Exchange Force Microscopy*.  
71. Frühjahrstagung der Deutschen Physikalischen Gesellschaft, Regensburg. 29.3.2007 (Vortrag)



# Danksagung

An dieser Stelle möchte ich die Gelegenheit nutzen, um einigen Menschen zu danken, die zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben.

Mein erster Dank geht an Prof. Dr. Roland Wiesendanger, der es mir ermöglicht hat, in seiner hervorragend ausgestatteten Arbeitsgruppe diese Doktorarbeit anzufertigen, und der mit Interesse und Wohlwollen die Fortschritte auf dem Weg zur magnetischen Austauschkraftmikroskopie verfolgt hat.

Meinem Betreuer Dr. Alexander Schwarz bin ich ebenfalls zu Dank verpflichtet. Er hat für eine umfassende Betreuung gesorgt und dank seiner großen Erfahrung habe ich ihn auch bei Rückschlägen im Labor nie ratlos gesehen. Zudem hat er sich mit großem Engagement um unser Nature-Paper verdient gemacht, wofür ihm ein besonderer Dank gebührt.

Ein weiterer Dank geht an meine Laborkollegen, mit denen ich während meiner Doktorarbeit zusammengearbeitet habe. Zuallererst sei hier Nico Plock genannt, der während seiner Diplomarbeit wichtige Voraussetzungen für das spätere Gelingen der magnetischen Austauschkraftmikroskopie geschaffen hat. Des Weiteren möchte ich mich bei Dr. Ung-Hwan Pi, Dr. Michaela Zeyer-Düsterer, Timo Behnke, René Schmidt und Knud Lämmle für die nette und produktive Arbeitsatmosphäre bedanken.

Nicht vergessen möchte ich an dieser Stelle unsere studentischen Hilfskräfte. Namentlich handelt es sich um Martin Deppe, Matthias Menzel, Thim Stapelfeldt, Cecelie Hector und Armin Richter, die während meiner Doktorarbeit entweder im Labor oder bei der MATLAB-Programmierung mitgearbeitet haben. Dabei möchte ich mich besonders bei Armin für seine tatkräftige Unterstützung bei der MATLAB-Programmierung bedanken.

Hilfestellungen auf dem Elektroniksektor habe ich von Michael Langer erhalten. Unter anderem hat er den Amplitudengleichrichter aufgebaut, der während der durchgeführten Experimente zum Einsatz kam.

Dr. Hendrik Hölscher hat mir bei einigen Fragen zur Kraftspektroskopie schnell und kompetent weitergeholfen. Von ihm stammt auch eine in dieser Arbeit verwendete Unterroutine für die Umrechnung der Spektroskopiekurven.

Ein großer Dank geht an die nicht namentlich genannten Mitglieder der Gruppe R, die für ein angenehmes Arbeitsklima gesorgt haben. Viele Fragen und Probleme konnten durch die große Erfahrung, die in unserer Arbeitsgruppe vereint ist, in kurzer Zeit geklärt werden. Auch auf der menschlichen Ebene ist es ein Gewinn, in dieser multinationalen Gruppe zu arbeiten.

Ausdrücklich möchte ich mich auch bei den institutseigenen Werkstätten und ihren Mitarbeitern bedanken. So gab es in der elektronischen Werkstatt mit ihrem Leiter Horst Biedermann immer ein offenes Ohr für Probleme im elektronischen Bereich und es wurden dort wichtige Hilfestellungen gegeben. Ein besonderes Dankeschön geht an die mechanische Werkstatt und ihren Leiter Rolf-Peter Benecke. Ihnen habe ich viele Bauteile zu verdanken, die im Regelfall schnell und zuverlässig angefertigt wurden. Hier wurde häufig „Unmögliches“ möglich gemacht.

Auch Herrn Wolfgang Hatje gebührt ein großes Dankeschön. Er ist für die Versorgung mit flüssigem Helium zuständig und hat vielfach mit großem Einsatz dafür gesorgt, dass trotz technischer Widrigkeiten eine bestmögliche Versorgung gewährleistet wurde.

Neben der beruflichen Seite gibt es im privaten Umfeld einige Menschen, von denen ich während meiner Doktorarbeit Zuspruch erfahren habe. Dabei geht vor allem ein großer Dank an Janine, für ihre liebevolle Unterstützung auch während der Durststrecken, die die Experimentalphysik bereit hält.

Zu guter Letzt möchte ich mich herzlich bei meinen Eltern und meinem Bruder für die große moralische Unterstützung bedanken, die ich von ihnen erfahren habe.