



Henning von Allwörden (Autor)
**Aufbau und Charakterisierung eines 300 mK-UHV-10 T-
Rasterkraftmikroskop-Systems und Messungen an Co-Salen
auf Fe/W(001)**



<https://cuvillier.de/de/shop/publications/6997>

Copyright:

Cuvillier Verlag, Inhaberin Annette Jentsch-Cuvillier, Nonnenstieg 8, 37075 Göttingen, Germany
Telefon: +49 (0)551 54724-0, E-Mail: info@cuvillier.de, Website: <https://cuvillier.de>



Kapitel 1

Überblick

Die Rastersonormethoden, worunter im Folgenden die Rastertunnel- und Rasterkraftmikroskopie (kurz: RTM bzw. RKM) zu verstehen sind, waren bei ihrer Einführung in den 1980er Jahren die erste Möglichkeit, Oberflächen von Substraten mit atomarer Auflösung im realen Raum abzubilden [1]. Seitdem haben sie eine rasante Entwicklung durchlaufen und stellen in der heutigen Oberflächenphysik ein unerlässliches Werkzeug dar. Sie erlauben durch ihre enorme Präzision Einblicke in kleinste Dimensionen sowie die direkte Beobachtung von Effekten in Größenskalen bis hinunter in den Pikometerbereich. Damit tragen sie einen erheblichen Anteil zu einem tieferen Verständnis physikalischer Abläufe bei und ermöglichen dadurch auch Rückschlüsse auf makroskopische Dimensionen.

Die Anwendungsmöglichkeiten der Rastersonormethoden sind enorm, unterschiedlichste Methoden offenbaren verschiedene Eigenschaften einer Oberfläche. Über die Abbildung der reinen Höheninformationen oder magnetischer Domänen, über Reibungs- und Elastizitätsmessungen bis hin zur Untersuchung biologischer Proben und chemischer Reaktionen sind der Nutzung kaum Grenzen gesetzt. Auch die Manipulation einzelner Atome, also ihr kontrolliertes Ver- und Zusammenschieben, und damit der Bau beliebiger Strukturen sowie ihre anschließende Untersuchung ist möglich. Die Entwicklung der spinsensitiven Detektion erlaubt zudem die Abbildung einzelner magnetischer Momente und ist damit im Hinblick auf die Grundlagen des Magnetismus' von besonderem Interesse.

Die Messungen beruhen dabei auf den Wechselwirkungen zwischen einer Spitze und der Probe; in der 1982 eingeführten RTM [2] ist es ein aufgrund des Tunneleffekts fließender Strom ohne direkten Kontakt. Dieser quantenmechanische Effekt führt zu einer starken Abstandsabhängigkeit, die Messungen zeigen nach dem Tersoff-Hamann-Modell die lokale Zustandsdichte der Probe [3]. Unter Umgebungsbedingungen ist allerdings die Abbildung der ursprünglichen Oberflächen wegen vorhandener Oxide oder anderer Verunreinigungen für gewöhnlich nur bei sehr inerten Substraten wie etwa Graphit möglich. Ansonsten ist die Anwendung eines Ultrahochvakuums (UHV) und eine darin stattfindende, spezielle Oberflächenpräparation erforderlich [4], um tatsächlich atomare Auflösung der Oberfläche erzielen zu können. Der zusätzliche Einsatz extrem tiefer Temperaturen von wenigen Kelvin oder darunter erhöht die Stabilität des Probensystems und schränkt die Beweglichkeit einzelner Objekte ein, wodurch detaillierte und langwierige Messungen ermöglicht werden. Zudem erlauben sie die Beobachtung bestimmter Phänomene, die erst unterhalb einer bestimmten Temperatur auftreten, und es erhöht sich mit sinkenden Temperaturen die Energieauflösung der Messmethode [5]. Der Einsatz in Verbindung mit einem ^3He -Verdampfungskryostaten für Temperaturen

um 300 mK [6, 7] oder in einem ^3He - ^4He -Mischungskryostaten für bis zu 10 mK [8–10] liegt daher nahe. Die mit solchen komplexen Anlagen erzielten Ergebnisse rechtfertigen jedoch den Aufwand: Die Untersuchung des zweidimensionalen Elektronensystems von Graphen [9], der magnetischen Wechselwirkung einzelner Cobalt-Atome auf Platin [11], Spinanregungen atomarer Manganketten [12] oder der Bau logischer Elemente aus einzelnen Atomen [13] werden damit ermöglicht.

Die RKM hingegen ist sensitiv auf zwischen der Spitze und Probe wirkenden Kräfte und erlaubt daher im Gegensatz zur RTM auch die Untersuchung isolierender Substrate. Dabei wirken langreichweitige Anteile auf mehr als nur das vorderste Spitzenatom, weshalb die Form der Spitze von entscheidender Bedeutung ist und für gute laterale Auflösung möglichst spitz zulaufen sollte. Die gleichzeitig existenten kurzreichweitigen Kräfte sowie die Überlagerung der Beiträge unterschiedlicher Herkunft erschweren bei kleinen Abständen die Analyse der gewonnenen Daten. Da zudem attraktive und repulsive Komponenten auftreten, ist die sich ergebende, gesamte Kraft aller Anteile nicht monoton mit dem Abstand, was bei der automatisierten Steuerung des Experiments durch einen Regelkreis ein Problem darstellen kann, sofern der Bereich zwischen dominierenden anziehenden und abstoßenden Kräften überschritten wird.

Die RKM wurde 1986 von G. BINNIG, C. F. QUATE und CH. GERBER und damit nur wenige Jahre nach der RTM präsentiert [14]. Kurz darauf gelang die erste atomare Auflösung eines elektrischen Leiters [15] sowie von Isolatoren [16, 17], jedoch zeigten diese Messungen lediglich die Translationssymmetrie aber keine Gitterdefekte oder Stufenkanten. Dies wurde als eine Wechselwirkung mehrerer äquivalenter Spitzenatome mit der Oberfläche interpretiert. Es dauerte ein paar Jahre, ehe unter Verwendung eines UHVs und der frequenzmodulierten RKM wahre atomare Auflösung reproduzierbar erzielt wurde [18]. Diese Methode ermöglichte in der Folgezeit entsprechende Untersuchungen aller Materialklassen wie Metallen, Isolatoren und Halbleitern. Die erreichbare Auflösung skaliert mit der Temperatur, so dass der Einsatz von Bad- [19, 20] oder Mischungskryostaten [21, 22] eine logische Folgerung ist. Damit war analog zur spinpolarisierten RTM die Abbildung einzelner magnetischer Momente möglich, was bereits 1991 vorgeschlagen [23], aber erst 2007 auf einem antiferromagnetischen NiO(001)-Einkristall realisiert werden konnte [24]. Die Temperatur betrug für diese Untersuchungen etwa 8 K, was im Hinblick auf das Auflösungsvermögen gerade ausreichte, um das schwache magnetische Signal sehen zu können [24]. Weitere Messungen mit dieser sogenannten magnetischen Austauschkraftmikroskopie (MA-RKM) konnten auf der ebenfalls antiferromagnetischen Monolage Eisen auf der W(001)-Oberfläche erzielt werden [25].

Trotz dieser Fortschritte gibt es bis heute keine veröffentlichte RKM-Messung mit atomarer Auflösung bei Temperaturen kleiner als 4,2 K, der Temperatur flüssigen Heliums bei Normaldruck. Die Erhöhung der Sensitivität durch Erniedrigung der Temperatur in Kombination mit der stark eingeschränkten Mobilität der Probensysteme würde neue Möglichkeiten für Untersuchungen eröffnen. Die schwachen magnetischen Signale in der beschriebenen MA-RKM wären dann deutlich größer als das Auflösungsvermögen und könnten leichter identifiziert werden. Zudem wäre die Anwendung auf einzelne, isolierte Atome oder Moleküle auf einem Isolator möglich, da einerseits im Gegensatz zu metallischen Proben eine deutlich schwächere Hybridisierung und damit auch eine schwächere Ankopplung an das Substrat stattfindet. Andererseits wird

die dadurch allerdings ebenfalls erhöhte Mobilität der adsorbierten Objekte durch die geringere thermische Energie wiederum eingeschränkt, so dass das Bewegen über die Oberfläche, das Zusammenlaufen und damit die Bildung von Inseln oder das Ansammeln an Stufenkanten unterbunden wären.

Aus diesen Gründen wird in der vorliegenden Arbeit der Aufbau und die Charakterisierung einer neu konzipierten UHV-Anlage in Kombination mit einem kommerziell erworbenen ^3He -Verdampfungskryostaten sowie die Entwicklung eines dazugehörigen Rasterkraftmikroskops behandelt. Die theoretisch erreichbaren Temperaturen liegen für diese Kühlmethode bei etwa 300 mK, zudem steht ein 10 T-Solenoid zur Verfügung, dessen Feld senkrecht zur Probe steht. Nach einer Einführung in die Grundlagen der RKM (Kapitel 2) wird das Konzept des Gesamtsystems vorgestellt und auf die Einzelheiten des UHV-Systems eingegangen (Kapitel 3). Eine Einordnung des Kryostaten und seiner Funktionsweise im Vergleich zu anderen Systemen erfolgt in Kapitel 4 und es wird auf grundlegende Einzelheiten seiner Bedienung eingegangen. Anschließend werden der Aufbau und die Besonderheiten des Mikroskopkörpers beschrieben, der bei nur wenigen hundert Millikelvin funktionieren und auch thermischen Zyklen standhalten soll (Kapitel 5). Besonderes Augenmerk wird dabei auf die thermische Ankopplung und die Verkabelung gelegt, um den Wärmeeintrag so gering wie möglich zu halten und damit eine niedrige Endtemperatur zu erreichen. Zudem folgt eine Abgrenzung zu anderen Messmethoden. Die Charakterisierung des Gesamtsystems, bestehend aus Kryostaten, der für die Probenpräparation vorhandenen Apparaturen sowie des Mikroskops wird ausführlich behandelt (Kapitel 6). Insbesondere wird auf auftretende Schwierigkeiten in Form von Störschwingungen, deren ausführliche Analyse und die durchgeführten Gegenmaßnahmen eingegangen. Erste Messungen auf Natriumchlorid mit atomarer Auflösung sowie von Cobalt-Einzelatomen auf der Monolage Mangan auf Wolfram zeigen die potentielle Leistungsfähigkeit des Systems (Kapitel 7).

Als mögliches Molekül für zukünftige MA-RKM kommt z. B. Co-Salen in Frage, das über ein magnetisches Zentrum verfügt und dessen Ankopplung an eine magnetische Oberfläche interessante Effekte zeigen könnte. Daher wurde es an einer anderen Messanlage auf der Monolage Eisen auf Wolfram bei einer Basistemperatur von 8 K untersucht (Kapitel 8). Es zeigte sich, dass sich aufgrund des Verhältnisses von Molekülgröße zu Gitterkonstante des Substrats keine eindeutige Adsorptionsgeometrie einzustellen scheint. Zusätzliche Messungen könnten allerdings zu einer besseren Statistik führen, ebenso könnten beobachtete Effekte im Detail weiter untersucht werden.

Generell wird für hohe laterale Auflösung eine spitz zulaufende Messspitze benötigt, um den Einfluss langreichweitiger Kräfte zu minimieren. Der sich durch den Herstellungsprozess ergebende Öffnungswinkel wird durch das Aufbringen metallischer Schichten für elektrische Leitfähigkeit oder magnetische Sensitivität auf den siliziumbasierten Federbalken tendenziell vergrößert und damit die erreichbare Abbildungsqualität verschlechtert. Die nachträgliche Spitzenmanipulation etwa durch die Wechselwirkung mit der Probe ist daher vor präzisen Messungen zumeist notwendig, jedoch existiert bisher kein für unterschiedlichste Probensysteme gültiges, reproduzierbares Vorgehen. Lediglich bei einzelnen Spitze-Probe-Kombinationen konnten entsprechende Prozeduren etabliert werden. Deshalb wurden im Zuge der Messungen bei 8 K Kraft-Distanz-Kurven verwendet, um aus dem auf Probe und Spitze aufgebrauchten Material neue Nanospitzen zu erzeugen, die auf ihre Abbildungsqualität hin untersucht wurden (Kapitel 9).



Dabei wurde auch das von der RTM bekannte Pulsen verwendet, bei dem durch das kurzzeitige Anlegen von Spannungen zwischen Spitze und Probe Oberflächenmaterial transferiert oder umstrukturiert werden kann, wodurch die Spitze in ihrer geometrischen Form verändert wird. Die dabei auftretenden Besonderheiten und Details werden dargestellt und mögliche Erklärungsmodelle angegeben.



Kapitel 2

Grundlagen der Rasterkraftmikroskopie

In der Rasterkraftmikroskopie (RKM) werden die zwischen einer Messspitze und Probe vorhandenen Wechselwirkungen detektiert. Die Spitze befindet sich dabei am freien Ende eines einseitig befestigten Federbalkens und wird mittels piezoelektrischer Elemente in einer sehr feinen Rasterbewegung über die Probe geführt. Die je nach relativer Ausrichtung oder Abstand zur Probe unterschiedlichen Kräfte beeinflussen den Federbalken und können dadurch detektiert werden. Im statischen Modus wird dazu lediglich seine Verbiegung bestimmt, während in verschiedenen dynamischen Modi, in denen er kontinuierlich zu Schwingungen angeregt wird, eine Veränderung der Phase, Amplitude oder Frequenz gemessen wird. Die so erhaltene, orts aufgelöste Information stellt ein Abbild der Oberfläche dar, in der etwa bei Untersuchung von Kristallen unter entsprechenden Umgebungsbedingungen Substratterassen, Inseln und Stufenkanten erkennbar sind. Diese Topographie wird also direkt im realen Raum gewonnen, sie stellt allerdings immer eine Faltung der geometrischen Form von Spitze und Probe dar, weshalb für eine hohe laterale Ortsauflösung eine sehr scharfe Messspitze mit kleinem Endradius verwendet werden muss. Aus diesem Grund werden solche Spitzen entweder zusammen mit dem Federbalken mittels lithographischer Methoden aus Silizium gefertigt oder einzeln durch das nasschemische Ätzen eines Drahtes, wie es standardmäßig in der vom Messaufbau her ähnlichen Rastertunnelmikroskopie (RTM) angewendet wird.

Aufgrund des Messprinzips können mit der RKM jedwede Substrate untersucht werden, im Gegensatz zur RTM ist eine Beschränkung auf elektrisch leitende Proben nicht erforderlich. Nicht nur deshalb, sondern auch wegen der Möglichkeit, aufgrund der unterschiedlichen Reichweiten der einzelnen Wechselwirkungen zwischen Spitze und Probe verschiedene Eigenschaften abbilden zu können, wurden diverse auf der RKM basierende Methoden entwickelt. So können beispielsweise bei größeren Abständen von einigen 10 nm und einer magnetisch sensitiven Spitze magnetische Domänen abgebildet werden (Magnetkraftmikroskopie, engl. *magnetic force microscopy* (MFM)) [26], während bei Verkleinerung des Abstands und einer bis auf wenige Kelvin gekühlten Probe, wodurch die thermische Bewegung minimiert wird, die sehr kurzreichweitigen Austauschkräfte zweier einzelner Spins gemessen werden können (MA-RKM) [24].

Für ein besseres Verständnis wird im Folgenden ein Überblick über die auftretenden Kräfte gegeben, um anschließend auf die Besonderheiten der frequenzmodulierten RKM einzugehen, die für die in dieser Arbeit vorgestellten Messungen zum Einsatz kam.



2.1 Kräfte in der Rasterkraftmikroskopie

Die bei Messungen mit der RKM auftretenden Kräfte sind vielfältiger Natur und können nach ihrer Reichweite und Stärke unterschieden werden. Wird die Spitze der Probe angenähert, so treten zunächst attraktive Wechselwirkungen auf, die bei Distanzen von einigen 100 nm noch messbar sind. Sie werden bei weiterer Annäherung größer und es kommen weitere, zusätzliche Anteile hinzu. Bei sehr kleinen Abständen beginnen repulsive Kräfte, wie Pauli-Abstoßung und Coulomb-Wechselwirkung, zu dominieren, die schnell exponentiell zunehmen. Während die detektierten langreichweitigen Kräfte stark von der Spitzengeometrie abhängen, da sie auch auf ihr Volumen wirken, ist für kurzreichweitige Wechselwirkungen nur das vorderste Spitzenende relevant. Für Messungen im Ultrahochvakuum mit der frequenzmodulierten RKM im Nichtkontaktbereich (Kapitel 2.2), wie sie in dieser Arbeit angewendet wurde, sind dabei nicht alle denkbaren Wechselwirkungen von Bedeutung, da etwa Reibungs- oder Kapillarkräfte, letztere aufgrund eines fehlenden Wasserfilms, keine Rolle spielen. Betrachtet werden daher an dieser Stelle nur folgende Anteile:

Elektrostatische Kräfte

Werden zwei verschiedene Materialien miteinander in Kontakt gebracht, so entsteht aufgrund der unterschiedlichen Fermienergien eine Kontaktspannungsdifferenz U_{CPD} , die zu einer attraktiven, elektrostatischen Wechselwirkung führt. Für eine als kugelförmig angenommene Spitze mit Radius R gilt bei einem Abstand $d < R$ zur Oberfläche für die Kraft [27]

$$F_{\text{el}} = -\frac{\pi\epsilon_0 R}{d}(U_{\text{s,p}} - U_{\text{CPD}})^2. \quad (2.1)$$

Sie kann durch Anlegen einer entsprechend großen Spannung $U_{\text{s,p}}$ zwischen Spitze und Probe kompensiert werden. Zu ihrer Bestimmung wird bei konstantem Abstand die Wechselwirkung auf den Federbalken als Funktion der Spannung aufgezeichnet. Wegen des angegebenen Zusammenhangs $F \sim -\Delta U^2$ ergibt sich eine nach unten geöffnete Parabel, für deren Maximum genau $U_{\text{s,p}} = U_{\text{CPD}}$ gilt.

Bei Isolatoren gibt es im Gegensatz zu Metallen keinen Ausgleich der unterschiedlichen Fermienergien durch Ladungsaustausch, weshalb der Begriff des Kontaktpotentials nicht definiert ist. Dennoch können gerade bei solchen Materialien große Kontaktspannungen auftreten, die in Form einer Coulombkraft auf die Messspitze einwirken. Insbesondere bei Messungen auf isolierenden Substraten wirken sich derartige Kräfte sehr stark aus, da die Siliziumspitzen durch den Fertigungsprozess oder nativ mit einer einige Nanometer dicken Oxidschicht belegt sind. Deshalb werden sie zuvor metallisch beschichtet. Auch die Proben werden vorbehandelt, indem durch Erwärmen die Mobilität von nicht kompensierten Ladungen an der Oberfläche erhöht wird, die sich somit gegenseitig kompensieren oder über den Probenhalter abfließen können.

Dennoch wird durch das Einstellen einer festen Spannung $U_{\text{s,p}}$ nur ein mittleres Kontaktpotential kompensiert, was sich insbesondere bei Probensystemen, die aus mehreren Materialien bestehen, bemerkbar macht, da lokale Unterschiede nicht berücksichtigt werden. Dies kann zu einer falschen Bestimmung von Höhen auf der Probe führen [28]. Abhilfe bietet hier die Kelvinsondenmikroskopie, bei der eine entsprechende Spannung

an jedem Messpunkt durch einen Regelkreis bestimmt und die Wechselwirkung jeweils automatisiert ausgeglichen wird [29].

Van der Waals-Kräfte

Die van der Waals-Kräfte wirken zwischen allen Atomen und Molekülen und beruhen auf Ladungsfluktuationen in der Atomhülle. Dadurch kommt es zur temporären Ausbildung eines elektrischen Dipols, der auf benachbarte Atome einwirken und diese wiederum polarisieren kann. Die dann auftretende Wechselwirkung zwischen beiden Momenten ist attraktiv und spielt in der RKM eine wichtige Rolle, da diese Kräfte etwa im Gegensatz zu den elektrostatischen Kräften nicht kompensiert werden können. Auf atomarer Skala bei Distanzen weniger als etwa 5 nm sind sie mit $\sim 1/d^6$ vom Abstand d abhängig. Bei größeren Entfernungen treten Retardierungseffekte auf, weshalb sie oberhalb etwa 100 nm mit $\sim 1/d^7$ abfallen [30].

In einem realen Spitze-Proben-System müssen die Beiträge aller beteiligten Atome der Körper aufsummiert werden, wodurch die makroskopische Struktur der Spitze berücksichtigt werden muss. Unter Annahme einer konstanten Teilchendichte kann über eine sogenannte Hamaker-Integration die Wechselwirkung bestimmt werden. So gilt z. B. für eine Kugel mit Radius r im Abstand d zu einer ausgedehnten Oberfläche [30]

$$F_{\text{vdW}} = -\frac{Hr}{6d^2} \quad (2.2)$$

mit der Hamaker-Konstante H [31], die von den Eigenschaften wie Dichte und atomare Polarisierbarkeit der betrachteten Materialien abhängt und für Vakuum meist einen Wert um 1 eV hat [1]. Die Betrachtung des makroskopischen Systems reduziert also die starke Abstandsabhängigkeit $1/d^6$ des Zweiteilchenproblems erheblich. Tatsächlich ergibt sich für pyramiden- oder kegelförmige Spitzen sogar nur eine Distanzabhängigkeit der Kraft von $1/d$ [32], womit sie wie auch die elektrostatische Kraft zu den langreichweitigen Anteilen zählt.

Die Geometrie des vordersten Spitzenendes ist im Allgemeinen jedoch nicht bekannt, so dass die während einer Messung wirkenden van der Waals-Kräfte nicht bestimmt werden können. Aufgrund der starken Abstandsabhängigkeit des Zweiteilchenproblems ist es offensichtlich hilfreich, sehr spitz zulaufende Messsonden zu verwenden, um die Wechselwirkung möglichst klein zu halten.

Magnetostatische Kräfte

Verfügen Spitze und Probe über ein permanentes magnetisches Dipolmoment, so können magnetische Eigenschaften abgebildet und untersucht werden. Grundlage ist die Wechselwirkung zwischen dem erzeugten Feld der Spitze mit der Polarisation der Probe und umgekehrt, wobei die Größe von ihrem Abstand, dem Absolutwert der Dipole und ihrer relativen Ausrichtung zueinander abhängt. Zur Erlangung eines Kontrastes muss dabei jedoch immer eine parallele Komponente vorhanden sein. Die so gewonnenen Daten erlauben deshalb auch keine Bestimmung der absoluten Ausrichtung des Moments von Probe oder Spitze, durch Betrachtung der Anisotropie des Spitzenendes können lediglich Einschränkungen gemacht werden.



Die magnetostatischen Kräfte gehören ebenfalls zu den langreichweitigen und können daher durch einen erhöhten Spitze-Probe-Abstand von den kurzreichweitigen separiert werden. Die Messmethode wird Magnetkraftmikroskopie genannt [26] und erlaubt z. B. die Abbildung von Domänenstrukturen durch Messung des Streufeldes.

Chemische Kräfte

Kurzreichweitige Kräfte, die nur beim Überlapp von Orbitalen der Spitze und Probe auftreten, werden allgemein als chemische Kräfte bezeichnet. Diese interatomaren Wechselwirkungen beinhalten unterschiedliche Anteile und können kovalenten, ionischen oder metallischen Charakter aufweisen. Für atomare Auflösung mittels der RKM bilden diese Kräfte den Hauptbeitrag des bildgebenden Kontrastes [33], auch wenn ihre Reichweite meist kleiner ist als die Schwingungsamplitude des Federbalkens. So genügt aber z. B. eine nur kurze Ausbildung von Bindungen auf der reaktiven Si(111)-Oberfläche, um eine entsprechende Detektion zu ermöglichen [18, 34].

Magnetische Austauschkräfte

Bei kleinen Abständen von nur wenigen 100 pm zwischen Spitze und Probe tritt die spinabhängige Austauschkraft auf, bei der es sich um den Austausch zwischen zwei magnetischen Momenten handelt, die jedoch viel stärker als jede andere magnetostatische Wechselwirkung ist. Auf atomarer Ebene lässt sie sich im Heisenberg-Modell durch einen Hamilton-Operator

$$\hat{H} = - \sum_{ij} J_{ij} \vec{S}_i \cdot \vec{S}_j \quad (2.3)$$

mit dem Austauschintegral J_{ij} darstellen [35], der direkt die Wechselwirkung zweier Spins \vec{S}_i und \vec{S}_j widerspiegelt. Ist $J_{ij} < 0$, so wird zwischen benachbarten magnetischen Momenten eine antiparallele Ausrichtung bevorzugt. Aufgrund der extrem kurzen Reichweite muss eine magnetisch sensitive Spitze sehr nah an die Probenoberfläche gebracht werden. Da für Messungen meist beschichtete Siliziumspitzen verwendet werden, kann dies aufgrund der zusätzlich wirkenden Kräfte zu einem Ablösen des magnetischen Materials führen. Trotz der experimentellen Schwierigkeiten ist die auf der Messung eben dieser Wechselwirkung basierende magnetische Austausch-Rasterkraftmikroskopie (MA-RKM) für das Verständnis des Magnetismus' auf atomarer Skala erste Wahl, da sie die Abbildung einzelner Probenmomente ermöglicht. Mit dieser Methode sind bisher Messungen auf dem antiferromagnetischen NiO(001) sowohl mit Siliziumspitzen [24] als auch dem quarzbasierten qPlus-Sensor [36] sowie auf der Monolage Eisen auf W(001) [37] durchgeführt worden.

Repulsive Kräfte

Bei sehr kleinen Abständen treten starke repulsive Wechselwirkungen zwischen Probe und Spitze auf, die zum einen durch das Pauli-Prinzip bedingt sind, das besagt, dass sich zwei Elektronen bei überlappenden Orbitalen nicht im gleichen quantenmechanischen Zustand befinden dürfen. Zum anderen werden die Ladungen der Atomkerne nur unzureichend abgeschirmt, weshalb sie sich gegenseitig abstoßen (ionische Abstoßung).

Die Kräfte nehmen dabei bei Verkleinerung des Abstandes sehr schnell zu und überwiegen die zuvor beschriebenen attraktiven Anteile. Werden zudem makroskopische Körper betrachtet, die aus mehreren Atomen bestehen, so werden sie bei einem mechanischen Kontakt plastisch verformt, was ebenfalls zu einer Abstoßung führt. Der Grad der Verformung hängt dabei von der wirkenden Kraft und den Materialeigenschaften ab, entsprechende Modelle zur Beschreibung der Elastizität erlauben eine Analyse. Für einen Überblick dazu sei auf die Literatur verwiesen, z. B. [38] und dort enthaltene Verweise.

Modellpotentiale

Die komplette Beschreibung aller Kräfte gestaltet sich für das Spitze-Probe-System durch die Vielzahl von attraktiven und repulsiven Anteilen und ihren unterschiedlichen Reichweiten durchaus schwierig, weshalb für bestimmte Fälle empirische Modellpotentiale entwickelt wurden. So beschreibt etwa das Morsepotential die chemische Wechselwirkung zwischen zwei Atomen im Abstand d und beinhaltet in einem zusätzlichen Parameter λ die Abklinglänge. Es lässt sich mit der Bindungsenergie E_0 im Gleichgewichtsabstand d_0 als

$$V_{\text{Morse}} = E_0 \left[e^{-2\lambda(d-d_0)} - 2e^{-\lambda(d-d_0)} \right] \quad (2.4)$$

angeben [39]. Es scheitert jedoch bei der Beschreibung von chemischen Bindungen; vor allem die Stärke kovalenter Bindungen zeigt dabei eine Winkelabhängigkeit [40].

Sofern die chemischen Wechselwirkungen keine Rolle spielen, sondern kurzreichweitige van der Waals- oder Dipolkräfte überwiegen, kann das Lennard-Jones-Potential

$$V_{\text{LJ}} = -E_0 \left[2 \left(\frac{d_0}{d} \right)^6 - \left(\frac{d_0}{d} \right)^{12} \right] \quad (2.5)$$

verwendet werden [41]. Der erste Term zeigt durch die $1/d^6$ -Abhängigkeit genau die attraktive van der Waals-Wechselwirkung zwischen zwei Dipolen, während der zweite den repulsiven Anteil angibt.

2.2 Frequenzmodulierte Rasterkraftmikroskopie

Für die in dieser Arbeit vorgestellten Messungen kommt ausschließlich die frequenzmodulierte RKM (FM-RKM) im Nichtkontaktmodus zum Einsatz [42], die für die Anwendung im UHV erste Wahl ist. Der Federbalken schwingt dabei selbstangeregt bei seiner jeweils aktuellen Resonanzfrequenz f mit konstanter Amplitude. Das gemessene Oszillationssignal wird für maximale Anregung phasenverschoben, verstärkt und wieder zur Anregung der Schwingung verwendet [43]. Die Verstärkung wird dabei so gewählt, dass die Amplitude stets konstant ist. Eine Änderung der Wechselwirkung zwischen Spitze und Probe verschiebt die Resonanz, die Frequenzverschiebung $\Delta f = f - f_0$ wird dabei als Differenz zur Resonanz f_0 des frei schwingenden Balkens angegeben. Bei attraktiven Kräften wird f kleiner und damit Δf negativ. Sie ist somit ein Maß für die wirkenden

Kräfte und kann zur Regelung während eines Messvorgangs verwendet werden. Dafür wird ein konstantes Δf vorgegeben und der Abstand zwischen Spitze und Probe ständig mit einem piezoelektrischen Stellelement angepasst, die anliegende Spannung gibt schließlich die Höheninformation der Probe, die Topographie, wieder, die ein Abbild bei konstantem Δf darstellt. Sie ist jedoch immer eine geometrische Faltung aus Spitze und Probe. Die aktuelle Frequenz wird mit einem PLL (engl. *phase-locked-loop*) bestimmt [44, 45], der entsprechend der Abweichung zu einer Referenzfrequenz f_{ref} , meist der freien Resonanz f_0 , ein Signal ausgibt, das zur Regelung verwendet wird.

Die mit dieser Methode kleinste detektierbare Frequenzverschiebung

$$\delta(\Delta f) = \sqrt{\frac{f_0 k_B T B}{2\pi k Q \langle z_{\text{osz}}^2 \rangle}} = \sqrt{\frac{f_0 k_B T B}{\pi k Q A_0^2}} \quad (2.6)$$

hängt von der thermischen Energie $k_B T$, der Bandbreite B des Detektionssystems, der Schwingungsgüte Q und der Amplitude A_0 ab [42]. $\langle z_{\text{osz}}^2 \rangle$ ist der Erwartungswert der quadrierten Schwingungsamplitude des angeregten Federbalkens. Durch Erniedrigung der Umgebungstemperatur und die Verwendung hoher Güten, wie sie für einen schwingenden Federbalken im Vakuum aufgrund der geringen Energieverluste erzielt werden, wird somit die Sensitivität des Experiments erhöht.

Die mechanischen Eigenschaften des Federbalkens sind dabei allein durch seine Dimensionierung und das verwendete Material bestimmt. Für einen rechtwinkligen, einseitig befestigten Balken der Breite b , Länge l und Dicke d ist die Federkonstante k gegeben durch [46]

$$k = \frac{E b d^3}{4 l^3} \quad (2.7)$$

mit dem Elastizitätsmodul E . Alternativ ergibt sie sich auch über die experimentell leicht zu bestimmende freie Resonanzfrequenz f_0 unter Berücksichtigung der Materialdichte ρ aus der Gleichung [47]

$$k = 4\pi^2 M_e \rho b d l f_0^2, \quad (2.8)$$

in die die Dimensionen nur in einfacher Potenz eingehen und damit der Einfluss ihrer Ungenauigkeiten reduziert wird. Die normalisierte effektive Masse M_e nimmt für große Werte des Verhältnisses l/b von Länge und Breite einen konstanten Wert $M_e = 0,2427$ an [47]. Die freie Resonanzfrequenz hingegen beträgt [46, 48]

$$f_0 = \frac{1,875^2 d}{4\sqrt{3}\pi l^2} \sqrt{\frac{E}{\rho}}. \quad (2.9)$$

2.2.1 Zusammenhang von Frequenzverschiebung und wirkenden Kräften

Die zwischen Spitze und Probe bestehenden Wechselwirkungen beinhalten sowohl attraktive als auch repulsive Anteile mit unterschiedlichen Reichweiten. In der FM-RKM ist jedoch die Frequenz der Schwingung die beobachtete und zur Regelung verwendete Größe, weshalb es von besonderem Interesse ist, eine Beziehung zwischen der Frequenzverschiebung Δf und den Kräften $F_{s,p}$ herzustellen.