

5 Tunnelspektroskopie an Lanthanid-Oberflächen

In diesem Kapitel wird die elektronische Struktur von Gd-, Ho- und Lu-Oberflächen mit Hilfe von RTS untersucht. Am Beginn dieser Studie waren folgende Fragen offen:

- Wie verhält sich die Austauschspaltung des Oberflächenzustands über die Serie der dreiwertigen Lanthaniden?
- Welchen Einfluss besitzt die Schichtdicke auf die magnetische Austauschspaltung?
- Wie sieht die Linienform eines *d*-artigen Oberflächenzustands im Tunnelspektrum aus?
- Welche Lebensdauer besitzen die Zustände und wie kann sie aus der Breite der Linien bestimmt werden?
- Welche Auflösung besitzt das neue Tieftemperatur-RTM, wenn es als Spektrometer verwendet wird?

Bevor die Ergebnisse dieser Studie vorgestellt und diskutiert werden, wird einführend ein Überblick über die elektronischen und magnetischen Eigenschaften der untersuchten Elemente gegeben, der die interessanten physikalischen Fragestellungen weiter motiviert.

5.1 Elektronische und magnetische Eigenschaften

Lanthanidmetalle zeichnen sich durch das sukzessive Auffüllen der *4f*-Schale aus, deren Besetzung im Grundzustand nach den *Hundschen Regeln* erfolgt. Die *4f*-Elektronen sind stark lokalisiert und tragen deshalb nicht zur chemischen Bindung bei [Jen 91]. Alle Lanthanidmetalle mit teilweise gefüllter *4f*-Schale bilden im Festkörper magnetisch geordnete Phasen. Gd in der Mitte der Reihe und die folgenden Elemente Tb, Dy, Ho, Er und Tm besitzen jeweils eine ferromagnetische oder ferrimagnetische Phase. Ihre Elektronenkonfiguration ist $[\text{Xe}]4f^n(5d6s)^3$ mit $n=7$ für das hier untersuchte Gd und $n=10$ für Ho. Im Gegensatz hierzu besitzt Lu mit $n=14$ eine abgeschlossene Schale und ordnet nicht magnetisch. Alle aufgeführten Elemente kristallisieren in einer hexagonal dichtgepackten (hcp) Struktur und wachsen auf W(110) mit einer (0001)-Oberfläche auf.

Die magnetische Ordnung von Lanthanidmetallen wird durch die oszillierend vom Abstand abhängigen indirekten RKKY-Austausch hervorgerufen, so dass eine Kopplung

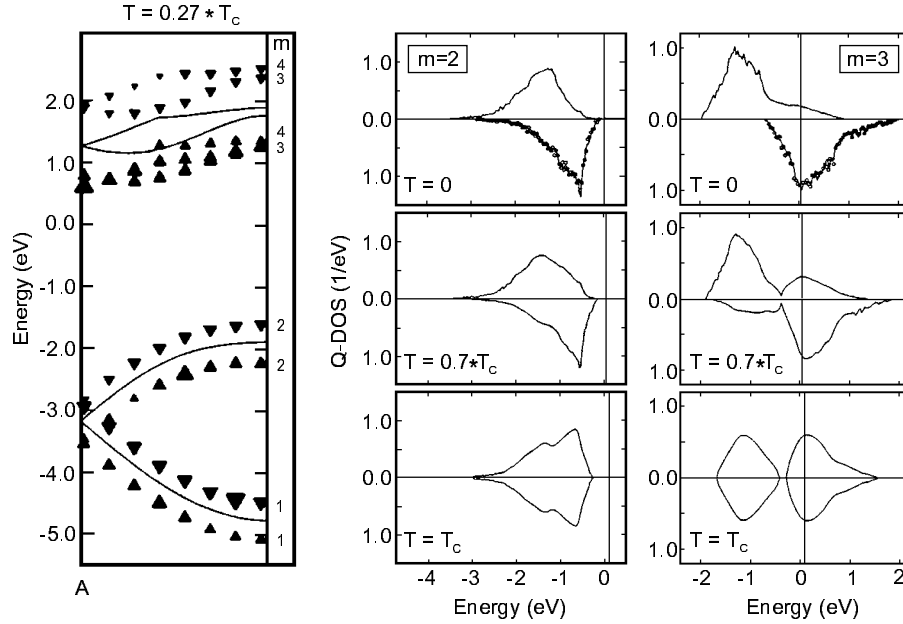


Abbildung 5.1: Spinaufgelöste Bandstrukturrechnung von Gd (links) und die temperaturabhängige Quasiteilchen-Zustandsdichte (rechts) aus [Nol 93]. Die Bänder $m=2$ und $m=3$ zeigen ein unterschiedliches Verhalten. Während das s-artige Band $m=2$ ein Stonerartiges Verhalten mit verschwindender Nettomagnetisierung bei der kritischen Temperatur zeigt, bleibt die Aufspaltung beim flachen Band $m=3$ über den gesamten Temperaturbereich nahezu konstant. Oberhalb von T_C ist es aber nicht mehr spinpolarisiert.

zwischen den stark lokalisierten $4f$ -Elektronen durch eine Polarisation der delokalisierten Leitungselektronen realisiert wird [Rud 54]. Aufgrund der Abstandsabhängigkeit der Wechselwirkung und der starken Anisotropie existieren verschiedene magnetische Strukturen quer durch die Serie der Lanthaniden. Gd ordnet ferromagnetisch unterhalb von etwa 293 K. Für dünne Gd-Filme auf W(110) wurde eine Abnahme von $T_C=292,5$ K für einen 100 ML dicken Film auf $T_C=120$ K für einen 5 ML-Film gefunden, die sich mit einem *finite-size*-Ansatz gut erklären lässt [Far 93]. Die magnetischen Eigenschaften von Volumen und Oberfläche scheinen sich zu unterscheiden. So wurde für die Gd-Oberfläche ein um 58 K gegenüber dem Volumenwert erhöhtes T_C beobachtet [Wel 85]. Dieses experimentelle Ergebnis, welches nicht durch alle Messmethoden reproduziert wird, wird nach wie vor kontrovers diskutiert.

Ho besitzt im Gegensatz zu Gd eine helikale antiferromagnetische Phase mit einer Néel-Temperatur von 132 K. Unterhalb von 20 K bildet sich eine ferrimagnetische Phase mit einer Nettomagnetisierung entlang der c -Achse aus [Jen 91]. Die Abhängigkeit der kritischen Temperatur von der Schichtdicke wurde an Ho-Filmen bisher noch nicht untersucht. Ebenso wenig ist bekannt, ob die Oberfläche eine erhöhte Übergangstemperatur besitzt oder nicht.

Die Kopplung zwischen den Leitungselektronen und den $4f$ -Elektronen und die Aus-

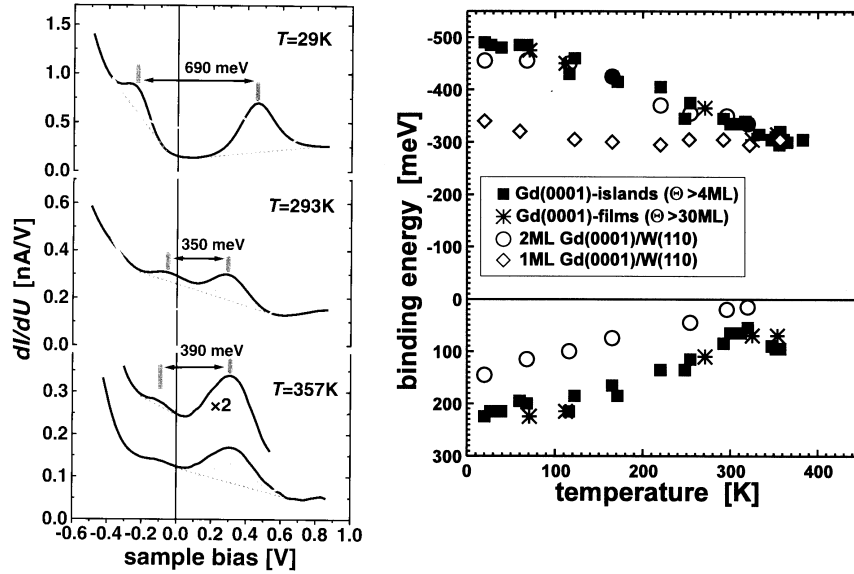


Abbildung 5.2: rechts: Tunnelspektren von Gd/W(110) bei verschiedenen Temperaturen. links: Auftragung der Bindungsenergie des Oberflächenzustands von Gd(0001) oberhalb und unterhalb der Fermikante gegenüber der Proben­temperatur für verschiedene Schichtdicken. Die Figuren sind aus [Bod 98] entnommen.

wirkung der magnetischen Ordnung auf die Bandstruktur sind derzeit aktuelle Fragestellungen in Theorie und Experiment [Kim 92, Nol 93, Wes 98]. Im Rahmen dieser Arbeit wurde explizit die $4f$ - $5d$ -Kopplung studiert, was im folgenden Abschnitt beschrieben ist. Bandstrukturrechnungen ergeben für Gd und Ho sehr ähnliche Resultate [Dim 64, Bly 91]. Die (0001)-Oberfläche zeichnet sich durch die Existenz eines Tammartigen Oberflächenzustands mit d_{z^2} Symmetrie aus, der theoretisch für Gd(0001) in der Bandlücke von sp - und d -artigen Zuständen um $\bar{\Gamma}$ in der projizierten Bandstruktur von Wu et al. vorhergesagt und von Li et al. mit winkelaufgelöster PE erstmals experimentell beobachtet wurde [Wu 91, Li 91]. In der Folge wurde an allen weiteren dreiwertigen Lanthaniden ein solcher Oberflächenzustand gefunden [Kai 95]. Der Zustand besitzt eine schwache Dispersion in der Ebene und eine verschwindende Dispersion senkrecht zur Oberfläche, was auf eine starke Lokalisation des Zustands hindeutet.

Theoretisch wurde für die flachen lokalisierten d -artigen Bänder an der Fermikante der Gd-Bandstruktur eine temperaturunabhängige magnetische Aufspaltung vorhergesagt [Nol 93]. Die temperaturunabhängige Aufspaltung wird durch eine lokale Wechselwirkung zwischen den f - und d -Elektronen hervorgerufen, wobei die $4f$ -Momente eine Quantisierungsachse für die am selben Atom lokalisierten d -Elektronen vorgeben. Ein solches Verhalten bezeichnet man als *spin-mixing*-Verhalten (vergl. Abb.5.1). Ein experimentell gut zugänglicher Zustand, der dieses temperaturunabhängige Verhalten auch zeigen sollte, ist der stark lokalisierte Oberflächenzustand von Gd(0001), der eine Majoritätskomponente unterhalb und eine Minoritätskomponente oberhalb der Fermienergie besitzt [Li 95, Don 98]. Im Rahmen einer kombinierten PE- und IPE-Messung konnte eine

temperaturunabhängige Aufspaltung des Oberflächenzustands nicht nachgewiesen werden. Vielmehr zeigt der Zustand ein Stoner-artiges Verhalten mit einer abnehmenden Aufspaltung bei zunehmender Temperatur [Wes 96]. Knapp oberhalb von T_C bei 340 K ist die Aufspaltung kleiner als 100 meV und damit nicht mehr auflösbar. Von Bode et al. (vergl. Abb. 5.2) ist gezeigt worden, dass die Aufspaltung des Oberflächenzustands mit der RTS sehr erfolgreich untersucht werden kann, da dieser Zustand das Tunnelspektrum dominiert. Eine temperaturabhängige Messung der Austauschspaltung zeigt ein Stoner-artiges Verhalten unterhalb von T_C sowie im Gegensatz zur PE-IPE-Studie eine endliche Aufspaltung von etwa 300 meV oberhalb der Curietemperatur [Bod 98]. Eine ebenfalls nicht verschwindende Aufspaltung konnte für einen sauerstoff-induzierten Oberflächenzustand auf Gd [Sch 99b], der ebenfalls *d*-artigen Charakter besitzt, und am *d*-artigen Oberflächenzustand von Tb nachgewiesen werden [Bod 99]. Im Gegensatz dazu existiert für das delokalisierte Valenzband eine temperaturabhängige Austauschspaltung, die oberhalb von T_C verschwindet (Stoner-artig), und im Fall von Gd, Tb, Dy und Ho für das Δ_2 -Band experimentell beobachtet wurde [Sch 99a]. Dieses Verhalten ist von Nolting et al. theoretisch für eher delokalisierte Zustände vorhergesagt worden.

Neben der Temperatur und dem Wellenvektor kann die Aufspaltung des Oberflächenzustands aufgrund des *finite-size*-Effekts auch von der Schichtdicke abhängig sein, wenn man annimmt, dass sich das System im Rahmen einer Molekularfeldtheorie beschreiben lässt [Kit 93]. Mit Hilfe einer solchen Näherung lässt sich das Temperaturverhalten der Austauschspaltung der oben beschriebenen lokalisierten Bänder gut beschreiben [Sch 99a]. In einem RTS-Experiment konnten allerdings keine Unterschiede in der Aufspaltung bis hinunter zu einer Schichtdicke von 4 ML beobachtet werden. Eine temperaturabhängige Austauschspaltung des Zustands verschwindet erst bei 2 ML dicken Inseln, deren Ausdehnung kleiner als 250 nm^2 ist [Bod 98]. Allerdings zeigen die dazugehörigen Daten eine deutliche Abnahme der Signalintensität, was die Interpretation der Daten erschwert. Ein Ziel der vorliegenden Arbeit war es daher, mit besserer Auflösung und bei verschiedenen Elementen die Austauschspaltung des Oberflächenzustands in Abhängigkeit von der Schichtdicke erneut zu untersuchen.

5.2 Austauschspaltung des lokalisierten Oberflächenzustands

Neben der temperaturabhängigen Untersuchung der Austauschspaltung, ist es interessant, die Kopplung zwischen Valenzelektronen und den lokalen *4f*-Elektronen in Abhängigkeit vom *4f*-Moment zu studieren. Hierzu wurde im Rahmen dieser Arbeit die Austauschspaltung des *d*-artigen Oberflächenzustands von Gd, Ho und Lu untersucht. Für Lu erwartet man aufgrund der abgeschlossenen *4f*-Schale keine Austauschspaltung des Oberflächenzustands, weshalb Lu als nicht-magnetische Referenz dient. Ein Vergleich der Austauschspaltung der verschiedenen Elemente ist aufgrund ihrer ähnlichen Bandstruktur in der paramagnetischen Phase möglich [Ahu 94]. Da wie in

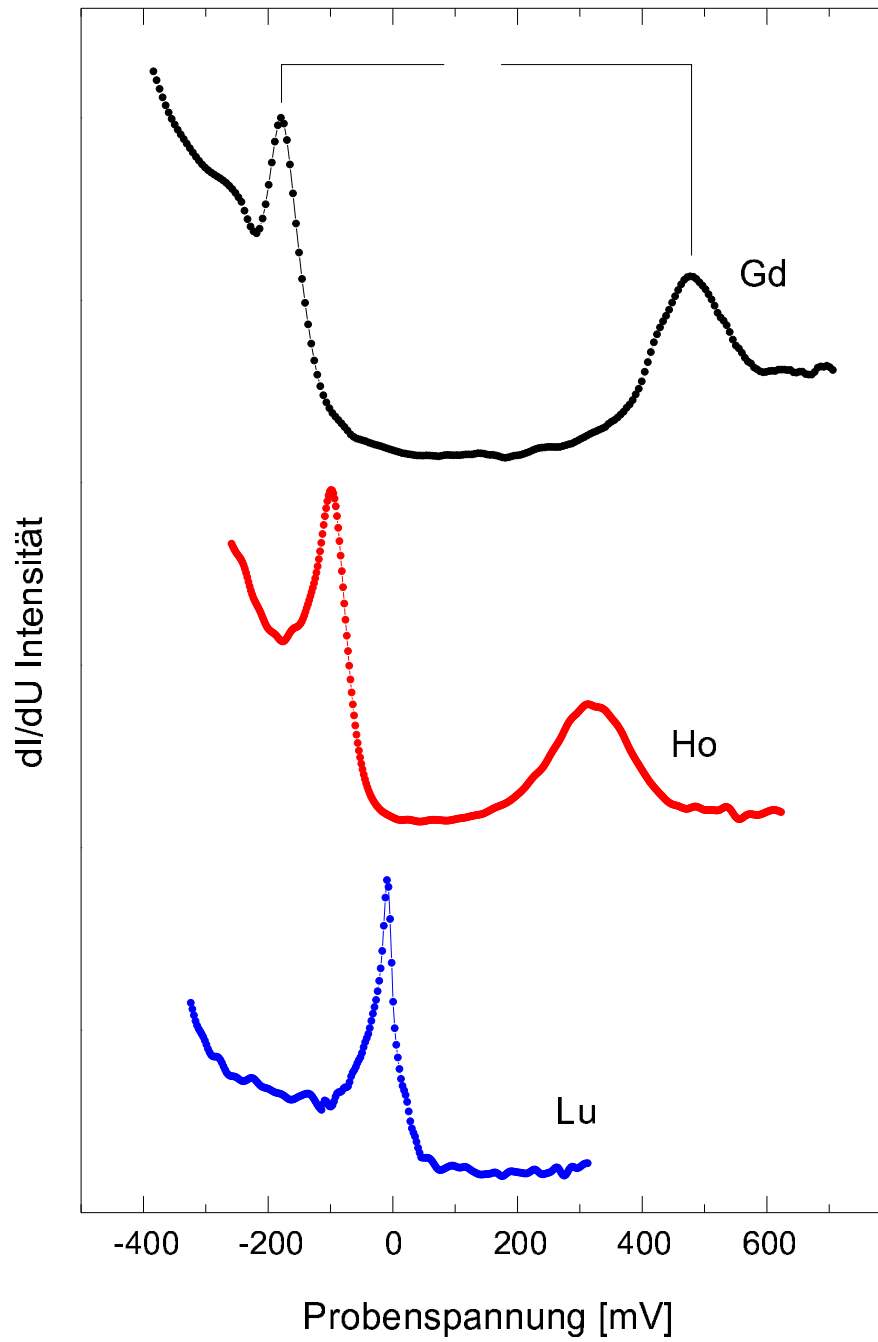


Abbildung 5.3: Repräsentative Tunnelspektren von Gd, Ho und Lu/W(110) bei 10 K.

Abschnitt 5.3 näher erläutert wird, Zustände am Γ -Punkt die Maxima im Tunnelspektrum bestimmen, spielt eine eventuelle Abhängigkeit der Aufspaltung vom Wellenvektor für den Vergleich keine Rolle.

Abb. 5.3 zeigt repräsentative Tunnelspektren von Gd, Ho und Lu bei einer Proben temperatur von 10 K. Im Fall von Gd und Ho erkennt man als herausragende Maxima die austausch aufgespaltenen Komponenten des Oberflächenzustands. Die beiden Zustände liegen in einer Bandlücke der projizierten Bandstruktur, die in den Spektren als strukturloser Bereich zwischen den Peaks zu identifizieren ist. Das Spektrum von Lu hingegen besitzt erwartungsgemäß nur ein ausgeprägtes Maximum, welches dem nicht aufgespaltenen Oberflächenzustand zugeordnet werden kann. Während die gezeigten Spektren von Gd und Lu auf 8-10 ML hohen Inseln gewonnen wurden, ist das Ho Spektrum auf einem 14 ML hohen geschlossenen Film aufgenommen worden. Insgesamt wurden mehrere Tausend Spektren auf Proben im Schichtdickenbereich zwischen 1 ML und 14 ML aufgenommen. Für Gd wurde im Rahmen des Fehlers keine Variation von Bindungsenergie und Aufspaltung in Abhängigkeit von der Schichtdicke $d \geq 3$ ML und der Morphologie (Insel bzw. geschlossener Film) festgestellt¹. Die Form und die Intensität der Peaks ändert sich im untersuchten Schichtdickenbereich nicht. Für Ho konnte ebenfalls keine Veränderung der Spektren für Bedeckungen von $d \geq 2$ ML gefunden werden. Dies gilt ebenso für Lu-Inseln mit $d \geq 2$ ML.

Die Spannungen der Peaks im Gd-Spektrum von (-195 ± 20) mV für den besetzten bzw. (480 ± 40) mV für den unbesetzten Teil des Zustands stimmen gut mit winkelaufgelösten PE- und IPE- bzw. den oben zitierten RTS-Daten überein [Wes 96, Bod 98]. Die Peakpositionen von Ho (-96 ± 16) mV bzw. (330 ± 40) mV und Lu (-1 ± 4) mV lassen sich im Gegensatz zu denen von Gd nicht mit PE-Messungen vergleichen, da diese Zustände in den PE-Spektren von der Fermikante abgeschnitten werden. IPE-Daten zu beiden Elementen liegen nicht vor. Die Form der Spektren ist identisch mit denen von gut aufgelösten Tb-Spektren bei 16 K [Bod 99]. Die Anwesenheit einer Sauerstoff-Kontamination auf der Oberfläche -im RTM-Bild deutlich durch Löcher in der Oberfläche bei negativen Proben spannungen erkennbar- unterdrückt den Oberflächenzustand vollständig, was konsistent mit PE und RTS-Daten ist [Mei 98, Get 99].

Die Aufspaltung des Oberflächenzustands von Ho ändert sich mit der Temperatur. Abb.5.4 zeigt repräsentative Ho-Spektren bei zwei unterschiedlichen Temperaturen. Zwischen 10 K und 70 K nimmt die Aufspaltung um etwa 45 meV ab, wobei sich der besetzte Anteil um 40 meV zu höheren Bindungsenergien hin verschiebt. Der Unterschied in den Peakpositionen ist vermutlich ein reiner Temperatureffekt und wird nicht durch die unterschiedlichen magnetischen Phasen induziert. Bei 70 K befindet sich Ho noch in seiner antiferromagnetischen Phase, die bis zu einer Schichtdicke von 14 ML nachgewiesen wurde [Sch 00]. Die einzelnen Lagen ordnen jedoch ferromagnetisch, so dass die antiferromagnetische Ordnung den Oberflächenzustand nicht beeinflusst. Auch für diese Messung dient Lu als nicht-magnetische Referenz.

¹2 ML Gd/W(110) wurden im Rahmen dieser Arbeit nicht untersucht.

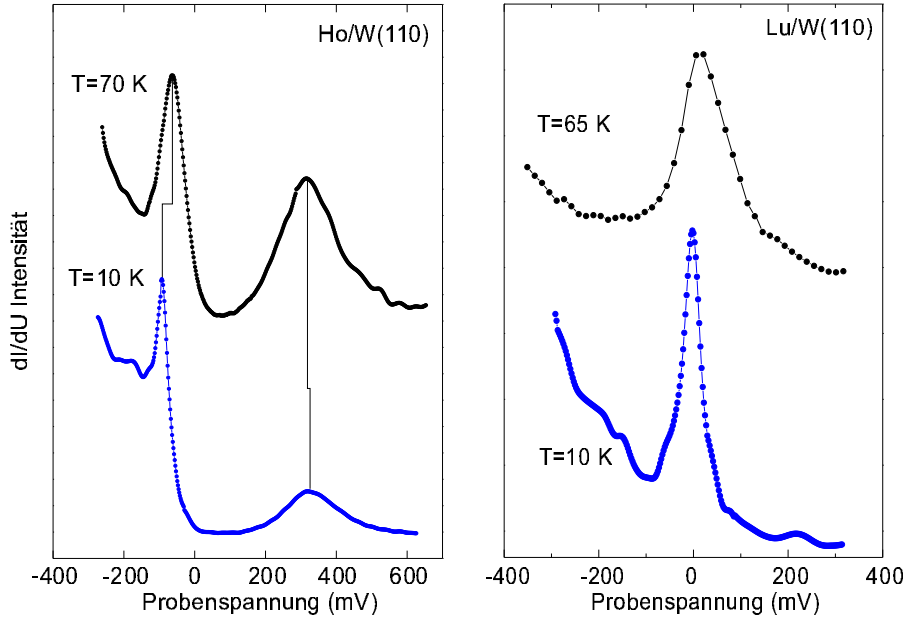


Abbildung 5.4: Repräsentative Tunnelspektren von 14 ML Ho/W(110) und 5 ML Lu/W(110) bei zwei verschiedenen Temperaturen ($I=1$ nA, $U=1$ V). Die Spektren bei hohen Temperaturen wurden während des Abkühlprozesses aufgenommen.

Diskussion

Die Daten werden im Folgenden unter zwei Gesichtspunkten diskutiert:

1. Die lineare Abhängigkeit der Austauschaufspaltung vom $4f$ -Spin.
2. Die Unabhängigkeit der Austauschaufspaltung von der Schichtdicke.

In Abb. 5.5 ist die Aufspaltung des Oberflächenzustands als Funktion des $4f$ -Spins aufgetragen. Obwohl die Tunnelspektren bei 10 K aufgenommen wurden und die Elemente unterschiedliche Curietemperaturen besitzen, kann man davon ausgehen, dass sich die Aufspaltung bei weiterer Reduzierung der Temperatur im Rahmen des Fehlers nicht mehr ändert. Zusätzlich ist die Nullpunkt-Aufspaltung eines eher delokalisierten Bandes, des am Γ -Punkt gemessenen Δ_2 -Bandes, aufgetragen [Sch 99a].

Die Aufspaltung der Bänder skaliert linear mit dem $4f$ -Spin. Im Heisenbergmodell lässt sich dies als Folge eines konstanten effektiven Austauschintegrals interpretieren. Dies ist erstaunlich, da sich aufgrund der bekannten Lanthanidenkontraktion der $5d$ - $4f$ -Überlapp ändert. Trotzdem ist die Kopplung unabhängig vom $4f$ -Spin, was den lokalen Charakter der Wechselwirkung betont. Die Stärke der Kopplung ist nur vom Bandcharakter abhängig. Das delokalisierte Δ_2 -Band mit einem eher s -artigen Charakter besitzt ein effektives Austauschintegral von $J^{\text{eff}}=(270\pm 6)$ mV, während für den stark lokalisierten Oberflächenzustand $J^{\text{eff}}=(193\pm 4)$ mV ermittelt wurde. Den Unterschied in der Austauschkopplung kann man durch den unterschiedlichen Überlapp der Wellenfunktionen mit den $4f$ -Wellenfunktionen erklären.

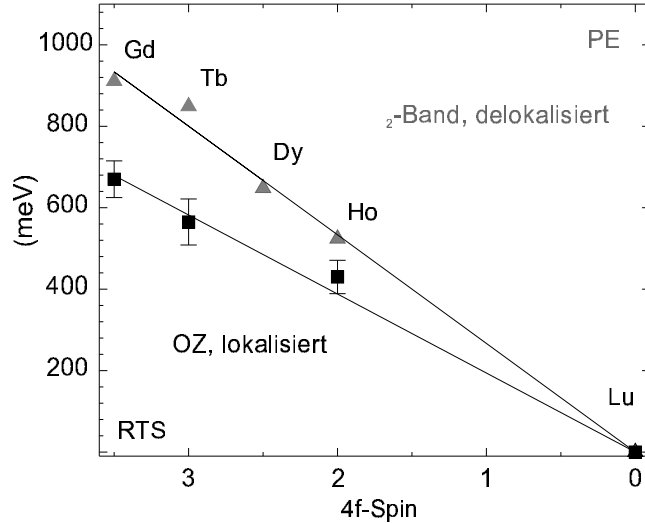


Abbildung 5.5: Aufspaltung des lokalisierten Oberflächenzustands (Quadrate) bei 10 K und Nullpunkt-Aufspaltung des delokalisierten Δ_2 -Bandes (Dreiecke) am Γ -Punkt in Abhängigkeit von dem $4f$ -Spin. Die RTS-Daten werden ergänzt durch die Ergebnisse für die Austauschaufspaltung von Tb aus [Bod 99], während die PE-Ergebnisse [Sch 99a] entnommen wurden. In beiden Fällen nimmt die Aufspaltung linear mit dem $4f$ -Spin ab. Aus der Auftragung ergibt sich für den Oberflächenzustand eine Steigung von $J^{\text{eff}}=(193\pm 4)$ mV und für das Δ_2 -Band ist $J^{\text{eff}}=(270\pm 6)$ mV

Obwohl der Oberflächenzustand vor der Oberfläche lokalisiert ist und die Oberfläche eine geringere Koordinationszahl aufweist, ist der Unterschied in den gemessenen Steigungen nicht sehr groß. Entscheidend für das magnetische Verhalten ist die “effektive” Austauschkopplung J/W , wobei W die Bandbreite bezeichnet [Nol 93]. Die Bandbreite W ist mit der RTS schwierig zu bestimmen. Eine Abschätzung aus der Bandstrukturrechnung ergibt, dass der Oberflächenzustand eine etwa 10-fach höhere effektive Masse als das Δ_2 -Band besitzt. Dies macht deutlich, dass die effektive Kopplung zwischen den lokalen $4f$ -Momenten und dem lokalisierten Oberflächenzustand ausreichend stark ist, um das theoretisch vorhergesagte *spin-mixing*-Verhalten zu zeigen.

Im Folgenden wird die Unabhängigkeit der Austauschaufspaltung von der Schichtdicke diskutiert. Zuerst ist bemerkenswert, dass sich der Oberflächenzustand bei allen untersuchten Elementen bereits ab einer Schichtdicke von zwei Lagen ausbildet. Schließlich ist für die Ausbildung des Zustands eine für die Elemente charakteristische Bandstruktur mit einer Bandlücke um $\bar{\Gamma}$ in der projizierten Bandstruktur notwendig. In der PE sieht man Hinweise darauf, dass sich die Volumen-Bandstruktur bei Ho/W(110) zwischen der 4. und der 10. ML ausbildet [Sch 00]. Im Gegensatz dazu ist der Oberflächenzustand von Ho bereits bei 2 ML hohen Inseln vollständig ausgebildet. Die Bindungsenergien verändern sich nicht mit der Schichtdicke. Da die dünnen Filme nicht vollständig relaxiert aufwachsen, bedeutet dies zudem, dass für die Ausbildung des Oberflächenzustands nicht die exakten atomaren Abstände des Volumens notwendig sind.

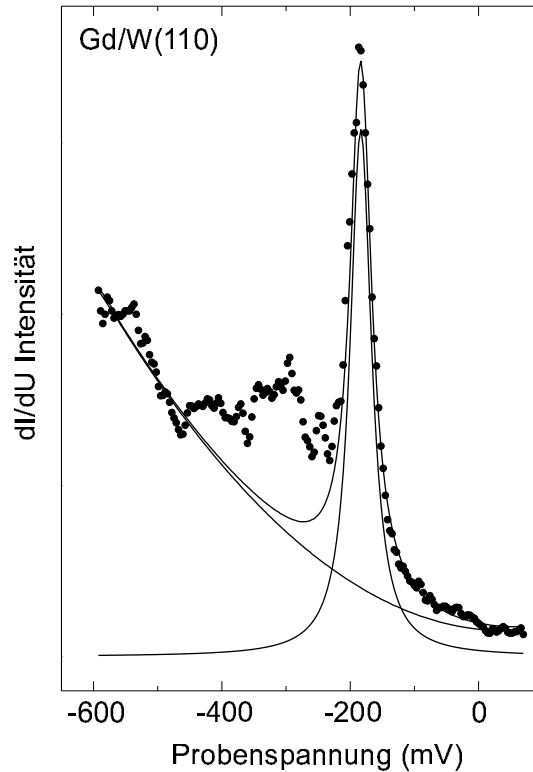


Abbildung 5.6: Repräsentatives Tunnelspektrum des besetzten Teils des Gd(0001)-Oberflächenzustands, aufgenommen bei 10 K. Der Fit ist im Text diskutiert.

Eine von der Schichtdicke unabhängige Austauschaufspaltung bedeutet zusätzlich, dass die Austauschaufspaltung des Oberflächenzustands bei einer bestimmten Temperatur unabhängig vom T_C der Filme sein muss. Wie oben beschrieben, nimmt das T_C der Filme mit reduzierter Schichtdicke stark ab [Far 93]. In diesem Zusammenhang stellt sich die Frage, in welcher Form die Austauschaufspaltung mit der Curietemperatur verbunden ist: Im extremen Fall von reinem *spin-mixing*-Verhalten würde man keine Abhängigkeit erwarten. Auf ein solches Verhalten deuten spinaufgelöste IPE-Messungen, die keine Spinpolarisation für die unbesetzte Komponente des Oberflächenzustands bei Schichtdicken unterhalb von 8 ML nachweisen konnten [Don 98]. Die temperaturabhängigen Messungen zeigen jedoch, dass die Aufspaltung des Oberflächenzustands keinem reinen *spin-mixing*-Verhalten gehorcht, sondern dass die Aufspaltung einen deutlichen Stoner-artigen Anteil besitzt. Erst knapp oberhalb der Curietemperatur, d.h. bei verschwindender Magnetisierung, bleibt eine konstante Nettoaufspaltung übrig. Offensichtlich beeinflusst die Temperatur die Austauschkopplung zwischen den $4f$ -Momenten und dem lokalisierten Zustand in einer anderen Weise als eine reduzierte Schichtdicke, wobei beide Einflüsse die langreichweitige Ordnung im System unterdrücken. Vorstellbar ist, dass sich durch den Temperaturanstieg eine möglicherweise vorhandene Nahordnung ändert, welche für Gd oberhalb von T_C an dicken Filmen nachgewiesen wurde [Tob 98]. Die Austauschaufspaltung des lokalisierten Zustands würde in diesem Fall mit der “Stär-

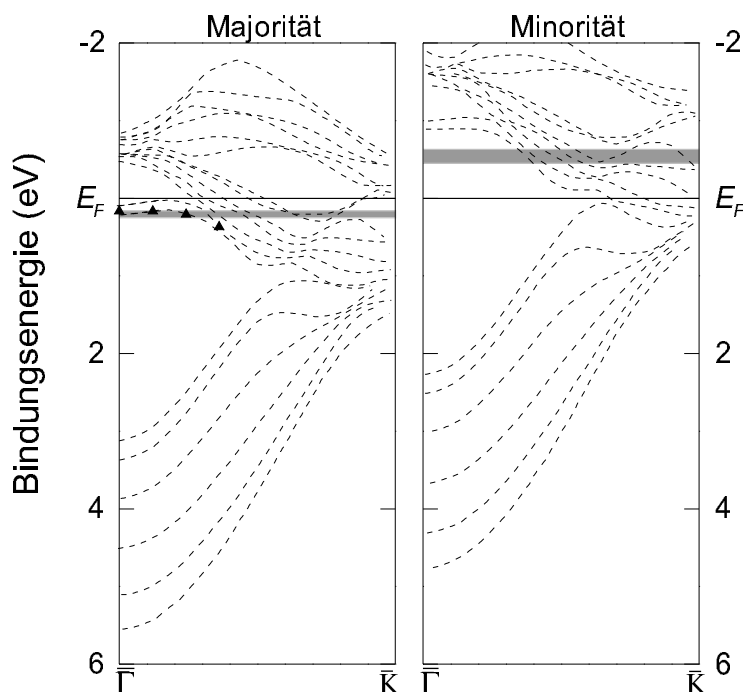


Abbildung 5.7: Ausschnitt aus der projizierten Bandstruktur der Gd(0001)-Oberfläche aus [Wu 91]. Die schwarzen Dreiecke zeigen die experimentell mit winkelaufgelöster PE ermittelte Dispersion des Oberflächenzustands von einer sauberen Gd(0001)-Oberfläche [Sch 99a]. Die grauen Balken in der Majoritäts- und Minoritäts-Bandstruktur markieren die Lage und die Breite der Peaks der besetzten und unbesetzten Komponente des Oberflächenzustands im Tunnelspektrum

ke" dieser Nahordnung skalieren. Unbekannt ist allerdings, über welchen Bereich sich diese Nahordnung erstreckt und über welchen Bereich die Austauschspaltung sensitiv ist. In diesem Zusammenhang ist es interessant, die Aufspaltung eines delokalisierten Bandes bei geringen Schichtdicken zu untersuchen. Da der delokalisierte Zustand über einen größeren Volumenbereich mittelt, sollte seine Aufspaltung ein anderes Temperaturverhalten zeigen als die des Oberflächenzustands.

Zum jetzigen Zeitpunkt muß jedoch festgestellt werden, dass sich aus der Austauschspaltung des Zustands keine seriösen Aussagen zur magnetischen Ordnung der Probe, sei es eine Nah- oder Fernordnung, ableiten lassen.

5.3 Analyse der Linienform

Im vorherigen Abschnitt wurde davon ausgegangen, dass die Peakpositionen den jeweiligen Bindungsenergien am Γ -Punkt entsprechen. Dies ist nicht selbstverständlich, da RTS nicht einzelne Zustände untersucht, sondern die lokale Zustandsdichte abbildet. An der Fermikante zeichnet sich die Bandstruktur von Lanthanidmetallen durch eine

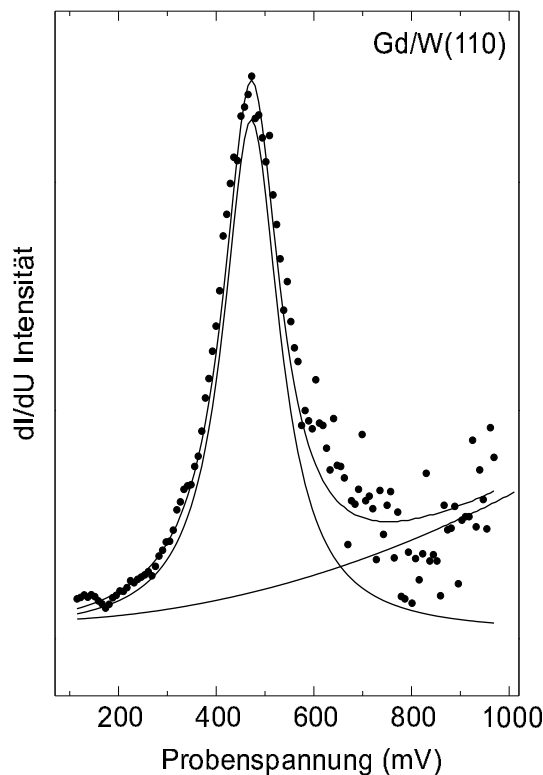


Abbildung 5.8: Repräsentatives Tunnelspektrum des unbesetzten Teils des Gd(0001)-Oberflächenzustands, aufgenommen bei 10 K.

hohe Zustandsdichte aufgrund von flachen d -Bändern aus, die sich am Zonenrand bei vergleichbaren Energien befinden und deshalb ebenfalls zum Signal beitragen können. Aufgrund der mangelnden Winkelauflösung in den Spektren ist es deshalb notwendig, das Signal genauer zu analysieren. Hierbei hilft der Vergleich mit Ergebnissen winkelaufgelöster PE und IPE, sowie von Bandstrukturrechnungen. Das in dieser Hinsicht am besten untersuchte System ist Gd/W(110), weshalb im Folgenden die Tunneldaten mit diesen Ergebnissen verglichen werden. Die Linienform im Spektrum unterscheidet sich nur wenig von der besetzten Komponente von Ho und nur geringfügig für Lu, was weiter unten diskutiert wird. Ebenso gleichen sich die Linienformen der unbesetzten Komponenten von Gd und Ho.

Abb. 5.7 zeigt eine Bandstrukturrechnung der Gd(0001)-Oberfläche. Bei den Majoritätszuständen erkennt man um den $\bar{\Gamma}$ -Punkt den Oberflächenzustand, der sich von einem d -artigen Volumenband abspaltet, welches die obere Begrenzung der Bandlücke formt. Zusätzlich eingezeichnet sind winkelaufgelöste PE-Daten, die die Dispersion des Zustands gut wiedergeben. Die Bindungsenergie des Zustands bei $T=0$ K wurde mit 180 meV angegeben [Wes 96]. Der Zustand dispergiert schwach von der Fermikante weg, was auf eine hohe effektive Masse oder, in einem anderen Bild, auf eine starke Lokalisierung hindeutet. In der Bandstruktur der Minoritätszustände liegt der Oberflächenzustand oberhalb der Fermienergie bei etwa 0,9 eV. Der Zustand dispergiert mit der selben

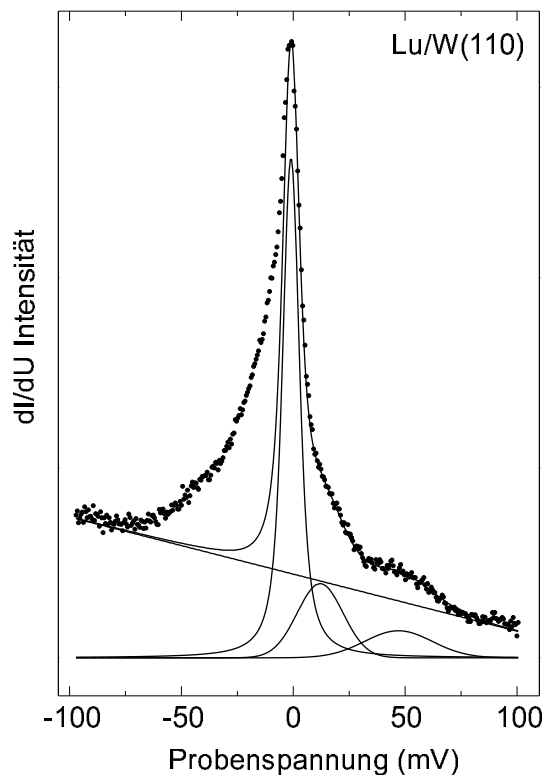


Abbildung 5.9: Repräsentatives Tunnelspektrum des Lu(0001)-Oberflächenzustands, aufgenommen bei 10 K. Neben dem Hauptpeak erkennt man auf der rechten Seite zwei zusätzliche Strukturen, deren Herkunft sich nicht eindeutig identifizieren lässt, die sich aber jeweils gut mit einer Gaußkurve beschreiben lassen.

Stärke in die gleiche Richtung wie die besetzte Komponente.

Mit RTS wurden *d*-artige Oberflächenzustände erstmals auf Fe(001) und Cr(001) untersucht [Str 95]. Im Spektrum zeigen diese aufgrund der schwachen Dispersion scharfe Linien, da, wie die Autoren erläutern, nur Beiträge vom Zonenzentrum zum Signal beitragen. Tunnelspektren auf Edelmetallen hingegen, die sich durch einen *s-p*-artigen Oberflächenzustand auf den (111)-Oberflächen auszeichnen, besitzen dagegen eher eine Stufenform, die der 2D-Zustandsdichte eines freien Elektronengases entspricht [Cro 93].

Das Tunnelspektrum von Gd/W(110) in Abb. 5.6 zeigt den besetzten Teil des Oberflächenzustands in der Form eines scharfen Peaks bei einer Probenspannung von -195 mV. Die Struktur ist typisch für zahlreiche Spektren, die an verschiedenen Proben mit unterschiedlichen Spitzen aufgenommen wurden. Dass der Peak nicht durch die Zustandsdichte der Spitze hervorgerufen wird, wurde während der Messung durch Spektroskopie auf der ersten Lage Gd/W(110) überprüft, die diese scharfe Struktur nicht besitzt. Zu positiven Probenspannungen hin zeichnet sich die Linie durch einen sehr steilen Abfall aus, wobei das Signal nahezu auf Null abfällt. Zu negativen Probenspannungen hin ist der Abfall schwächer und mündet dann in Abhängigkeit von den Tunnelbedingungen in einen erneuten Anstieg des Signals, der allerdings zwischen den einzelnen Spektren un-

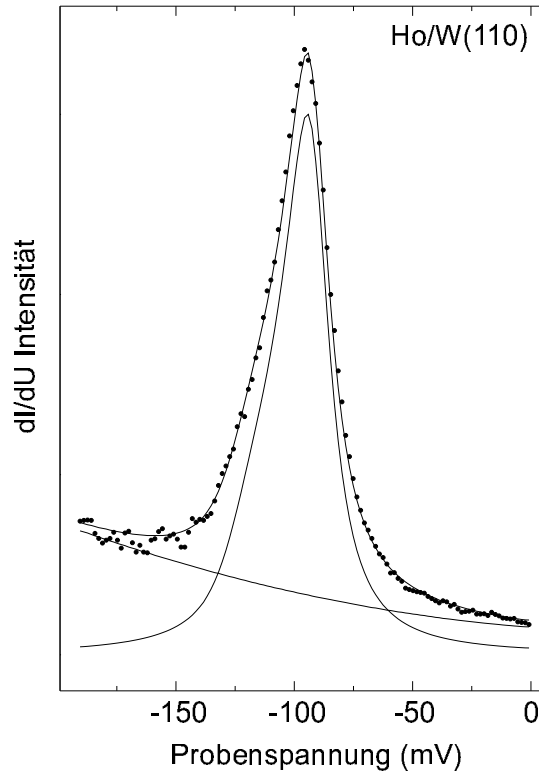


Abbildung 5.10: Tunnelspektrum der Majoritätskomponente des Oberflächenzustands von Ho(0001)/W(110), aufgenommen bei 10 K. Zusätzlich zur rechten Flanke wird mit dem Fit die linke Flanke mit einer Schar von Lorentzlinien mit äquidistanten Abständen beschrieben.

terschiedlich strukturiert ist. Die Energielage wurde durch das Fitten einer Lorentzlinie in die rechte Flanke des Peaks bestimmt. Zusätzlich wurde ein parabolischer Untergrund angenommen. Die Breite der Linie ist etwa 40 meV (FWHM). Während die rechte Flanke sich gut durch eine Lorentzlinie beschreiben lässt, weicht der Fit auf der linken Flanke im unteren Bereich minimal ab, bevor das Signal wieder ansteigt.

Der Vergleich des Spektrums bei negativen Spannungen mit Bandstrukturechnungen und PE-Daten ergibt eine gute Übereinstimmung in der Energieposition für die Majoritätskomponente des Oberflächenzustands. Der rechten Flanke schließt sich die in Abb. 5.7 gut zu erkennende Bandlücke an. In der Abbildung markiert ein Balken von $\bar{\Gamma}$ zu \bar{K} die Peaklagen und Peakbreiten der im Tunnelspektrum beobachteten Strukturen. Der Vergleich mit der durch PE bestimmten Dispersion des Zustands ergibt, dass Zustände aus etwa einem Viertel der Brillouinzone rund um $\bar{\Gamma}$ zum Peak beitragen können. In diesem Bereich dispergiert der Zustand fast gar nicht, so dass die ermittelte Peakposition gut mit den winkelaufgelösten PE-Daten übereinstimmt. Dieses Ergebnis ist nicht erstaunlich, da, wie in Kap. 2 erläutert, Wellenfunktionen an der Oberfläche exponentiell mit $\sqrt{\kappa^2 + k_{\parallel}^2} z$ abfallen, wobei z den Abstand von der Oberfläche, κ eine Konstante und k_{\parallel} den Wellenvektor parallel zur Oberfläche bezeichnen. Damit dominieren Zustände am

Γ -Punkt das Signal und nur für den Fall, dass sich am Γ -Punkt keine Zustände befinden, können Zustände vom Zonenrand merklich zum Signal beitragen. Die Abweichungen des Lorentzfits auf der linken Flanke lassen sich auf die schwache Dispersion des Zustands zurückführen. Zusätzliche Abweichungen von der reinen Lorentzform können auf dieser Seite auch durch Beiträge von Volumenbändern und Oberflächenresonanzen kommen, die in der berechneten Bandstruktur zu erkennen sind.

Abb. 5.8 zeigt die unbesetzte Komponente des Oberflächenzustands von Gd als einen weiteren scharfen Peak im Tunnelspektrum bei einer Probenspannung von 480 mV. In diesem Fall zeigt die Struktur zu höheren Spannungen einen scharfen Anstieg, während sich dem Abfall auf der rechten Seite ein weiterer unstrukturiertes Anstieg anschließt. Der quadratische Untergrund mündet bei höheren Spannungen in ein stark verrauschtes Signal. Die Breite der Linie ist 126 mV (FWHM). Der unbesetzten Zustand wurde mit einer Lorentzlinie und einem quadratischen Untergrund angepasst. Trotz der dispergierenden Flanke paßt der Fit gut in die Datenpunkte. Ein Grund hierfür ist, dass die Breite des Peaks hauptsächlich durch die Lebensdauer bestimmt wird und weniger stark durch die Dispersion. Die Peakposition stimmt mit IPE-Daten gut überein [Wes 96], allerdings ergibt sich eine Abweichung zur berechneten Bandstruktur von etwa 0.4 eV.

Wie in Abb. 5.3 zu erkennen ist, werden die Linien mit kleiner werdender Bindungsenergie schmaler, was als Zunahme der Lebensdauer interpretiert werden kann. Bei der schmalsten Struktur, dem Spektrum von Lu, welches in Abb. 5.9 gezeigt ist, erkennt man zusätzlich zwei weitere Strukturen, die im folgenden Absatz diskutiert werden. Wiederum ist die rechte Flanke mit einer Lorentzlinie mit einer Breite von etwa 9 mV (FWHM) angepasst. Gleichzeitig wird ein linearer Untergrund angenommen. Die linke Flanke des Peaks wird bei diesem Vorgehen nur im oberen Teil der Spitze beschrieben. Beim Lu-Spektrum scheint die Dispersion offenbar einen größeren Anteil am Spektrum zu haben als bei Gd. Dies ist ebenfalls beim Spektrum vom besetzten Teil des Oberflächenzustands von Ho/W(110) zu erkennen (vergl. Abb. 5.10). Die Struktur der rechten Flanke läßt sich analytisch nicht eindeutig beschreiben und wird zusätzlich stark vom Tunnelkontakt beeinflusst, so dass hier eine weitergehende Diskussion der Linienform schwierig ist.

Die zwei Schultern auf der rechten Seite werden jeweils mit einer Gaußkurve beschrieben. Die Herkunft dieser Peaks ist nicht eindeutig geklärt. Sie sind reproduzierbar und haben ihre Maxima bei etwa 10 mV bzw. 47 mV Probenspannung. In den Spektren von Gd und Ho gibt es allerdings keine vergleichbaren Strukturen. Es gibt verschiedene Möglichkeiten für die Ursache dieser Strukturen. Da mit RTS die Zustandsdichte gemessen wird, können die Strukturen von Beiträgen aus anderen Bereichen der Brillouinzone stammen. Diese sind in den Spektren von Gd und Ho nicht zu sehen, da diese Peaks aufgrund der kürzeren Lebensdauer viel breiter sind. Für die Struktur bei 10 mV ist aber auch die Anregung eines Phonons denkbar, welches durch ein tunnelndes Elektron erzeugt wird. Schließlich kann nicht ausgeschlossen werden, dass die Strukturen von Kontaminationen auf der Oberfläche stammen.

5.4 Bestimmung der Lebensdauer

Die Breite der Spektrallinie (2Γ , FWHM) eines Zustands ist über

$$\tau = \frac{\hbar}{2\Gamma}$$

mit der Lebensdauer τ des Zustands verknüpft. Allerdings kann sich die gemessene Linienbreite durch zahlreiche Effekte vergrößern, die unabhängig von der Lebensdauer des Zustands sind. Hier ist in erster Linie die experimentelle Auflösung zu nennen. Deshalb sind die Lebensdauern, die aus den Linienbreiten bestimmt werden, als eine untere Grenze für die Lebensdauer zu betrachten. Die Auflösung wiederum lässt sich an scharfen Linien, deren Breite bekannt ist, sehr gut bestimmen und verbessern. Im Folgenden wird die Lebensdauer der untersuchten Oberflächenzustände aus den Spektren ermittelt und anschliessend im Rahmen einer einfachen Theorie, der Fermi-Liquid-Theorie, diskutiert [Lan 80, Kit 93]. Mit Hilfe dieser Theorie lassen sich die Wechselwirkungen der Leitungselektronen untereinander beschreiben. Für Zustände direkt an der Fermikante sagt die Theorie bei $T=0$ K eine unendliche Lebensdauer voraus, da sich mit der Nähe zur Fermikante der Phasenraum für einen Elektron-Elektron-Stoß stark reduziert. Der Oberflächenzustand von Lu liegt mit einer Bindungsenergie von 1 meV direkt unterhalb der Fermikante und er sollte nach der Fermi-Liquid-Theorie eine fast unendliche Lebensdauer bei tiefen Temperaturen besitzen. Die Linienbreite dieses Zustands sollte deshalb dazu geeignet sein, die Auflösung des neuen Tieftemperatur-RTM zu überprüfen.

Die Bestimmung der Lebensdauer von Oberflächenzuständen mit dem RTM wurde erstmals von Li et al. an Ag(111) durchgeführt [Li 98b, Ber 99]. In ihrer Arbeit analysieren die Autoren die Breite der Stufe in der differentiellen Leitfähigkeit bei etwa $E_0 = -70$ mV, die als Bandkante des 2D-Oberflächenzustands interpretiert wird. Aus der geometrisch definierten Breite Δ (vergl. Abb. 5.11) kann die Lebensdauer des Zustands über

$$\tau = \frac{\hbar \pi}{\Delta 2}$$

bestimmt werden. Die geometrisch definierte Breite Δ ist mit der Breite 2Γ der Lorentzlinie, die den Zustand an der Bandkante ($E=E_0$) beschreibt, über $\Delta = \frac{\pi}{2} 2\Gamma$ verknüpft. Der Faktor $\frac{\pi}{2}$, der im Folgenden diskutiert wird, berücksichtigt, dass aufgrund der endlichen Lebensdauer der Zustände auch energetisch höher liegende Zustände des 2D-Oberflächenzustands zur Flanke in der Zustandsdichte beitragen. Die Form der Flanke ergibt sich aus der Summe aller Lorentzlinien:

$$n(E') = \int_0^\infty \frac{\Gamma}{(E' - E_0 - E)^2 + \Gamma^2} dE = \frac{\pi}{2} - \arctan \frac{E_0 - E'}{\Gamma}.$$

Aufgrund der $k_{||}$ -Abhängigkeit des Tunnelstroms tragen jedoch die Zustände oberhalb des Bandminimums mit $k_{||} \neq 0$ schwächer zum Tunnelstrom bei. Für ein schwach dispergierendes Oberflächenzustandsband wird daher statt einer Stufenfunktion ein relativ

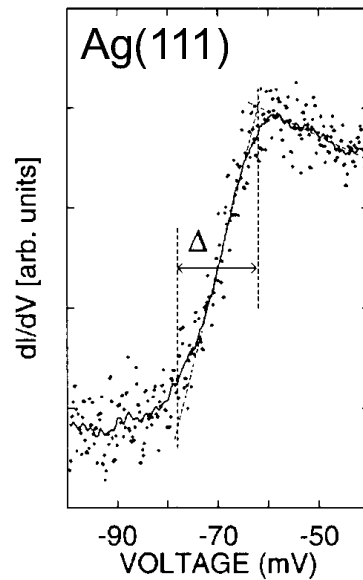


Abbildung 5.11: Bestimmung der Breite Δ der Stufe aus dem Tunnelspektrum von Ag(111) aus [Li 98b].

scharfer Peak beobachtet und der Korrekturfaktor zwischen Flankenbreite und Lorentzbreite, a , ist entsprechend reduziert ($1 \leq a \leq \frac{\pi}{2}$). Im Extremfall eines nicht dispergierenden flachen Bandes wird eine Lorentzlinie mit der Breite 2Γ beobachtet ($a=1$).

In ihrer Arbeit bestimmen Li et al. den Faktor a analytisch und für den Oberflächenzustand von Ag ist $a = 1,4$ [Li 98b]. Im Rahmen der folgenden Auswertung soll jedoch versucht werden, diesen Faktor mit Hilfe eines Fits zu bestimmen. Das Verfahren wird im Folgenden exemplarisch am Beispiel des Lu-Oberflächenzustands erklärt. Die Peaks der Majoritätskomponenten von Gd und Ho werden auf die gleiche Weise ausgewertet. Die linke Flanke des Peaks, die sich aus der Dispersion des Zustands ergibt, wird mit einer Schar von Lorentzlinien angepasst, die zueinander äquidistante Abstände und die selbe Breite besitzen. Der Abstand der Lorentzlinien ist gerade unterhalb der experimentellen Auflösung gewählt. Dieses Modell wird im Fitprogramm mit der experimentellen Auflösung gefaltet, so dass die Schar von Lorentzlinien durch eine Einhüllende beschrieben wird, die auf die Datenpunkte angepasst wird. Als Fitparameter gehen nur die Intensität der Einhüllenden, die Breite der Lorentzlinien und die Peakposition ein. Die Annahme, dass die Breite der Lorentzlinien unabhängig von der Bindungsenergie ist, ist notwendig, um die Anzahl der Fitparameter zu minimieren. Zusätzlich wird der Datensatz von Lu, wie oben beschrieben, mit zwei Gaußkurven und einem linearen Untergrund angepasst. Das Ergebnis dieser Prozedur ist für Ho in Abb. 5.10 und für Lu in Abb. 5.12 gezeigt.

Die experimentelle Auflösung wird, wie in Kap. 2 erläutert, durch die Modulationsspannung und die thermische Verbreiterung der Spitze festgelegt. Bei 10 K läßt sich die thermische Verbreiterung durch eine Faltung der Zustandsdichte mit Glg. 2.11 berücksichtigen. Die Verbreiterung durch die Modulationsspannung wird hier vernachlässigt,

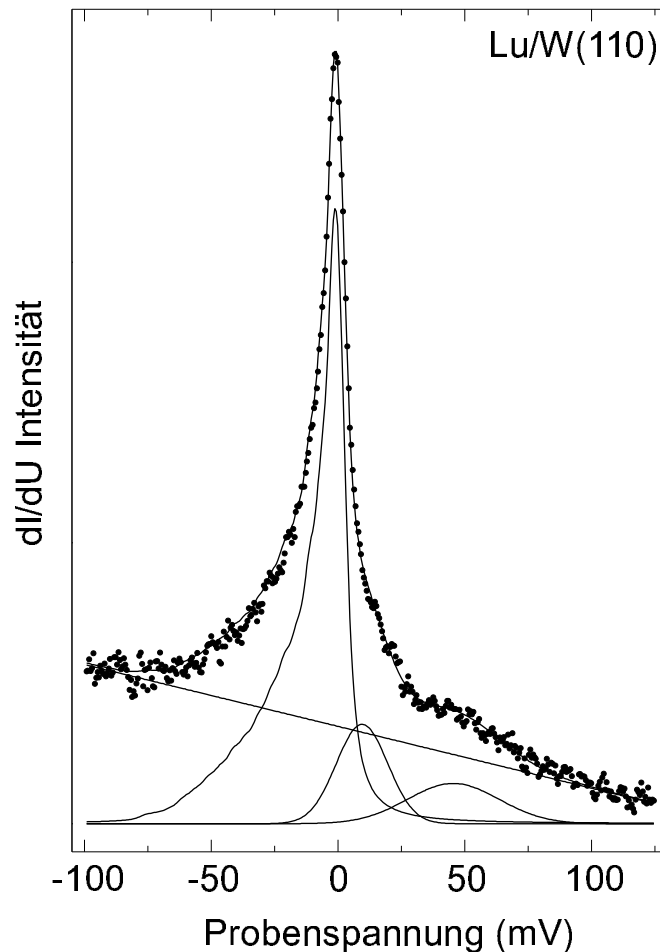


Abbildung 5.12: Tunnelspektrum von Lu/W(110) bei 10 K. Der Hauptpeak wird durch eine Schar von Lorentzlinien beschrieben. Die Fitprozedur wird im Text genauer beschrieben.

da ihr Einfluss klein gegenüber dem statistischen Fehler ist. Im Fall von Lu wurde eine Modulationsspannung von $U_{\text{mod}} = 0,7 \text{ mV}$ (rms) angelegt und bei Gd und Ho war $U_{\text{mod}} = 1,3 \text{ mV}$ (rms).

Von allen aufgenommenen Spektren werden nur die jeweils Besten diskutiert, denn die Breite der Spektren kann nach oben hin sehr stark variieren. Dies ist durch die hohe lokale Auflösung der Tunnelspektroskopie bedingt. Ein Defekt auf atomarer Skala kann das gesamte Spektrum beeinflussen. Ebenso ist die Qualität der Spektren von der Spitze abhängig. Die Spektren werden auf verschiedene Weisen ausgewertet und in Tab.5.1 sind die Ergebnisse dieser Auswertung aufgeführt. Neben dem oben beschriebenen Verfahren werden die Breiten der Linien auch durch das Anpassen einer Lorentzlinie an die rechte Flanke bestimmt. Dies ist analog zu der Bestimmung der geometrischen Breite Δ der Flanke bei Li et al. [Li 98b]. Mit der Breite der Kurve kann der Faktor a berechnet werden. Im Vergleich zu Ag ergibt sich aufgrund der geringeren Dispersion ein deutlich kleinerer Wert. Auf der anderen Seite ist er immer noch größer als der minimale Wert

	E_B (meV)	2Γ (meV)	a	τ (fs)
Lu	1 ± 4	$5,3\pm 0,6$	$1,22\pm 0,06$	126 ± 13
Ho (\uparrow)	96 ± 16	$18,4\pm 0,9$	$1,15\pm 0,08$	36 ± 2
Gd (\uparrow)	195 ± 20	36 ± 3	$1,10\pm 0,16$	18 ± 2
Ho (\downarrow)	-330 ± 40	116 ± 30	-	6 ± 1
Gd (\downarrow)	-480 ± 40	126 ± 30	-	5 ± 1

Tabelle 5.1: Auswertung der Linienbreiten für Lu und die Majoritätskomponenten (\uparrow) bzw. Minoritätskomponenten (\downarrow) von Ho und Gd. In Abhängigkeit von der Bindungsenergie sind die vollen Halbwertsbreiten (FWHM) der Linien, der im Text diskutierte Korrekturfaktor a und die berechneten Lebensdauern eingetragen.

von $a_{min} = 1$.

In der Tab. 5.1 sind ebenfalls die Breiten für die unbesetzten Komponenten des Oberflächenzustands eingetragen. Diese Daten werden wie im vorherigen Abschnitt erläutert mit einer Lorentzlinie und einem quadratischen Untergrund beschrieben. Im Unterschied zur besetzten Komponente besitzt dieser Peak keine scharfe Flanke. Auf der linken Seite dispergiert der Zustand in Richtung zur Fermienergie hin. Auf der rechten Seite erkennt man zusätzliche Beiträge, die von den Volumenbändern und Oberflächenresonanzen stammen können. Sowohl die Dispersion als auch die Beiträge anderer Zustände verbreitern die Linie in einer nicht bekannten Weise. Die Bestimmung der Lebensdauer dieses Zustands ist deshalb mit einem sehr großen Fehler behaftet.

Wie oben erläutert, wurde im Rahmen dieser Arbeit der Einfluß der Schichtdicke auf die Zustände untersucht. Für die Linienbreite konnte ebenfalls keine Abhängigkeit von der Dicke festgestellt werden.

Diskussion

In der folgenden Diskussion wird auf zwei Aspekte eingegangen:

1. Wie hängt die Lebensdauer von der Bindungsenergie ab?
2. Welche Faktoren bestimmen die Breite der schmalen Lu-Linie?

Zunächst soll jedoch begründet werden, warum die Breite der Linien im Tunnelspektrum mit der Lebensdauer der Zustände identifiziert wird. Für diese Interpretation sprechen verschiedene Argumente. Erstens erkennt man in den Spektren eine deutliche Abnahme der Linienbreite für kleinere Bindungsenergien, was sich unmittelbar mit einer zunehmenden Lebensdauer erklären läßt. Zweitens lassen sich die Peaks sehr gut mit einer Lorentzlinie bzw. einer Schar von Lorentzlinien beschreiben, wobei die Breite einer Lorentzlinie als untere Grenze für die Lebensdauer eines Zustands angesehen werden kann. Zusätzlich hat die Bestimmung von Lebensdauern mit dem RTM gegenüber integrierenden Methoden wie der PE und der IPE den Vorteil, dass hier die Verbreiterung der Linie durch Defekte und Kontaminationen weitgehend ausgeschlossen werden kann. Dies

bedeutet eine signifikante Reduzierung der Effekte, die die gemessenen Linien verbreitern können [Ter 83b]. Allerdings erfordert die Tatsache, dass das Tunnelspektrum die lokale Zustandsdichte wiedergibt, eine sorgfältige Analyse der Daten, die oben beschrieben ist.

Wie einleitend erwähnt, wird die folgende Diskussion im Rahmen der Fermi-Liquid-Theorie geführt [Qui 62]. Dies ist die einzige derzeit allgemein akzeptierte Theorie, die den Einfluß von Elektron-Elektron-Stößen auf die Lebensdauer erklärt. Allerdings ist sie in erster Linie für das Modell der freien Elektronen entwickelt worden. Die inverse Lebensdauer, die als Stoßwahrscheinlichkeit betrachtet werden kann, nimmt quadratisch mit der Energie zu:

$$\frac{1}{\tau} \propto (E_0 - E_F)^2,$$

wobei E_F die Fermienergie und E_0 die Bindungsenergie des Zustands bezeichnen. Die Energieerhaltung unter Berücksichtigung des Pauli-Prinzips und die Impulserhaltung reduzieren die Wahrscheinlichkeit für einen Stoß um jeweils einen Faktor $(E_0 - E_F)$. Für Edelmetalle wurde diese quadratische Abhängigkeit bestätigt, beispielsweise mit dem RTM an den Oberflächenzuständen von Cu und Ag [Bür 99]. Eine relativ junge Methode, um die Energieabhängigkeit der Lebensdauer zu bestimmen, ist die Zwei-Photonen Photoemission (2 PPE), die angeregte Zustände zwischen der Fermikante und der Vakuumenergie in einem zeitaufgelösten Experiment untersucht. Die gemessene Relaxationszeit ist aber nicht mit der Lebensdauer eines einzigen Elektrons zu interpretieren, sondern ist vielmehr als eine Verteilung von angeregten Elektronen zu deuten [Kno 00]. Mit dieser Methode konnte eine quadratische Abhängigkeit der Relaxationszeit von der Energie für Edelmetalle festgestellt werden. Messungen an Übergangsmetallen ergeben im Gegensatz dazu eine lineare Abhängigkeit $\frac{1}{\tau} \propto (E_0 - E_F)$, für die es derzeit noch keine Erklärung gibt [Gol 98].

In Abb. 5.13 sind die aus den Spektren bestimmten Linienbreiten gegenüber der Bindungsenergie aufgetragen. Im Folgenden werden die Werte für die Lochzustände miteinander verglichen. Dies hat zwei Gründe. Erstens kann die Lebensdauer dieser Zustände, wie oben erläutert, im Gegensatz zu denen der angeregten Elektronen genauer bestimmt werden und zweitens unterscheiden sich die Bandstrukturen für die Elemente untereinander weniger stark als für die Minoritäts- und Majoritätszustände. Überhaupt muss jeglicher Vergleich sehr kritisch durchgeführt werden, da die Bandstruktur einen entscheidenden Einfluß auf die Lebensdauer besitzt [Ech 00]. Trotzdem lassen sich die Lanthaniden im Unterschied zu $3d$ -Übergangsmetallen, bei denen eine stark spinabhängige Zustandsdichte an der Fermikante vorliegt, aufgrund ihrer chemischen Ähnlichkeit gut miteinander vergleichen.

Trotz der wenigen Datenpunkte kann man aus der Auftragung erkennen, dass eine quadratische Abhängigkeit von der Energie nicht gegeben ist. Vielmehr kann auf eine lineare Abhängigkeit geschlossen werden, die durch eine Gerade in Abb. 5.13, die den Wert von Gd mit dem Ursprung verbindet, angedeutet ist. Im $T \rightarrow 0$ Limit bei Vernachlässigung der phononischen Verbreiterung ist die Extrapolation auf den Ursprung aufgrund des verschwindenden Phasenraums gerechtfertigt. Der Wert für Gd wiederum wurde als Referenzwert genommen, da dieser Wert experimentell sowohl mit dem RTM als auch in der

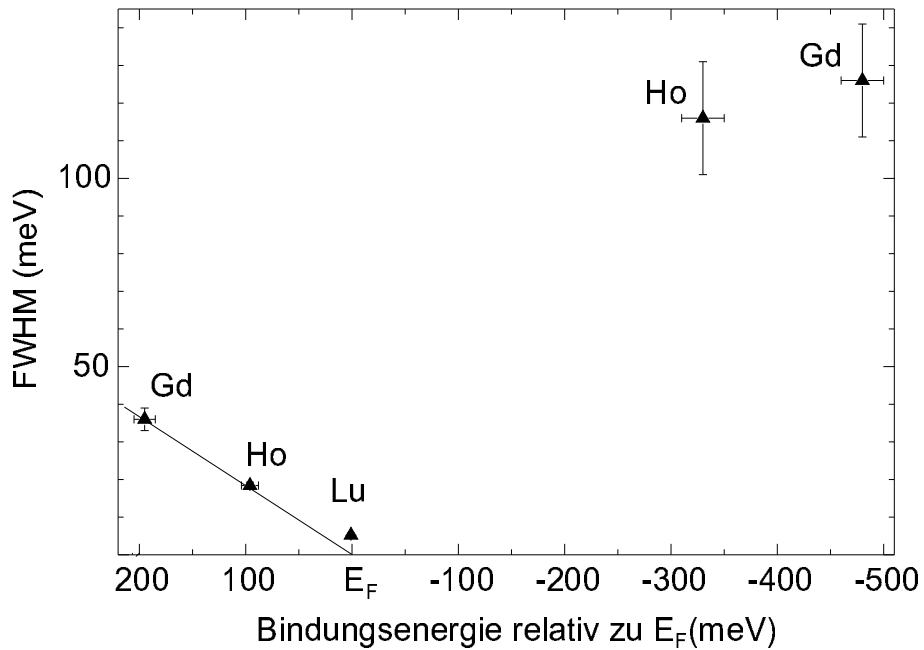


Abbildung 5.13: Auftragung der gemessenen Linienbreiten der Majoritätskomponenten und Minoritätskomponenten von Ho und Gd sowie von Lu als Funktion der Bindungsenergie. Die eingezeichnete Gerade verbindet die Majoritätskomponente von Gd mit dem Ursprung.

PE (42 meV FWHM) ermittelt worden ist. Der Unterschied in den ermittelten Breiten kann sehr wahrscheinlich auf Defekte auf der Oberfläche zurückgeführt werden. Der Wert von Ho passt sehr gut auf die Gerade, während der Wert von Lu hiervon abweicht. Allerdings kann der Wert für Lu, wie weiter unten diskutiert wird, durch die experimentelle Auflösung und die thermische Verbreiterung eine untere Grenze besitzen. Eine lineare Abhängigkeit bedeutet ein Abweichen vom Fermi-Liquid-Verhalten. Trotzdem kann man diese Abhängigkeit in der selben Theorie qualitativ verstehen, wenn man die Impulserhaltung betrachtet, die einen Beitrag zum Ergebnis für das freie Elektron beisteuert. Die betrachteten Zustände sind sehr stark lokalisiert. Dies bedeutet, dass ihr Impuls aufgrund der Unschärferelation nicht mehr scharf definiert ist. Somit sind die Beschränkungen im Phasenraum aufgrund der Impulserhaltung aufgeweicht und übrig bleibt nur der Beitrag durch die Energieerhaltung, welcher proportional zu $(E_0 - E_F)$ ist.

Wenn man die bestimmten Lebensdauern mit Werten von anderen Metallen vergleicht, so fällt auf, dass in Bezug auf die kleine Bindungsenergie die Zustände der Lanthaniden sehr kurzlebig sind. An *s-p*-artigen Oberflächenzustände von den Edelmetallen Ag(111) und Cu(111) wurden Linienbreiten (FWHM) von 6 meV ($E_B = 70$ meV) bzw. 24 meV ($E_B = 400$ meV) bei 5 K mit dem RTM gemessen [Kle 00]. Für einen *d*-artigen Tammzustand auf Cu(100) mit einer Bindungsenergie von 1800 meV wurde mit der PE eine Breite (FWHM) von 7 meV bei 10 K festgestellt. Trotz der hohen Bindungsenergie

gie des Zustands ist diese Linie immer noch schmaler als die der Lanthaniden. Werte für Oberflächenzustände anderer Metalle liegen nicht vor. Extrapoliert man die Werte der 2 PPE für Übergangsmetalle Fe, Co und Ni, die an Volumenzustände gemessen wurden, zu kleineren Bindungsenergien hin, so erhält man für diese Zustände zwar Relaxationszeiten, die vergleichbar mit den berechneten Lebensdauern der hier untersuchten Oberflächenzustände sind [Kno 00]. Allerdings wurden diese Daten bei Zimmertemperatur gemessen, so dass die Elektron-Phonon-Wechselwirkung einen zusätzlichen Beitrag zur Relaxationszeit liefert, und einen weiteren Beitrag liefern Sekundärelektronen, der gerade bei niedrigen Bindungsenergien nicht zu vernachlässigen ist.

Aus zwei Gründen erwartet man aber für die hier untersuchten Oberflächenzustände der Lanthaniden sehr viel größere Lebensdauern. Einmal sind die Zustände stark lokalisiert, so dass der Überlapp mit anderen Wellenfunktionen gering ist. Zum anderen ragen sie weit ins Vakuum hinaus, was ebenfalls zu einem geringen Überlapp mit anderen Wellenfunktionen führen sollte. Beide Ursachen sollten zu einer Verringerung der Stoßwahrscheinlichkeit führen [Zar 00, Ech 00], die allerdings nicht beobachtet wird. Die relativ kurzen Lebensdauern können derzeit nicht erklärt werden. Eine wichtige Rolle könnte die sehr hohe d -artige Zustandsdichte an der Fermikante der Lanthaniden spielen [Tay 72], was zu einer Verminderung der Lebensdauer aufgrund von zusätzlichen Zerfallskanälen führen sollte. Andere Wechselwirkungen hingegen wie beispielsweise die Elektron-Magnon-Wechselwirkung oder die Elektron-Phonon-Wechselwirkung, die weiter unten abgeschätzt wird, können aufgrund der niedrigen Temperatur keinen dominierenden Einfluß besitzen. Bei 10 K ist das System in seiner magnetischen Sättigung, so dass nahezu keine Magnonen mehr ausgetauscht werden. Die experimentelle Auflösung limitiert auf jeden Fall die Linienbreite nicht wesentlich, wie es im Folgenden am Lu-Spektrum diskutiert werden soll.

Mit einer Breite von $(5,3 \pm 0,6)$ meV (FWHM) besitzt der Oberflächenzustand von Lu im Vergleich zu anderen langlebigen Zuständen, die bisher vermessen wurden und die oben aufgeführt sind, eine ähnlich hohe Lebensdauer. Trotzdem stellt sich die Frage, ob die berechnete Lebensdauer von 126 fs durch die Auflösung nach oben hin limitiert ist oder ob sie durch andere Faktoren bestimmt wird. Wie oben erläutert wurde, wird die experimentelle Auflösung mit etwa 2,7 mV (FWHM) angenommen. Es ist aber bekannt, dass vor allem RF-Rauschen auf der Probenspannung die Auflösung stark beeinträchtigen kann [Yaz 97]. Dieses Rauschen ist im Tunnelstrom nicht messbar. Obwohl alle in die Kammer führenden Leitungen mit Tiefpässen versehen sind, kann ein Einfluss dieses RF-Rauschens nicht vollkommen ausgeschlossen werden. Nimmt man die gemessene Linienbreite von etwa 9 mV als experimentelle Auflösung an, so reduzieren sich die angegebenen Linienbreiten von Ho und Gd auf etwa 15 meV bzw. 35 meV. Ob dies allerdings gerechtfertigt ist, kann nur durch ein alternatives Experiment, welches die experimentelle Auflösung bestimmt, beantwortet werden. Eine Möglichkeit dazu bietet die Bestimmung der Bandlücke eines Supraleiters, die eine bekannte temperaturabhängige Breite besitzt. Ein derartiges Experiment erfordert aber eine verbesserte thermische Ankopplung der Probe.

Es gibt aber auch verschiedene Gründe, weshalb die Lebensdauer des Zustands nicht

größer als die gemessene sein kann. Neben dem energieabhängigen Term in der Fermi-Liquid-Theorie berücksichtigt ein weiterer temperaturabhängiger Term die Verbreiterung der Fermikante. Die inverse Lebensdauer des angeregten Zustands ist dann

$$\frac{1}{\tau} = a(E_0 - E_F) + b(k_B T)^2,$$

wobei a und b von E_0 und T unabhängigen Koeffizienten darstellen. Dies bedeutet, dass aufgrund einer hohen Zustandsdichte an der Fermikante bei 10 K noch genügend Zerfallskanäle vorhanden sein können, welche die Lebensdauer beschränken.

Zusätzlich kann das Loch durch eine Elektron-Phonon-Anregung verschwinden. Oft wird der Beitrag von Phononen zur Linienbreite im hier relevanten Temperaturbereich vernachlässigt. Aber an der Fermikante liefern Streuprozesse mit Phononen selbst bei $T=0$ aufgrund der Nullpunkt-Schwingung des Gitters einen nicht zu vernachlässigenden Anteil zur Linienbreite [Mat 98]. Allerdings ist dieser Anteil nicht bekannt. Bisherige Experimente beschränken sich meist auf den Temperaturbereich $T > 50$ K. Für den Bereich niedriger Bindungsenergien und tiefer Temperaturen existieren dagegen fast keine Daten. Die mit Hilfe der PE durchgeführten Untersuchung der Gaußverbreiterung des Gd-Oberflächenzustands, der mit einer Lorentzlinie beschrieben wird, ergibt eine lineare Verbreiterung mit der Temperatur für $T > 100$ K [Sch 95]. Auf 10 K extrapoliert ergeben diese Ergebnisse eine Gaußbreite des Zustands von etwa 1-3 meV, was einen bedeutenden Anteil zur Linienbreite darstellen würde. Es ist deshalb lohnenswert, in einer künftigen Studie die Temperaturabhängigkeit der Linienbreite des Lu-Oberflächenzustands, der sich aufgrund seiner Energielage besonders eignet, zu untersuchen.

Als letzte Ursache für eine Linienverbreiterung kann die Streuung an Defekten angeführt werden. Obwohl der Zustand stark lokalisiert ist und deshalb eine elastische Streuung an Defekten eine geringere Rolle als bei delokalisierten Zuständen spielen sollte, können sich Tunnelspektren, die in einem Abstand von nur wenigen Å aufgenommen wurden, sehr stark unterscheiden. Aufgrund der geringen Distanz können Spitzenwechsel ausgeschlossen werden. Ebenso wenig lassen sich Defekte auf der Oberfläche erkennen. Allerdings sind die Oberflächen oft eher rau, wenn gleich der Oberflächenzustand sehr scharf ist. Der Einfluß von Defekten auf d -artige Oberflächenzustände ist aber noch nicht verstanden und deshalb ebenfalls ein interessantes Thema für eine künftige Studie.

Abschließend läßt sich feststellen, dass die Bestimmung der Linienbreite mit RTS aufgrund der hohen Auflösung interessante neue Aspekte zum Verständnis von Lebensdauern angeregter Zustände liefert. Überraschend an den vorgestellten Ergebnissen ist u.a. die relativ kurze Lebensdauer dieser Zustände, wobei die Gründe hierfür nicht bekannt sind. Ob die hohe Zustandsdichte an der Fermikante hierfür verantwortlich ist, kann nur durch Rechnungen und weitere Experimente verstanden werden. Als geeignetes System für eine vergleichende Studie können Tammzustände auf bcc (001)-Oberflächen untersucht werden. Besonders interessant ist der Oberflächenzustand von Fe(001) mit einer Bindungsenergie von etwa 170 meV. Fe besitzt -wie die Lanthaniden- eine hohe Zustandsdichte an der Fermikante und der Zustand ist ebenfalls austauschtaufgespalten. Eine energieabhängige Bestimmung der Lebensdauer kann durchgeführt werden,

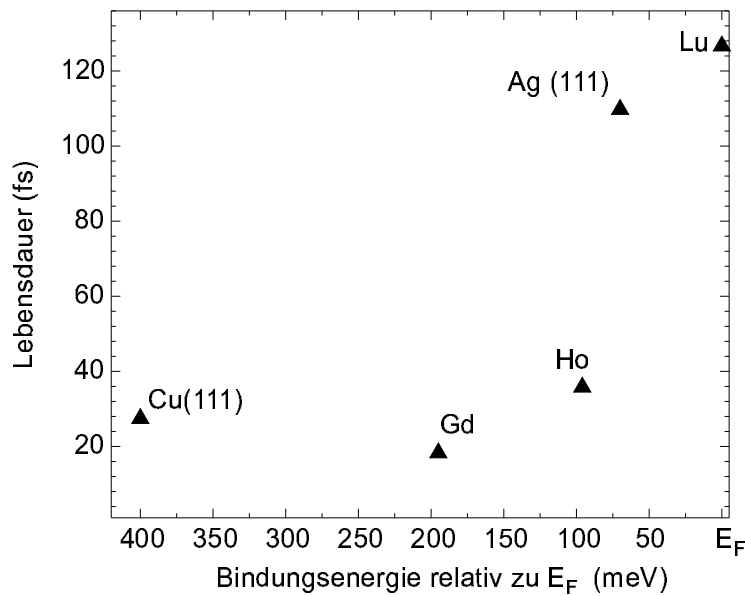


Abbildung 5.14: Aus der Linienbreite berechnete Lebensdauern der besetzten Oberflächenzustände von Lu, Ho und Gd in Abhängigkeit von der Bindungsenergie. Zusätzlich sind die mit RTS gemessenen Lebensdauern vom Cu(111)- und Ag(111)-Oberflächenzustand eingetragen [Kle 00]. Die Lebensdauern der Oberflächenzustände der Lanthaniden sind relativ zu ihrer kleinen Bindungsenergie sehr viel kürzer, als die aller anderen vermessenden Zustände.

indem der Zustand in Abhängigkeit von der Schichtdicke untersucht wird. Aufgrund des *finite-size*-Effektes sollte sich die Aufspaltung reduzieren und der Zustand energetisch in Richtung zur Fermikante hin verschieben. Ein ähnliches Experiment war auch bei den hier untersuchten Lanthaniden beabsichtigt, die allerdings, wie oben diskutiert, keinen *finite-size*-Effekt in der Aufspaltung zeigen.

