

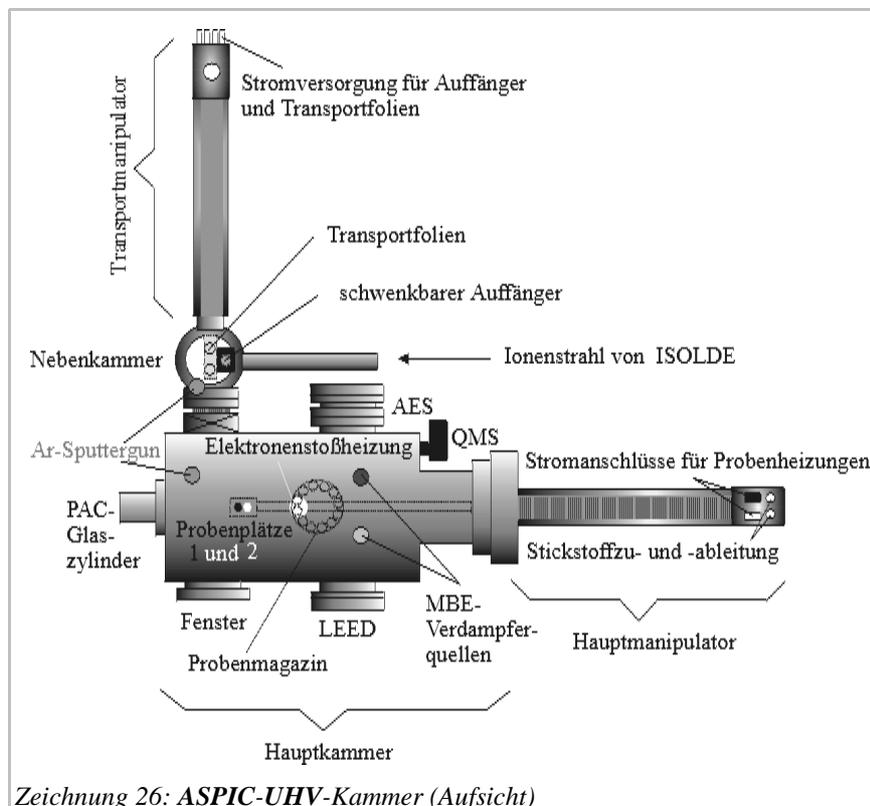
V Experimentelles Verfahren

V.1 Einführung

Die Proben werden wie folgt präpariert:

1. Die verwendeten *Ni(111)*-Einkristalle hatten einen Durchmesser von *10 mm* und eine Dicke von etwa *1.5 mm*. Die Kristalloberflächen wurden von der Herstellerseite in der gewünschten Orientierung geschnitten und poliert. Die weitere Präparation erfolgte in der *UHV*²³-Kammer *ASPIC*²⁴.
2. Die Proben wurden durch Zyklen aus *Ar*-Ätzen und Tempern gereinigt. Diese Methode wird in der Oberflächenphysik standardmäßig angewendet.
3. Abhängig vom geplanten Experiment wurde *Pd* epitaktisch auf die *Ni(111)*-Oberfläche aufgebracht.
4. Aufbringen der radioaktiven Sonden, welche vom Massenseparator *ISOLDE*²⁵ bereitgestellt wurden.
6. Durch Tempern der Probe (kontrollierte Diffusion) oder durch zusätzliches Abscheiden von *Pd* auf der *Ni(111)*-Oberfläche wurden die verschiedenen Sondenplätze präpariert.

Zeichnung 26 zeigt die Aufsicht der *ASPIC*-Kammer.



²³ Ultra-Hoch-Vakuum mit einem Basisdruck von 5×10^{-11} mbar

²⁴ Apparatus for Surface Physics and Interfaces at CERN

²⁵ Isotope Mass Separator Online Device

ASPIC besteht zum einen aus einer Hauptkammer mit Präparationsteil. Alle Positionen sind für die auf dem Hauptmanipulator befindlichen Proben erreichbar. Der Hauptmanipulator verfügt mit x ($\pm 0.5\text{mm}$), y ($\pm 0.5\text{mm}$), z ($\pm 1\text{mm}$) Hub sowie Achsrotation um ϕ ($\pm 0.5^\circ$) über 4 Freiheitsgrade in der Bewegung. An der Vorderseite der Hauptkammer befindet sich ein Glaszylinder, in den die Probe für **PAC**-Messungen eingebracht wird.

Zum anderen besitzt **ASPIC** eine Nebenkammer mit einem Strahlrohranschluß an den Online-Massenseparator **ISOLDE**. In die Strahlrohrschleuse kann eine Metallfolie (der Auffänger) für die Akkumulation der radioaktiven Isotope geklappt werden. Die Nebenkammer besitzt weiterhin einen Transportmanipulator, auf welchem sich heizbare Mo-Folien für den Transport der aufgefangenen Radioaktivität befinden. Der Transportmanipulator kann mit einer Genauigkeit von $\pm 0.5\text{mm}$ unter der Probenoberfläche positioniert werden. Der Abstand zwischen Transportblech und Probenoberfläche beträgt bei der Aktivierung derselben durch Widerstandsheizten (Punkt zwei in Zeichnung 32 links) etwa 0.5mm . Die Motorsteuerung der Manipulatoren erfolgt per Computer.

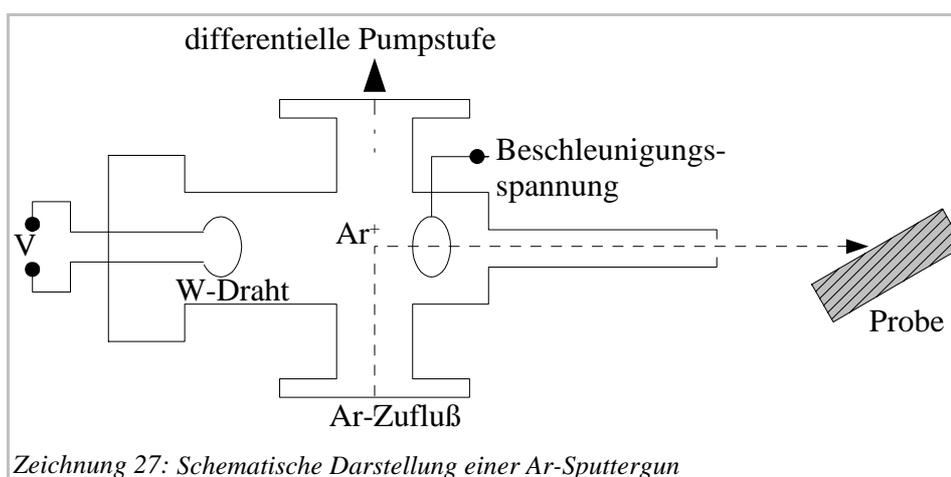
Das **UHV** wird über ein Pumpsystem bestehend aus einer Turbomolekularpumpe (**TMP**), einer Ionengerätspumpe (**IGP**), einer Titansublimationspumpe (**TSP**) und einer Kryopumpe hergestellt. Die Gesamte **UHV**-Kammer **ASPIC** wird vor dem Experiment für etwa 48h bei $200\text{-}250^\circ\text{C}$ ausgeheizt, um an den Innenwänden adsorbierten Verunreinigungen wie H_2O , N_2 und CO abzupumpen. Die Filamente der eingebauten Präparations- und Analysegeräte werden nach dem Ausheizen degast.

V.2 Präparation der Einkristalloberflächen

2.1 Ar-Ätzen²⁶

Eine vakuumtechnisch unbehandelte Probe weist eine starke Verschmutzung durch adsorbierte Gase wie CO , O_2 und N_2 auf. Zunächst wurde diese Restkontamination durch Ar-Ätzen beseitigt.

Die Probe befand sich hierzu in einem Abstand von etwa 50mm vor der Ar-Kanone und war um etwa 30° zur Strahlrichtung geneigt (Zeichnung 27). Die Energie der Ar^+ -Ionen wurde, je nach Verschmutzungsgrad, zwischen 0.6 und 0.9kV eingestellt. Der Strom betrug etwa $8\ \mu\text{A}$. Während des Ätzvorgangs steigt der Basisdruck in der **ASPIC**-Kammer auf etwa $1 \times 10^{-6}\text{mbar}$.

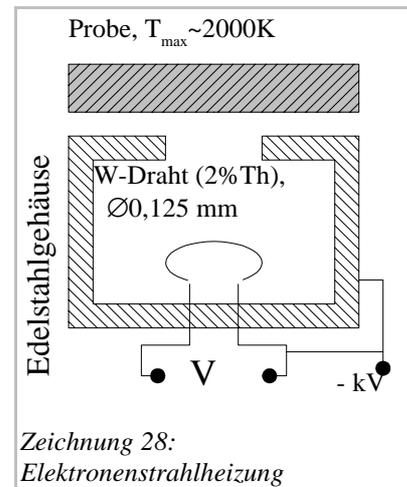


²⁶ auch als Sputtern bezeichnet

2.2 Tempern²⁷

Durch 30-60 minütiges Ätzen konnte die Ni-Oberfläche weitestgehend von Verunreinigungen befreit werden. Anschließendes Tempern der Probe im **UHV** auf 1000 K bis 1300 K für 30 bis 60 min heilte die durch das Ätzen aufgeraute Oberfläche wieder aus. Das Anlassen erfolgte auf einer Elektronenstrahlheizung.

Zeichnung 28 zeigt eine schematische Darstellung der Elektronenstrahlheizung: Ein Wolframdraht wird durch Anlegen einer Heizspannung zur Emission von Elektronen angeregt. An den Heizdraht und das Edelstahlgehäuse wird eine Hochspannung von bis zu -3 kV angelegt, um die Elektronen auf die geerdete Probe zu fokussieren. Die Probentemperatur steigt mit der angelegten Hochspannung. Durch das Tempern der Probe kommt es zur Segregation von Volumenverunreinigungen in die oberen Schichten. Auf diese Weise wird die Ni-Oberflächenlage typischerweise durch S, C, O, N, P kontaminiert.



Aus diesem Grunde mußte der Zyklus aus Ätzen und Tempern solange wiederholt werden, bis die Oberfläche eine Restkontamination von unter 3% aufwies und die Terrassen eine Größe von über 40x40 Atomen erreicht hatten. Diese Parameter stellen sicher, daß die unmittelbare Umgebung der später aufgebrachtten Sondenatome nur minimal durch Defekte (Kontamination, Fehlstellen, Korngrenzen) verfälscht wird.

2.3 AES/LEED

Die Restkontamination der Ni-Oberfläche wurde mit einem Auger-Elektronen-Spektrometer (**AES**) kontrolliert [Hen94, Seite 283]. Hierzu wurde ein Elektronenstrahl mit einer Energie von 3 kV auf die Oberfläche der Probe gerichtet. Der mehrere 1/10 mm dicke Strahl führt in den obersten 3-5 Atomlagen zur Emission von Auger-Elektronen, die mit einem **CMA**²⁸ detektiert werden. Die auf der Oberfläche befindlichen Elemente emittieren Augerelektronen mit elementspezifischen Energien, anhand derer sie identifiziert werden können. Die Intensität der Kennlinien im Augerelektronenspektrum gibt Aufschluß über ihre Konzentration.

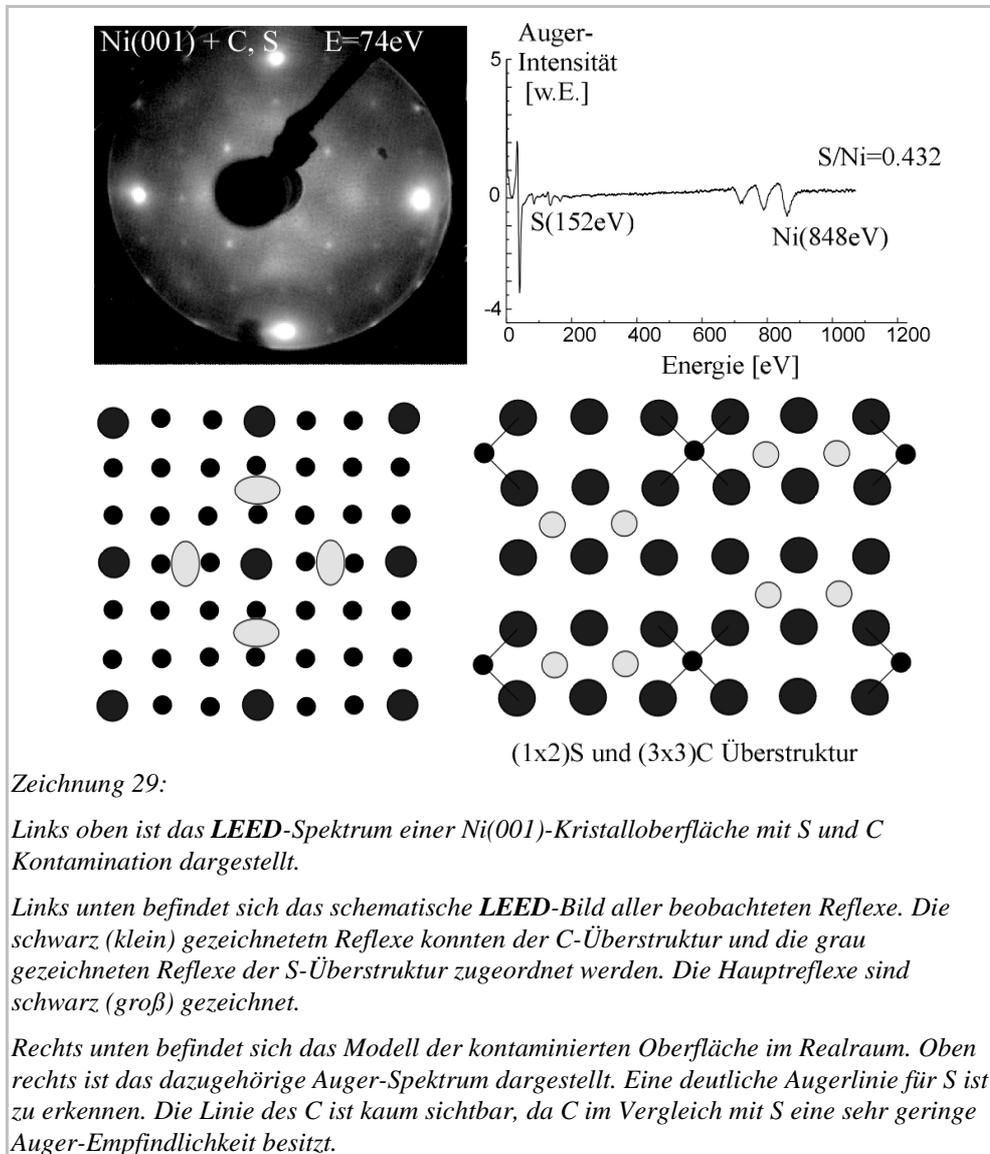
Die strukturellen Eigenschaften der Oberfläche wurden mittels **LEED**²⁹ kontrolliert [Hen94, Seite 124-178]. Ein auf die Einkristalloberfläche gerichteter Elektronenstrahl von 50-500 eV wird am zweidimensionalen Kristallgitter gebeugt und erzeugt auf einem Fluoreszenzschirm ein Beugungsbild. Die Lage und Breite der Reflexe gibt Aufschluß über periodische Strukturen und die Rauigkeit der Oberfläche.

²⁷ auch als Annealing oder Anlassen bezeichnet

²⁸ Cylindrical Mirror Analysator

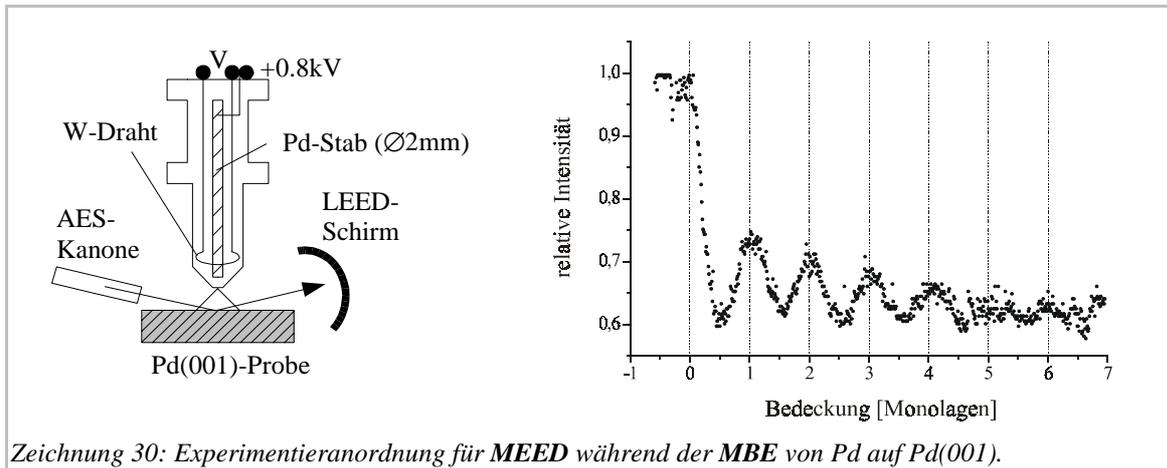
²⁹ Low Energy Electron Diffraction

In Zeichnung 29 sind das *AES*- und das *LEED*-Bild einer für *Ni* typischen Oberflächenkontamination durch *C* und *S* nach dem Tempern dargestellt. Die Aufnahme solcher Spektren wurde zwischen den Ätz- und Temperzyklen zur Kontrolle der Kontamination und der Rauigkeit der Oberfläche durchgeführt.

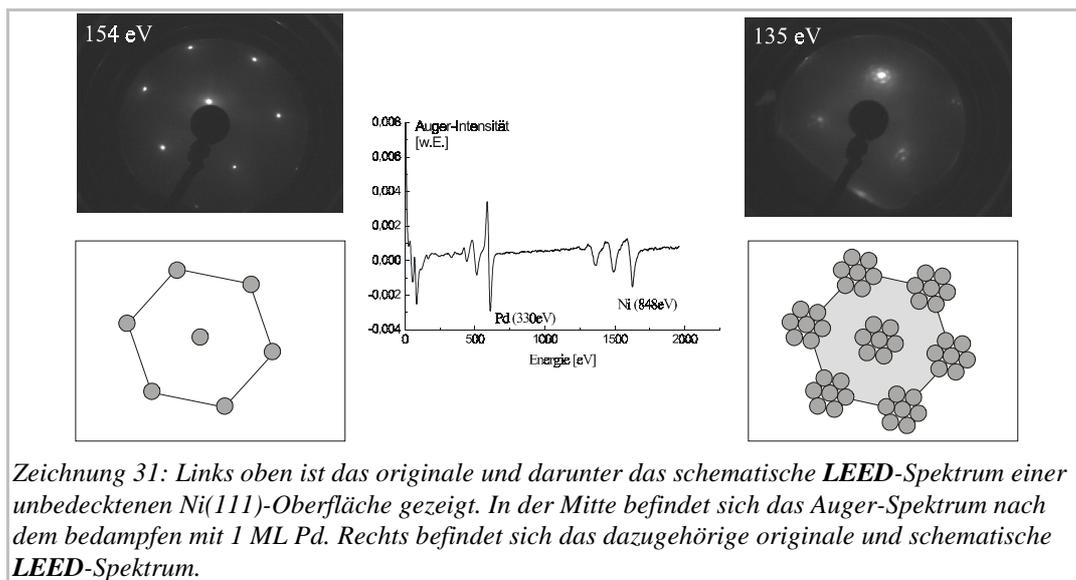


2.4 MBE

Die Ultradünnen Pd-Schichten werden mittels **MBE**³⁰ hergestellt. Zeichnung 30 (links) zeigt eine **MBE**-Zelle in einer **MEED**³¹-Anordnung. Durch Elektronenstrahlheizen wird die Spitze eines Pd-Stabes zum Schmelzen gebracht. Die abdampfenden Atome gelangen mit thermischer Geschwindigkeit durch eine Düse auf die Probe. Der Prozeß kann in situ beobachtet werden [Rei86]. Hierzu wird die Probe genau zwischen Auger-Spektrometer und **LEED** positioniert (Zeichnung 30, links).



Der Elektronenstrahl aus der **AES**-Kanone streift die Probenoberfläche unter einem Winkel von 3-5° und erzeugt auf dem **LEED**-Schirm einen spekulären Reflex. Die Intensität des spekulären Reflexes oszilliert bei Lage-für-Lage-Wachstum mit der Anzahl der aufgedampften Monolagen: Die Oberfläche erreicht bei einer Bedeckung von 0.5 Monolagen maximale Rauigkeit und minimiert ihre Reflexivität. Nach Abschluß einer Monolage ist die Rauigkeit minimal und die Reflexivität maximal. Auf diese Weise kann die Zeit für die Vollendung einer Monolage (hier etwa 60 s) bestimmt werden (rechter Teil von Zeichnung 30). Zeichnung 31 zeigt links das **LEED**-Bild einer Ni(111)-Oberfläche.



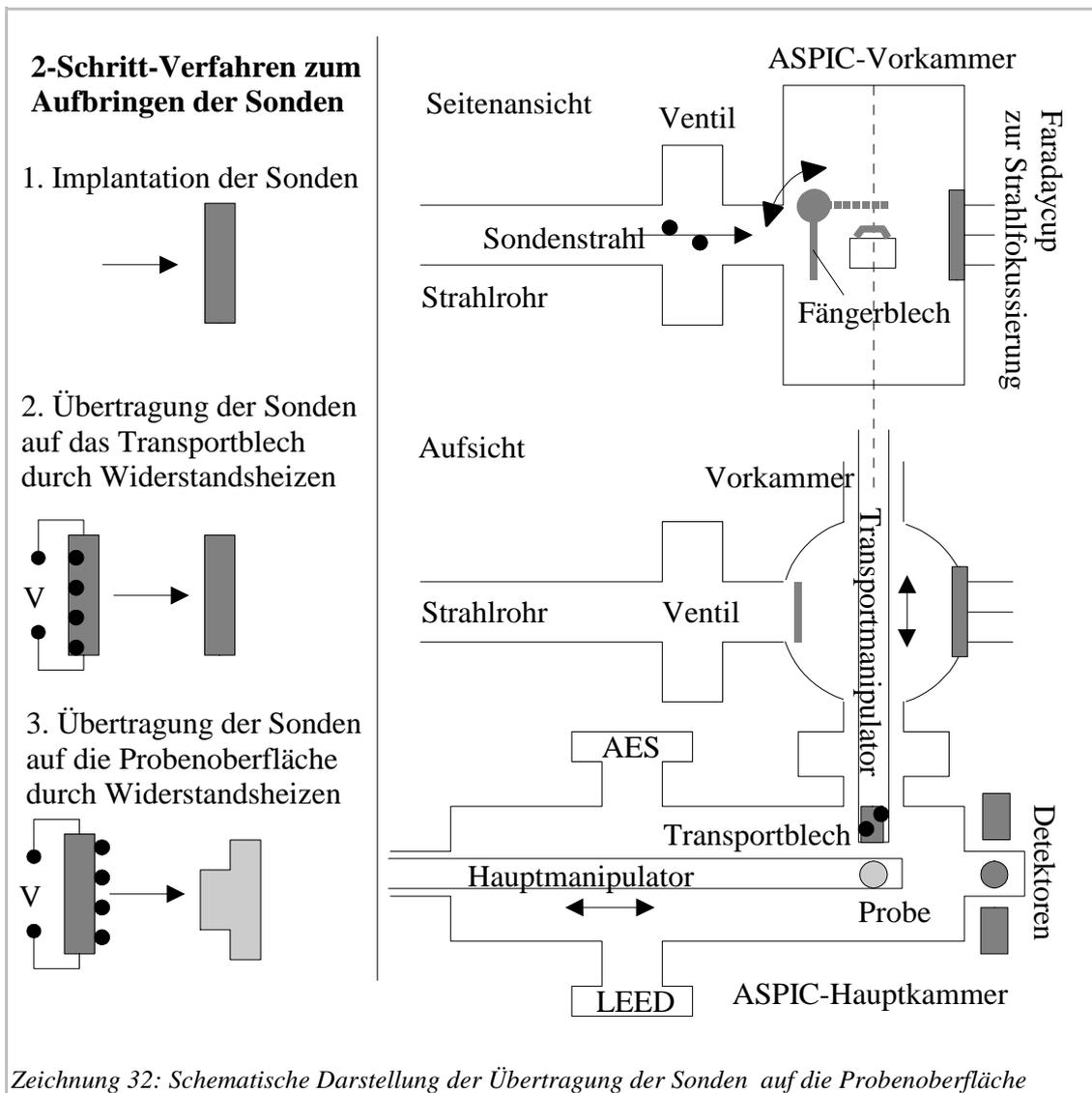
30 Molecular Beam Epitaxy

31 Medium Energy Electron Diffraction

Wird eine Monolage *Pd* auf *Ni(111)* aufgedampft, so ist im *AES* die entsprechende Linie zu erkennen. Im *LEED* (rechts) sind die für inkommensurable Überstrukturen typische Satelliten der Hauptreflexe sichtbar. *Pd* wächst auf *Ni(111)* in *(111)*-Orientierung. Mit diesen Informationen kann die durch *MEED* beim Wachstum von *Pd* auf *Pd(001)* gewonnene Zeit, die zur Vollendung einer Monolage benötigt wird, auf die Epitaxie von *Pd* auf *Ni(111)* umgerechnet werden.

V.3 Aufbringen der radioaktiven Sonden und PAC-Messung

Auf die gereinigte Einkristalloberfläche werden die vom Massenseparator *ISOLDE* bereitgestellten radioaktiven Sonden aufgebracht. Sie werden durch Beschuß eines auswechselbaren Targets mit einem gepulsten Protonenstrahl von *1 GeV* Energie erzeugt, wobei die Pulslänge *2.4 μs* und der durchschnittliche Strom *2.1 mA* beträgt [Kug92]. Die Massenauflösung des Separators beträgt $\Delta m/m = 1/2400$.

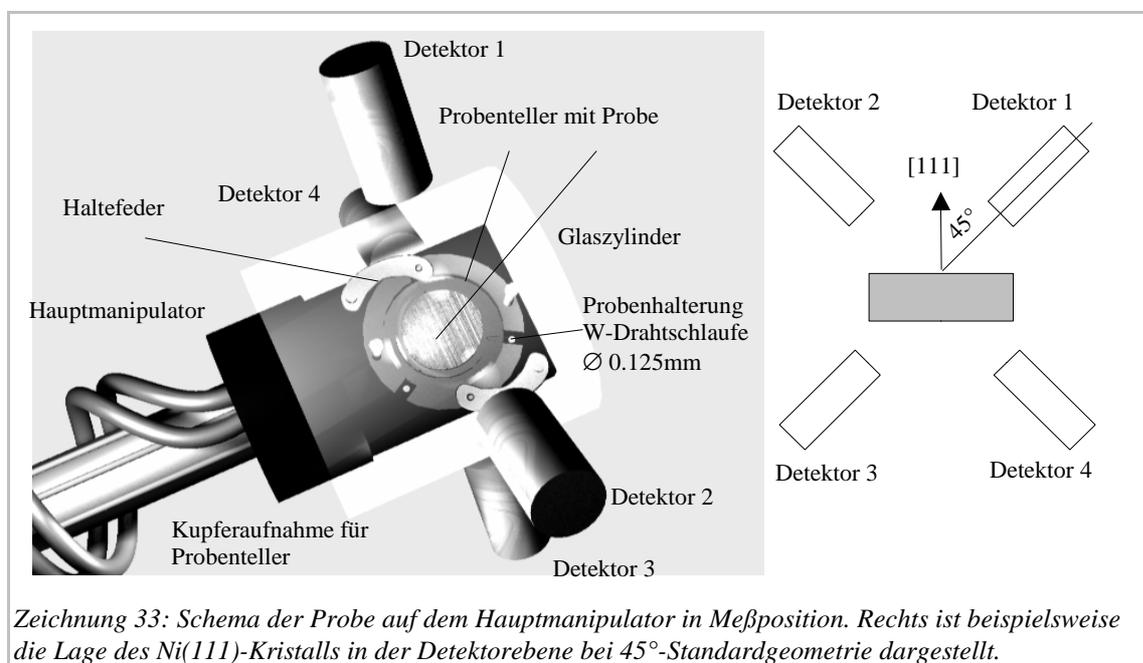


Zeichnung 32: Schematische Darstellung der Übertragung der Sonden auf die Probenoberfläche

Die Sondenisotope werden über eine Extraktionsspannung von 60 kV zunächst beschleunigt, und danach durch Strahlrohre zu den Experimentierplätzen geführt. Die Strahloptik basiert auf elektrostatischen Linsen. Da in den Strahlrohren ein Basisdruck von 10^{-6} mbar herrscht, wurde eine fünfstufige differentielle Pumpstrecke von 3 m Länge vor der *ASPIC*-Kammer installiert, um den Druck p in der an das Strahlrohr angeschlossenen *ASPIC*-Vorkammer während der Implantation bei $p < 5 \times 10^{-10}\text{ mbar}$ zu halten.

Die radioaktiven Sonden werden zunächst in ein Fängerblech implantiert. Es wurde vorher durch mehrmaliges Tempern auf etwa 1600 K gereinigt. In einem Zwei-Schritt-Verfahren werden die Sonden dann auf die Oberfläche gebracht (Zeichnung 32, links).

Die vorgestellte in-situ-Methode zum Aufbringen der radioaktiven Sonden am Massenseparator *ISOLDE* führt meist zu einer geringeren Verunreinigung der Probenoberfläche als gängige chemische Abscheidungsverfahren. Die Restkontamination nach der Evaporation der Isotope liegt zwischen 1 und 3% Kohlenstoff. Die Konzentration der radioaktiven Sonden auf dem Einkristall beträgt etwa $1\text{ pro } 10000$ Oberflächenatome. Die *PAC*-Messung selbst wird in einer 4-Detektor-Geometrie durchgeführt, wofür die Probe in einen Glaszylinder an der Stirnseite der *ASPIC*-Hauptkammer gefahren wird (Zeichnung 33).



Ausblick

Am Ende der *PAC*-Messung erhält man das $R(t)$ -Spektrum (Gleichung {17}, Seite 17). Dieses $R(t)$ -Spektrum enthält die elektrischen Quadrupol- und magnetischen Dipol-Übergangsfrequenzen, sowie weitere Informationen, die auf Seite 19 besprochen wurden. Die Extraktion dieser Informationen wird zu Beginn des folgenden Kapitels vorgestellt. Anschließend werden die gewonnenen Hyperfeinparameter zusammengefaßt.