

2 Experimentelles

Die Untersuchung der elektronischen Struktur von Lanthanidmetallen mittels Photoemission während der Oxidation stellt hohe experimentelle Anforderungen. Um an möglichst wohldefinierten Proben zu messen und für die Untersuchung von Bandstrukturen, ist es notwendig Einkristalle zu verwenden. Photoemission mit nicht zu hoher Photonenenergie zeichnet sich durch hohe Oberflächenempfindlichkeit aus. Dies erfordert eine auf atomarer Skala saubere Oberfläche, was zwangsläufig dazu führt, das Experiment im Ultrahochvakuum (UHV) durchzuführen. Um die Oberfläche eines reinen Lanthanidmetalls für mehrere Stunden hinreichend sauber zu halten, ist ein Basisdruck in der UHV-Meßkammer von der Größenordnung 10^{-11} mbar nötig.

Für die Durchführung eines Photoemissionsexperiments werden neben der Probe eine geeignete monochromatische Lichtquelle und ein Energieanalysator zur Aufnahme des Spektrums der emittierten Elektronen benötigt. Hierbei stehen Anforderungen wie schmale Energiebandbreite der anregenden Photonen, hoher Photonenfluß und hohes Auflösungsvermögen des Analysators im Vordergrund. Hinzu kommt bei der Messung von Bandstrukturen hinreichende Winkelauflösung, $\Delta\theta$, des Analysators.

Der experimentelle Aufbau, der in dieser Arbeit verwendet wird, und wie die oben genannten Anforderungen berücksichtigt werden, ist Thema dieses Kapitels. Die Gliederung in Unterkapitel lehnt sich dabei an die drei in Abb. 2.1 schematisch dargestellten Bestandteile des Photoemissionsexperiments: Probe, Lichtquelle und Analysator. Abb. 2.1

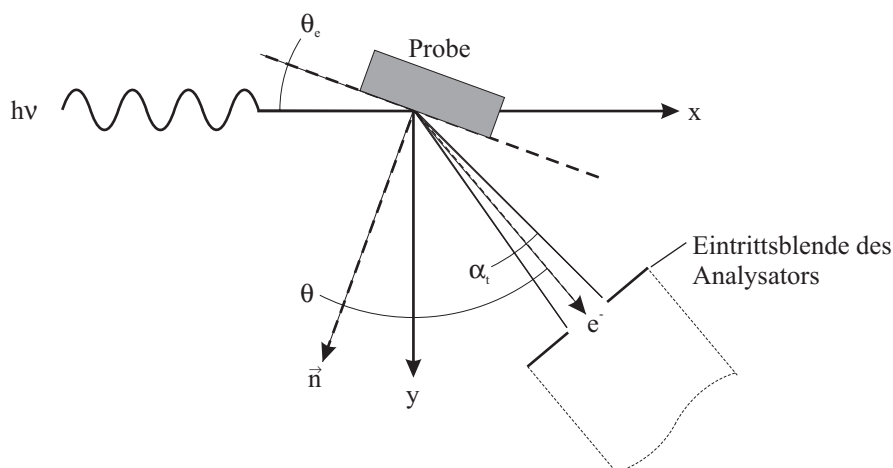


Abb. 2.1: Schematische Darstellung der Meßgeometrie.

dient als Einführung der für die Meßgeometrie relevanten Winkel θ_e (Einfallswinkel der Photonen), θ (Emissionswinkel der Elektronen) und $\alpha_t \equiv \Delta\theta$ (Akzeptanzwinkel des Analysators), sowie des Koordinatensystems (z -Achse senkrecht zur Zeichenebene). Hierauf wird im folgenden jeweils Bezug genommen.

2.1 Probenpräparation

Die Herstellung einkristalliner Proben mit auf atomarer Skala chemisch reinen Oberflächen gestaltet sich bei Lanthanidmetallen besonders schwierig. Sie sind zum einen sehr reaktiv [10, 11], so daß selbst im UHV Bestandteile des Restgases, wie Kohlenmonoxid und Wasserstoff, schnell die Oberfläche kontaminieren. Zum anderen tendieren Verunreinigungen wie Eisen dazu, aus dem Volumen an die Oberfläche zu diffundieren. Es ist daher nur unzureichend gelungen, die Oberflächen von Lanthanidmetall-Volumeneinkristallen im UHV so zu reinigen (z.B. durch Sputtern), daß die Oberfläche frei von Fremdatomen wie Kohlenstoff, Sauerstoff, Wasserstoff oder Eisen ist [73–75].

Reine Proben erhält man durch in situ Verdampfen des Lanthanidmetalls auf ein geeignetes einkristallines Substrat, auf das ein geordneter Lanthanidmetallfilm epitaktisch aufwächst [6, 7, 76]. Mit auf diese Weise hergestellten Proben wurden in dieser Arbeit sehr gute Ergebnisse erzielt. Kürzlich vorgenommene Röntgenbeugungsuntersuchungen haben sogar gezeigt, daß die Kristallinität dieser Filme an die von Volumeneinkristallen heranreicht [24]. Einige Resultate dieser Untersuchungen sind in Abschnitt 2.1.3 dargestellt.

2.1.1 Probenhalter

Als Substrat für die Präparation der Lanthanidmetallfilme wurde in dieser Arbeit ein Wolfram-Einkristall mit (110)-Oberfläche verwendet. Wolfram ist gegenüber Lanthanidmetallen sehr inert, es kommt zu keiner Legierungsbildung, und es entstehen keine intermetallischen Verbindungen [77]. Wolfram gehört zu den Elementen mit der höchsten Oberflächenenergie und die (110)-Oberfläche von bcc-Kristallen ist die am dichtesten gepackte. Beides begünstigt lagenweises (Frank-Van der Merwe-) Wachstum, zumindest in den ersten Monolagen (ML) [78]. Die Struktur der (110)-Oberfläche ähnelt einer leicht verzerrten hexagonalen Struktur, auf der die ersten Filmlagen pseudomorph aufwachsen. Relaxationen beim weiteren Filmwachstum sorgen jedoch dafür, daß zumindest die oberen Lagen der 50–100 Å dicken Filme, wie sie in dieser Arbeit untersucht wurden, im wesentlichen Volumenkristallstruktur annehmen. Alle Lanthanidmetalle wachsen auf diese Weise mit ihren dichtest gepackten Lagen auf, hcp-Gd und -Lu also mit (0001)-, fcc-Yb mit (111)- und bcc-Eu¹ mit (110)-Oberfläche. Der hohe Schmelzpunkt von Wolfram (3410 °C) ermöglicht es, die Filme durch kurzes Erhitzen auf ca. 2000 K zu desorbieren, ohne das Substrat zu beschädigen.

Der Wolframkristall ist in einen Probenhalter gefaßt, der über eine Drehdurchführung und einen x-y-z-Manipulator von oben in die UHV-Kammer eingeführt wird. Die (110)-Oberfläche liegt parallel zur z -Richtung des Manipulators, welche gleichzeitig die

¹Neuere Untersuchungen haben ergeben, daß Europium bis zu einer Dicke von 50 Å in hexagonalen Lagen auf W(110) aufwächst [79].

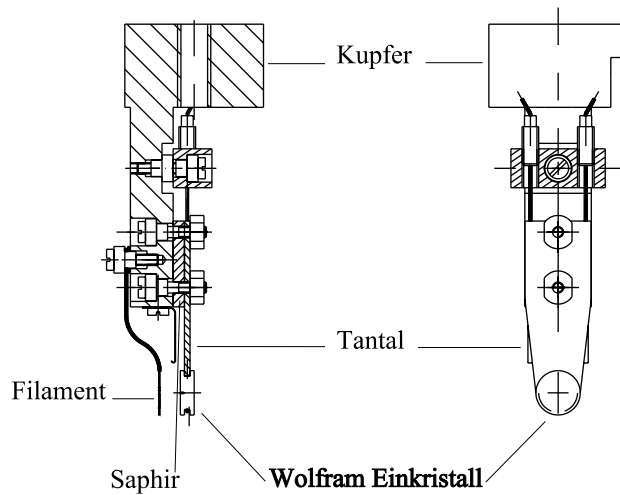


Abb. 2.2: Darstellung des in dieser Arbeit verwendeten Probenhalters.

z -Achse der Meßgeometrie definiert (siehe Abb. 2.1). Die Probe läßt sich somit in den drei Raumrichtungen bewegen und um die z -Achse drehen.

Um die thermische Verbreiterung der Photoemissionslinien zu verringern [3–5, 33], magnetische Phänomene beobachten zu können oder die Adsorptionseigenschaften der Probenoberfläche zu variieren, ist es notwendig, die Temperatur der Probe bis zu sehr tiefen Temperaturen hin variieren zu können. Die Kühlung der Probe erfolgt in dieser Arbeit mit einem Kryostaten mit geschlossenem Heliumkreislauf des Herstellers APD, der eine Probentemperatur von 50 K ermöglicht. An den Probenhalter wird also die Anforderung gestellt an der Probe den Temperaturbereich von 50–2000 K abzudecken und in diesem Bereich Temperaturmessung zu ermöglichen. Abb. 2.2 zeigt den unteren Teil des verwendeten Probenhalters, der über einen Kupferstab mit dem Kryostaten verschraubt ist. Er wurde entsprechend der genannten Anforderungen in der Arbeitsgruppe konstruiert und gebaut. Es wurden ausschließlich nichtmagnetische Materialien verwendet, um Magnetfelder am Probenort zu minimieren.

Der verwendete Wolfram-Einkristall ist seitlich mit einer Nut versehen, in die ein Rahmen aus 1 mm starkem Tantalblech faßt. Dieser ist über ein 2 mm dickes Saphirplättchen an den Kupferstab geschraubt, wobei die Schrauben mit Keramiken gegen das Kupfer elektrisch isoliert sind. Der Saphir dient zur elektrischen Isolation des Blechs gegen den Kupferstab und hat die Eigenschaft, bei tiefen Temperaturen ein sehr guter Wärmeleiter zu sein, was für einen nur kleinen Temperaturgradienten zwischen Probe und Kupferstab sorgt. Die bei sehr hohen Temperaturen (z. B. beim Reinigen des Kristalls) schlechte Wärmeleitfähigkeit des Saphirs ermöglicht es, die Probe zu heizen und den Kryostaten dabei möglichst wenig mit Wärme zu belasten.

Im unteren Temperaturbereich, bis maximal 400 K, wird die Probe durch Wärmestrahlung eines resistiv beheizten Glühfadens (Filament) erwärmt. Dieses Filament ist hinter der Probe angebracht und hat die Form einer bifilaren Spirale, um durch den Filamentstrom induzierte Magnetfelder zu minimieren. Durch das Heizen der Probe mit dieser Anordnung wird die Messung der Spektren nicht beeinflusst [4]. Zum Erreichen höherer Temperaturen wird die Probe mittels Elektronenstoß geheizt. Dazu werden

die vom Filament durch Glühemission erzeugten Elektronen durch eine Spannung von 350 V auf den Kristall beschleunigt. Die Temperatur wird mit einem Wolfram-Rhenium-Thermoelement ($W_{95}Re_5-W_{74}Re_{26}$, nicht dargestellt in Abb. 2.2) gemessen, das in eine Bohrung von oben direkt in den Kristall gesteckt wird.

Als wesentliche Kontamination der Wolfram-Oberfläche tritt Kohlenstoff auf, welcher aus dem Volumen an die Oberfläche segregiert. Dies ist besonders der Fall, wenn nach einem Belüften der Meßkammer diese wieder ausgeheizt und anschließend der Probenhalter durch vielfaches, kurzes Glühen ausgegast wurde. Der Kohlenstoff ist deutlich als Überstruktur im LEED²-Bild der W(110)-Oberfläche zu sehen. Durch Glühen des Kristalls in Sauerstoff, bei einem Druck von $5 \cdot 10^{-8}$ mbar und einer Temperatur von 1500 °C, reagiert der an die Oberfläche segregierende Kohlenstoff zu Kohlenmonoxid, welcher desorbiert [80, 81]. Es bildet sich hierdurch eine kohlenstoffarme Zone nahe der Oberfläche aus. Im Anschluß an das Sauerstoffglühen (Dauer typischerweise 5 min) wird die Probe einmalig durch kurzes Heizen auf 2000 K von entstandenen Wolframoxiden befreit [80]. Dieser Vorgang wird so oft wiederholt, bis im LEED keine Überstrukturen mehr sichtbar sind.

2.1.2 Verdampfer

Für das epitaktische Wachstum der in dieser Arbeit untersuchten Lanthanidmetallfilme wurde hochreines Lanthanidmetall (99,99 %, Reacton) aus Tantaliegeln verdampft. Abb. 2.3 zeigt eine schematische Darstellung der verwendeten Verdampfer, die in der Arbeitsgruppe konstruiert und gebaut worden sind. Der Tiegel aus 0,1 mm starkem Tantalblech kann genügend Dampf für Schichtdicken von 2 μm aufnehmen. Er ist umgeben von einem Filament, bestehend aus zwei Windungen 0,1 mm starkem Tantaldraht, welches dem Heizen des Tiegels dient. Ein doppeltes Wärmestrahlungsschild aus 0,1 mm starkem Tantalblech vermindert beim Betrieb des Verdampfers in der UHV-Kammer die Erwärmung der Kammerwände und damit einhergehende Desorption von Restgas. Diese drei Bestandteile des Verdampfers sind an fünf Wolframstäben durch Punktschweißen befestigt, die durch ein Stück Glas, das um sie herumgeschmolzen wird, mechanisch stabil auf definiertem Abstand gehalten und elektrisch voneinander isoliert werden. Die Verwendung spezieller Werkzeuge bei der Fertigung der Einzelteile und spezieller Zusammenbauhilfen ermöglichen den Bau von im Rahmen geringer Toleranzen identischen Verdampferinheiten.

Für den Einsatz der Verdampfer in der UHV-Kammer werden sie auf CF-Flansche mit elektrischen Durchführungen gesteckt, die zu diesem Zweck mit Metallhülsen versehen sind, die die Enden der fünf Wolframstäbe aufnehmen und die elektrische Verbindung mit den Durchführungen herstellen. Bis zu drei Verdampfer finden Platz auf einem CF40- und bis zu neun auf einem CF63-Flansch. Das Erhitzen des Tiegels erfolgt je nach zu verdampfendem Metall auf zwei unterschiedliche Weisen. Für die beiden zweiwertigen Lanthanidmetalle Europium und Ytterbium reicht es aus, den Tiegel über die Wärmestrahlung des resistiv zum Glühen gebrachten Filaments zu heizen. Beim Verdampfen der dreiwertigen Lanthanidmetalle sind höhere Temperaturen notwendig, die

²Als LEED (Low Energy Electron Diffraction) wird eine Strukturuntersuchungsmethode mittels Beugung niederenergetischer Elektronen bezeichnet.

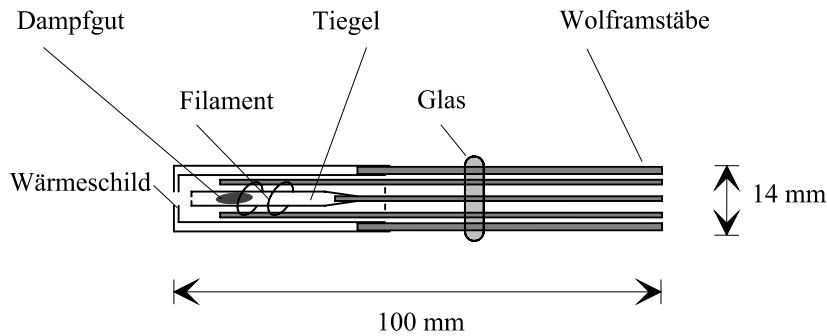


Abb. 2.3: Schematische Darstellung der in dieser Arbeit verwendeten Verdampfer.

durch Elektronenstoß erreicht werden. Hierzu werden die am Filament durch Glühemission erzeugten Elektronen durch eine Spannung von typischerweise 350 V auf den Tiegel beschleunigt. Jeder Verdampfer wird vor dem ersten Einsatz leer durch intensives Vakuumglühen gereinigt. Dabei werden sowohl der Tiegel, als auch das Strahlungsschild nacheinander durch Elektronenstoß längere Zeit zum Glühen gebracht.

Das hochreine Probenmaterial wird unter Argonatmosphäre gelagert. Die dreiwertigen Lanthanidmetalle Gadolinium und Lutetium werden einmalig einer Reinigungsprozedur unterzogen, die aus mehreren Zyklen von Aufschmelzen im Lichtbogenofen unter Argonatmosphäre und anschließendem Blankfeilen der Oberfläche besteht. Beim Aufschmelzen segregieren Verunreinigungen wie Kohlenstoff an die Oberfläche, wo sie durch das Feilen entfernt werden können. Dies wird so lange wiederholt, bis die Oberfläche nach erneutem Aufschmelzen sauber ist. Bei den zweiwertigen Lanthanidmetallen Europium und Ytterbium ist diese Prozedur nicht möglich, da ihr Dampfdruck so hoch ist, daß sie vor Erreichen des Schmelzpunkts verdampfen. Bevor das Probenmaterial in die Verdampfer gefüllt wird, wird es ein letztes Mal unter Argonatmosphäre blankgefeilt. Das Beladen der Verdampfer erfolgt kurz vor ihrem Einbau in die UHV-Kammer und deren Anpumpen, damit das reaktive Dampfgut nur so kurz wie möglich Atmosphärendruck ausgesetzt ist. Direkt nach Beendigung des Ausheizens der UHV-Kammer werden die Verdampfer in der noch heißen Kammer ausgegast, indem sie 5–10 min mit der jeweiligen Heizleistung zum Verdampfen des Probenmaterials betrieben werden.

Das Filmwachstum wird mit einem Schichtdickenmesser Inficon des Herstellers Leybold-Heraeus kontrolliert. Hierbei wird die Eigenfrequenz eines Schwingquarzes, der zusammen mit dem Wolframkristall bedampft wird, gemessen und aus deren Änderung die aktuelle Schichtdicke bestimmt. Typische Dampfraten betragen ungefähr $5 \text{ \AA}/\text{min}$. Die Kristallinität der Filme wird mittels LEED kontrolliert, ihre Sauberkeit mittels Photoemission bei $h\nu = 40 \text{ eV}$.

Der einfache und kompakte Aufbau der Verdampfer ermöglicht es, sie so gut auszugasten, daß sie im Betrieb das UHV nicht wesentlich verschlechtern³, wodurch im Rahmen der Meßempfindlichkeit kontaminationsfreie Lanthanidmetallfilme aufwachsen können. Sie bieten die Möglichkeit, eine Vielzahl von Materialien in einer Meßkammer unterzu-

³Z. B. läßt sich Lutetium, das Metall, das in dieser Arbeit mit der höchsten Heizleistung verdampft wurde, unter optimalen Bedingungen (Basisdruck $1 \cdot 10^{-11} \text{ mbar}$) bei einem Druck von $7 \cdot 10^{-11} \text{ mbar}$ verdampfen.

bringen, so daß zeitintensives Brechen des Vakuums beim eventuellen Wechsel zu anderen zu untersuchenden Proben während einer Meßzeit wegfällt. Der modulare Aufbau ermöglicht einen schnellen und unkomplizierten Wechsel des Probenmaterials. Die quasi serienmäßige Fertigung der Verdampfer ergibt nahezu identische Dampfcharakteristiken, und damit eine gut reproduzierbare Probenpräparation. Insgesamt hat sich der beschriebene Verdampfertyp in dieser Arbeit sehr gut bewährt.

2.1.3 Filmcharakterisierung mit Röntgenbeugung in situ

Mit dem vorangehend beschriebenen Verfahren ist es möglich, saubere, wohlgeordnete Filme sämtlicher Lanthanidmetalle zu präparieren. Im allgemeinen ist der Film nach dem Aufdampfen noch relativ rau und muß durch Tempern geglättet werden. Zur Charakterisierung der Kristallinität direkt nach dem Aufdampfen oder nach dem Tempern steht ein LEED-System in den verwendeten PE-Meßkammern zur Verfügung. Desweiteren liefert die Photoemission Hinweise auf die Filmqualität (kleine Oberflächenrumpfniveausverschiebung und geringe Breite der 4f-Oberflächenemission, hohe Intensität des Oberflächenzustands zeigen hohe Filmqualität an; siehe Abb. 3.1). Es hat sich gezeigt, daß für jedes Lanthanidmetall Wachstumsbedingungen (Substrattemperatur und Dampfrate) und Temperparameter (Temperatur und Dauer) gefunden wurden, die Filme vergleichbar hoher Qualität ergeben. Ein quantitativer Vergleich mit Volumeneinkristallen stand bislang noch aus.

Im Rahmen kürzlich durchgeführter Röntgenbeugungsuntersuchungen an in situ präparierten Ho-Filmen, bei denen die Frage im Vordergrund stand, ob sich die interessanten magnetischen Eigenschaften von Ho-Volumeneinkristallen auch in dünnen Filmen wiederfinden, wurde beispielhaft eine quantitative Charakterisierung vorgenommen. Röntgenreflektivitätsmessungen an der Filmoberfläche während des Wachstums und des Temperns bieten die Möglichkeit, diese beiden Präparationsschritte zu kontrollieren, und nicht nur erst das Endergebnis zu betrachten. Eine Optimierung der Filmpräparation sollte damit möglich sein.

Reflektivitätsmessungen sind eine übliche Methode zur Untersuchung des Filmwachstums. Form und Periode von Oszillationen in der Reflektivität der Probenoberfläche als Funktion der Filmdicke während des Wachstums liefern Information über den Wachstumsmodus und den Einfluß verschiedener Wachstumsbedingungen. In den meisten Fällen werden bei solchen Untersuchungen hochenergetische Elektronen (RHEED, Reflective High-Energy Electron Diffraction) verwendet [82], aber auch thermische He-Atome [83] und Röntgenstrahlung [84].

Die quantitative Beschreibung von RHEED-Oszillationen ist kompliziert, weil auf Grund der starken Wechselwirkung von Elektronen mit Atomen Vielfachstreuung eine wichtige Rolle spielt [83, 85]. Der Fall der Röntgenbeugung gestaltet sich wesentlich einfacher, da hier oft eine kinematische Beschreibung ausreicht [84]. Mit dem Bau immer leistungsfähigerer Synchrotron-Röntgenstrahlungsquellen wird daher auch immer öfter Röntgenbeugung für Wachstumsstudien verwendet [84, 86–91].

In der Homoepitaxie sind die Wachstumsoszillationen am ausgeprägtesten in einer Meßgeometrie, in der der von der gerade wachsenden Lage gestreute Strahl destruktiv mit dem vom Substrat gestreuten Strahl interferiert (Antiphasenbedingung), wobei die Oszillationsperiode mit dem Wachstum einer Monolage korrespondiert [84]. In der Hetero-

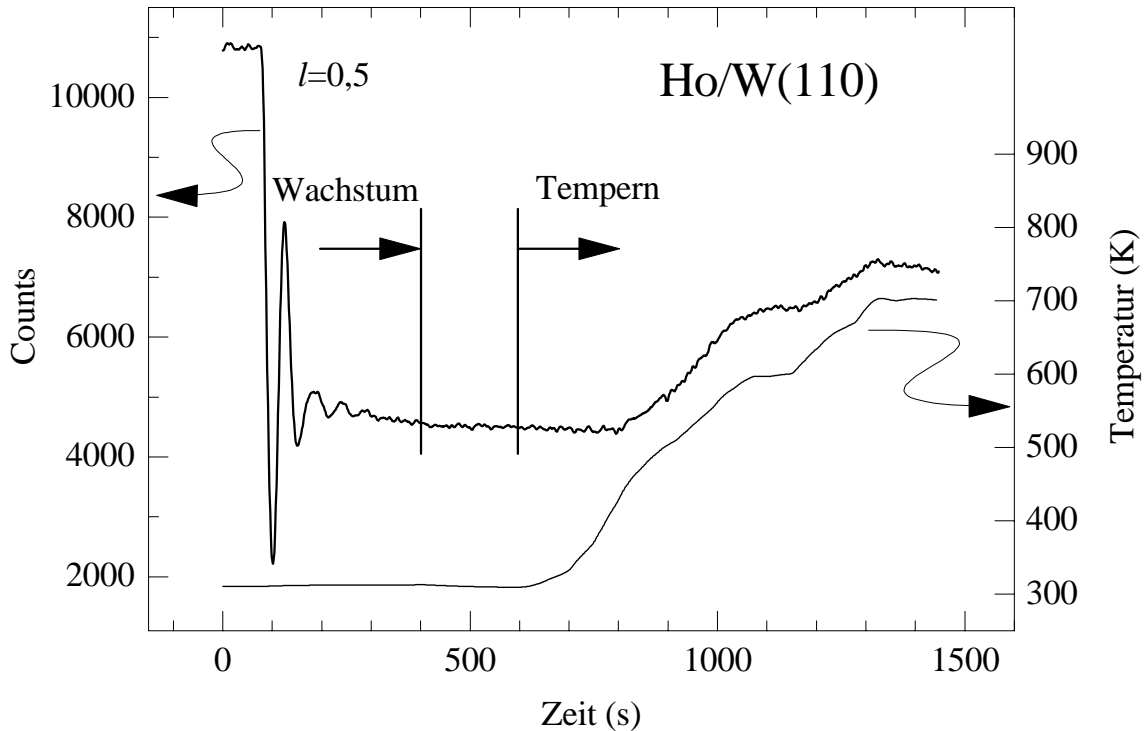


Abb. 2.4: Spekulare Röntgenreflektivität während der Präparation eines 26-ML-Films Ho/W(110), gemessen mit einem Streuvektor $q = lc^*$, $l = 0,5$.

epitaxie erwiesen sich die Wachstumsoszillationen bisher mit wenigen Ausnahmen [91] schon nach dem Wachstum weniger Monolagen als stark gedämpft [89, 90]. In der hier vorgestellten Untersuchung des heteroepitaktischen Systems Ho/W(110) wurden ausgeprägte Wachstumsoszillationen während des Wachstums vieler Monolagen gefunden und eine systematische Untersuchung des Oszillationsverhalten in Abhängigkeit vom Streuvektor vorgenommen. Betrachtet wurde die Abhängigkeit vom Streuvektor senkrecht zur (001)-Oberfläche des hcp-Ho, $q = lc^*$, mit $c^* = 2\pi/c$ als reziprotem Gitterparameter, wobei c dem doppelten Abstand dichtgepackter Lagen entspricht. Dabei wurde erstmals festgestellt, daß l Wachstumsoszillationen dem Wachstum einer Ho-Doppellage entsprechen [24], im Gegensatz zum Fall der Homoepitaxie, wo eine Oszillation unabhängig vom Streuvektor immer einer Monolage entspricht. Diese q -Abhängigkeit muß bei der Interpretation der Wachstumsoszillationen berücksichtigt werden.

Die Röntgenbeugungsuntersuchungen wurden an der Europäischen Synchrotronstrahlungsquelle (ESRF, Grenoble) am Strahlrohr ID10A (Troika) [92] mit 13,03-keV- und 8,07-keV-Röntgenstrahlung durchgeführt, monochromatisiert mit einem Mosaik-Be(002)-Kristall in Laue-Geometrie. Die Ho-Filmpräparation erfolgte in situ in einer kleinen UHV-Kammer, die direkt auf das Diffraktometer montiert wurde, unter Verwendung von Probenhalter und Verdampfer, wie in den vorangegangenen Abschnitten beschrieben. Während des Wachstums, bei dem die Substrattemperatur 300 K betrug, und während des Temperns wurde der zeitliche Verlauf der Röntgenreflektivität der Oberfläche in spekulärer Geometrie (Einfallswinkel gleich Ausfallswinkel) gemessen. Auf diese Weise kann die

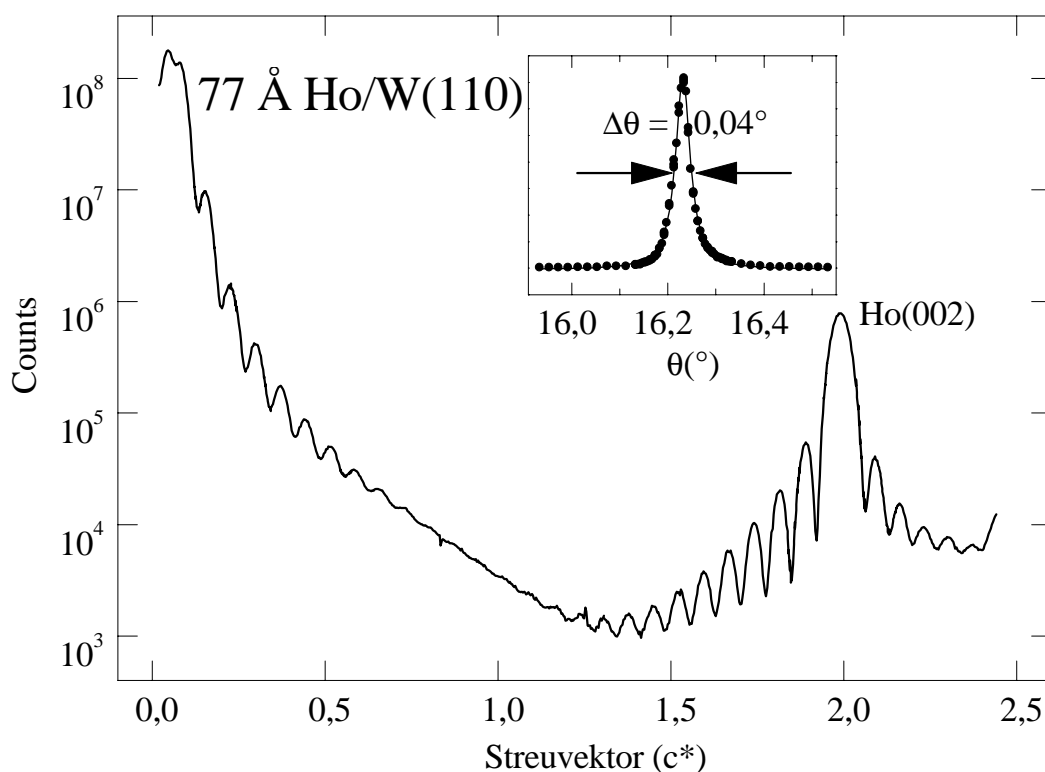


Abb. 2.5: Spekulare Röntgenreflektivität eines 77 Å (27 Monolagen) dicken Films Ho/W(110) entlang Ho(00 l).

gesamte Filmpräparation beobachtet werden, beispielhaft dargestellt in Abb. 2.4 für die Präparation eines 26 ML dicken Films und Reflektivitätsmessung mit $l = 0,5$.

In Abb. 2.4 zeigt sich, ausgehend von der zunächst sehr hohen Reflektivität des sauberen W-Kristalls, nach dem Öffnen des Verdampfer-Shutters ein starker Abfall der Intensität, gefolgt von gedämpften Wachstumsoszillationen. Nach Erreichen der endgültigen Filmstärke von $\approx 26 \text{ ML} \hat{=} 6,5$ Oszillationen, ist die Reflektivität stark verringert, was auf eine relativ raue Oberfläche schließen läßt. Durch das anschließende Tempern läßt sich der Film jedoch glätten, wie die deutliche Zunahme der Reflektivität mit zunehmender Proben temperatur zeigt. Bei einer Temperatur von $\approx 700 \text{ K}$ nimmt die Reflektivität langsam wieder ab. Diese Verschlechterung der Filmqualität ist höchstwahrscheinlich darauf zurückzuführen, daß der Film anfängt aufzureißen und Inseln zu bilden. Dieses Verhalten wurde auch schon für Gd/W(110) bei ungefähr gleicher Filmstärke und Temperatur beobachtet [93, 94]. Mit der in Abb. 2.4 verdeutlichten Methode ist es nun sehr einfach, die optimale Präparationsprozedur zu finden.

Die Kristallinität der auf diese Weise präparierten Filme ist von sehr hoher Qualität, wie sich aus der in Abb. 2.5 auf einer logarithmischen Skala dargestellten spekularen Röntgenreflektivität als Funktion des Streuvektors entlang Ho(00 l) ablesen läßt. Auf Grund der homogenen Dicke des Films, zeigen sich für kleine Streuvektoren ($l \leq 1,0$) Oszillationen, die durch die Interferenz von Röntgenstrahlen, reflektiert an der Ho-Oberfläche und der Ho/W-Grenzfläche, hervorgerufen werden [95] und eine sehr ak-

kurate Filmdickenbestimmung zulassen. Information über die kristalline Qualität liefern die Oszillationen, die auf Grund der endlichen Zahl der Streuer um den bei $l = 2,0$ liegenden $\text{Ho}(002)$ -Braggreflex herum zu beobachten sind. Die Periodizität dieser sogenannten Laue-Oszillationen ist im Gegensatz zu den ersteren durch die Zahl der kohärent streuenden Lagen bestimmt [96]. Im vorliegenden Fall stimmen die Filmdicke und die Kohärenzlänge (27 Monolagen) im Rahmen des experimentellen Fehlers von weniger als einer Monolage überein, woraus zu schließen ist, daß die Filme Lagenkohärenz über ihre gesamte Dicke hinweg aufweisen. Information über die Kohärenz innerhalb der einzelnen Lage liefert die sogenannte Rocking-Kurve (Reflektivität in Abhängigkeit vom Probenwinkel θ , bei festem Winkel zwischen Röntgenstrahl und Detektor), für $l = 2,0$ dargestellt im kleinen Teilbild von Abb. 2.5. Die Breite dieser Kurve (Mosaikbreite) beträgt $\approx 0,04^\circ$, was vergleichbar ist mit Volumeneinkristallen bester Qualität ($\Delta\theta = 0,01^\circ$ [97]).

Zusammenfassend ergaben diese Untersuchungen, mit denen sich eine neue Methode in der Arbeitsgruppe, in der die vorliegende Arbeit durchgeführt wurde, etabliert hat, daß die Qualität der wie vorangehend beschrieben präparierten Filme an die von Volumeneinkristallen heranreicht. Dies scheint allgemein für sämtliche Lanthanidmetalle zuzutreffen, da ähnliche Resultate auch für Dysprosium und Ytterbium erzielt wurden. Desweiteren ist, wie eingangs schon erwähnt, für sämtliche Lanthanidmetalle die Präparation von Filmen ähnlich hoher Qualität möglich, soweit sich das mit den oberflächenempfindlichen Methoden LEED und PE bestimmen läßt. Es sei noch einmal betont, daß für die im folgenden präsentierten PE-Untersuchungen derselbe W-Kristall und identische Verdampfer verwendet wurden, die eine hohe Reproduzierbarkeit der Filmpräparation erlauben, so daß von Filmen ähnlich hoher Qualität auch bei diesen Experimenten ausgegangen werden kann.

2.1.4 Sauberkeit der Oberflächen

Die Sauberkeit der untersuchten Oberflächen wurde mittels oberflächenempfindlicher Photoemission bei $h\nu = 40$ eV kontrolliert. Bei dieser Photonenenergie sind die Wirkungsquerschnitte für Photoemission aus den 2p-Orbitalen von Sauerstoff und Kohlenstoff sehr hoch, welche bei einem kontaminierten Film zu erwarten sind, da im Restgas neben Wasserstoff Kohlenmonoxid der häufigste Bestandteil ist, zudem mit einem in der Regel sehr hohen Haftkoeffizienten. Die in Abb. 2.6 dargestellten Spektren wurden an typischen etwa 70 Å dicken Filmen gemessen. Für die beiden zweiwertigen Metalle Europium und Ytterbium ergibt das bei einer Substrattemperatur von ≈ 300 K direkt saubere, einkristalline Filme. Die Filme der dreiwertigen Metalle Gadolinium und Lutetium müssen nach dem Aufdampfen noch durch kurzzeitiges Tempern der Probe bei ≈ 700 K bzw. ≈ 900 K geätzt werden.

Bei einem Basisdruck in der UHV-Kammer von in der Regel weniger als 10^{-10} mbar stieg der Druck während des Verdampfens der beiden dreiwertigen Metalle nur unwesentlich auf maximal $2 \cdot 10^{-10}$ mbar an. Im Fall der beiden zweiwertigen Metalle wurde dagegen ein Druckanstieg auf mehr als $1 \cdot 10^{-9}$ mbar beobachtet. Dieser Druckanstieg wird im wesentlichen durch Wasserstoff (H_2), der offensichtlich im Probenmaterial eingelagert ist und beim Verdampfen freigesetzt wird, hervorgerufen, wie eine Restgasanalyse mittels Massenspektrometer zeigt. Ein solches Verhalten wurde für Ytterbium in der Vergangenheit schon beobachtet und der Einfluß auf die Filmpräparation untersucht [98].

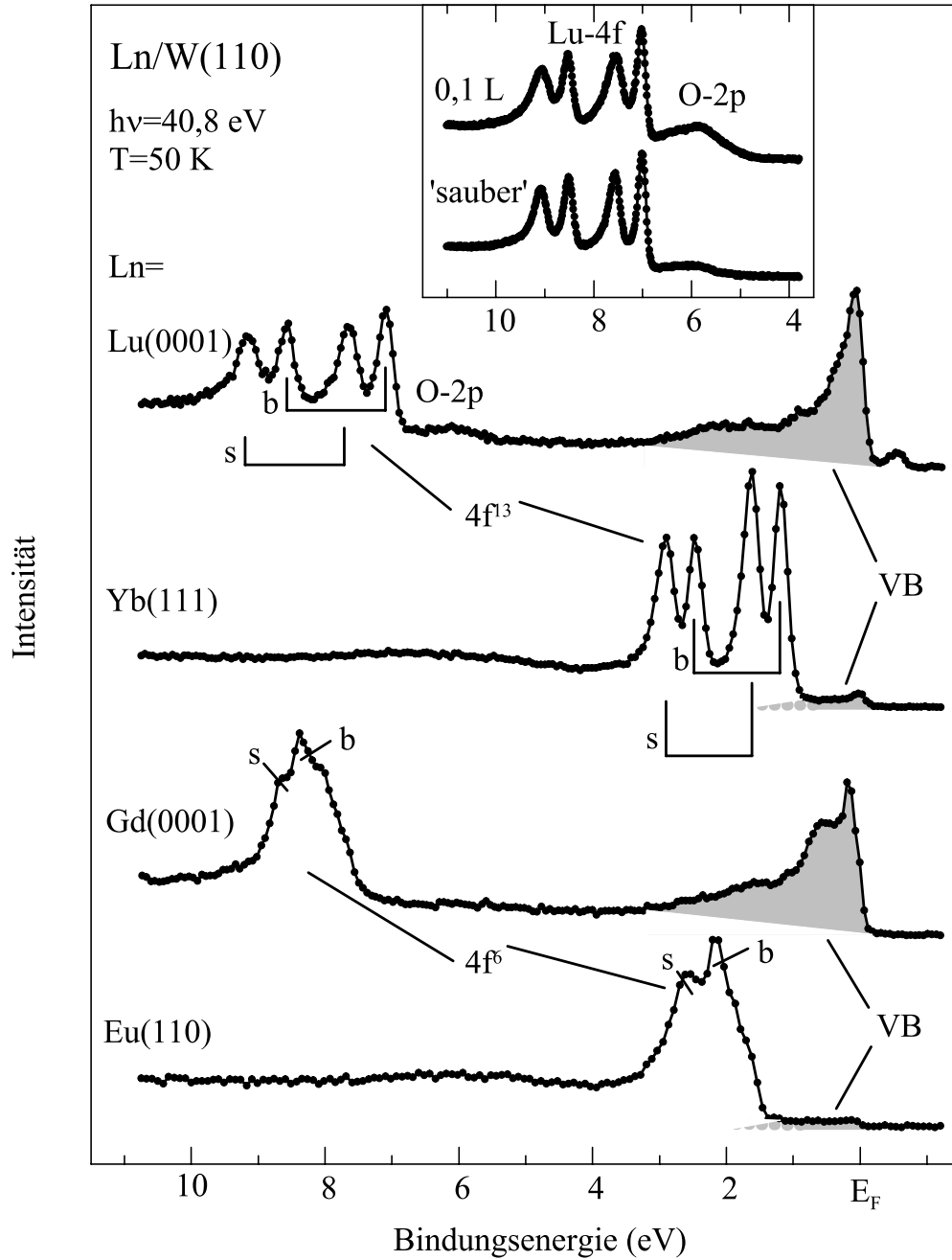


Abb. 2.6: Oberflächenempfindliche Photoemission bei $h\nu = 40,8$ eV zur Kontrolle der Sauberkeit der Oberflächen von Ln-Filmen (Ln = Eu, Gd, Yb, Lu).

Dabei ergab sich ein relativ niedriger Haftkoeffizient⁴ von 0,2 auf polykristallinem Ytterbium. Bei in der vorliegenden Arbeit typischen Aufdampfzeiten von 15 min ergibt sich eine H₂-Dosis von 0,9 L⁵, verteilt auf ungefähr 25 Monolagen Ytterbium. Da der Haftkoeffizient auf einkristallinen Oberflächen in der Regel niedriger ist als auf polykristallinen [99–102], läßt sich hier eine Verunreinigung der Probe von weniger als 0,7 % einer Monolage abschätzen. In der erwähnten Arbeit [98] wurde auch nach einer tausendfach höheren H₂-Dosis von 900 L keine Veränderung im PE-Spektrum festgestellt und daraus gefolgert, daß sich der Wasserstoff nur tief im Volumen einbaut. Ein Einfluß des Wasserstoffs auf die hier vorgenommenen Untersuchungen kann daher sowohl für Ytterbium, als auch für das chemisch sehr ähnliche Europium vernachlässigt werden.

Das Tempern der beiden dreiwertigen Metalle war jeweils ebenfalls mit einem kurzen Druckanstieg in der UHV-Kammer verbunden. Da dieser Druckstoß von der unmittelbaren Umgebung der Probe ausgeht, ist die Gefahr, hierbei die Probenoberfläche zu kontaminieren, sehr groß. Das gilt vor allem für Lutetium, das mit der höchsten Temperatur getempert werden muß. Während daher die Präparation sauberer Oberflächen von Eu, Gd und Yb routinemäßig gelang, war es bei Lutetium schwierig zu verhindern, daß die Oberfläche direkt nach der Präparation mit einer kleinen Menge Sauerstoff belegt war, so daß im 40-eV-Spektrum neben der Emission des Metalls auch O-2p-Emission zu sehen war.

Die in Abb. 2.6 dargestellten Spektren zeigen jeweils direkt an der Fermi-Kante die Valenzbandemissionen (VB, grau) und bei 1–3 eV (Eu, Yb) bzw. 7–9 eV (Gd, Lu) die 4f-Multipletts der vier Lanthanidmetalle.⁶ Die sehr breite Emission bei 4–8 eV in den Spektren von Eu und Yb ist auf Plasmonenverluste zurückzuführen. Während die Spektren von Eu, Gd und Yb keine weitere Emission zeigen, ist im Lu-Spektrum ein geringer Anteil an O-2p-Emission bei einer Bindungsenergie von ≈ 6 eV zu sehen. Um abschätzen zu können, wie groß der kontaminierte Oberflächenanteil ist und welchen Effekt er auf die elektronische Struktur ausübt, wurde im kleinen Teilbild von Abb. 2.6 das Spektrum desselben Films nach einer O₂-Dosis (siehe Abschnitt 2.1.5) von 0,1 L dem Spektrum des „sauberen“ Films zum Vergleich gegenübergestellt. Mit 0,1 L Sauerstoff kann die Oberfläche maximal (vorausgesetzt der Haftkoeffizient beträgt 1) um weitere 10 % bedeckt worden sein. Da die integrierte O-2p-Intensität, die ein Maß für die adsorbierte Sauerstoffmenge darstellt, sich ungefähr verdreifacht, kann von einem kontaminierten Anteil der Oberfläche des „sauberen“ Films von weniger als 5 % ausgegangen werden. Im 4f-Spektrum des 0,1-L-Films zeigt sich lediglich eine leichte Verbreiterung

⁴Der Haftkoeffizient gibt die Wahrscheinlichkeit an, mit der eine auf eine Oberfläche treffende Gasphasenspezies dort haften bleibt (siehe auch Abschnitt 4.1).

⁵1 L = 1 Langmuir = $1 \cdot 10^{-6}$ Torr \times 1 s entspricht bei einem Haftkoeffizienten von 1 einer adsorbierten Monolage (siehe auch Abschnitt 4.1).

⁶Da die Spektren winkelintegrierend (mit der WESPE, siehe Abschnitt 2.3.1) gemessen wurden, wurden keine einzelnen Valenzbandemissionen aufgelöst. Desweiteren wurde hier zur Anregung Licht einer nicht monochromatisierten He-Quelle verwendet, was zur Folge hat, daß die 4f-Emission der dreiwertigen Metalle angeregt durch 48-eV-Photonen (He II β) nocheinmal bei E_F auftaucht (siehe Abschnitt 2.2.1). So ist die Emission, die im Lu-Spektrum oberhalb von E_F zu sehen ist, die 4f_{7/2}-Volumenkomponente (b) des 48-eV-Spektrums, und VB ist im Gd- und Lu-Spektrum eine Überlagerung von Valenzband- (40,8 eV) und 4f-Emission (48,0 eV). In Abschnitt 3.1 wird die elektronische Struktur dieser vier Metalle detaillierter anhand von winkelaufgelösten Spektren, die nicht diese Komplikationen aufweisen, vorgestellt.

der Oberflächenkomponente. Unter der Annahme, daß der Einfluß einer Kontamination von weniger als 5 % der Oberfläche auf die elektronische Struktur eines perfekt sauberen Films ähnlich gering ist, spiegelt das 4f-Spektrum des „sauberen“ Films im wesentlichen die elektronische Struktur einer sauberen Oberfläche wider.

2.1.5 Sauerstoffdosierung

Als Sauerstoffdosis wird hier die Menge Sauerstoff bezeichnet, die der Probenoberfläche angeboten wird. Als Maß für die Sauerstoffdosis dient das Langmuir (L), mit $1 \text{ L} = 1 \cdot 10^{-6} \text{ Torr} \times 1 \text{ s}$, was eine sinnvolle Einheit darstellt, da 1 L bei einem Haftkoeffizienten von 1 einer adsorbierten Monolage entspricht (siehe auch Abschnitt 4.1). Entsprechend dem Haftkoeffizienten des Probenmaterials bleibt ein Teil der dosierten Sauerstoffmenge auf der Oberfläche haften. Auf Grund der bekanntermaßen hohen Reaktivität von Lanthanidmetallen mit Sauerstoff [10,11], ist der Haftkoeffizient in diesem Fall sehr hoch, so daß eine relativ geringe Sauerstoffdosis ausreicht, die gesamte Oberfläche zu bedecken. Auch das Durchoxidieren des Metallfilms bis zur Austrittstiefe der Photoelektronen, und damit bis zu der für ein PE-Experiment relevanten Informationstiefe, bedarf keines großen Aufwands. Das erlaubt es, die Sauerstoffdosierung auf denkbar einfache Weise zu realisieren, nämlich indem der Sauerstoffpartialdruck in der gesamten UHV-Kammer erhöht wird.

Verwendet wurde hochreiner (99,998 %) Sauerstoff (O_2) in Standard-Labordruckdosen ($1 \text{ l} \times 12 \text{ bar}$, Messer), der über ein Dosierventil des Herstellers Varian in die UHV-Kammer gelassen wurde. Dosierventile dieser Art erlauben es, einen im Rahmen der Meßempfindlichkeit der Ionisationsmeßröhren konstanten Druck einzustellen. Für die Sauerstoffdosierung in dieser Arbeit wurden je nach der Sauerstoffmenge, die in einem Schritt dosiert werden sollte, Drücke von $5 \cdot 10^{-9}$ bis $1 \cdot 10^{-6}$ mbar für 10–300 s eingestellt. Die dabei anfallende Sauerstoffmenge kann von den verwendeten Pumpen nach Beendigung des jeweiligen Dosierungsschritts in hinreichend kurzer Zeit wieder abgepumpt werden. Die verwendeten Drücke liegen mindestens zwei Zehnerpotenzen über dem Basisdruck, sodaß der Restgaspartialdruck vernachlässigbar ist, und die Dosierdauern lang genug sind, um gute Reproduzierbarkeit zu gewährleisten.

2.2 Lichtquellen

In dieser Arbeit kamen zwei prinzipiell unterschiedliche Lichtquellen zum Einsatz. Messungen im Labor wurden mit einer Heliumgasentladungslampe durchgeführt. Der Großteil der Messungen fand jedoch am Berliner Elektronenspeicherring für Synchrotronstrahlung (BESSY) statt. Im folgenden werden die prinzipiellen Funktionsweisen, die Gemeinsamkeiten und Unterschiede, die Vor- und Nachteile dieser beiden Lichtquellen dargelegt.

2.2.1 Heliumlampe

Verwendet wurde eine Heliumlampe des Herstellers Vacuum Generators. Das Gasentladungsvolumen, in welches über ein Dosierventil und eine Kapillare das Helium mit dem

notwendigen Druck ($< 0,1$ mbar) eingelassen wird, befindet sich fensterlos in Verbindung zum UHV. Zum Zünden der Gasentladung wird eine Spannung von 3 kV benötigt, während die Lampe im Betrieb mit einer Spannung von 600–670 V bei einem Strom von 60 mA läuft. Die Gasentladung emittiert vor allem Licht der Energien 21,2 eV (He I) und 40,8 eV (He II α), wobei das Intensitätsverhältnis vom Heliumdruck im Gasentladungsvolumen abhängt. Je niedriger der Heliumdruck, desto höher die Betriebsspannung und desto höher der He II α -Intensitätsanteil (max. He II α : He I $\approx 1:2$). Aus Stabilitätsgründen wurde die Lampe jedoch maximal mit 640 V betrieben. Zu einem geringen, aber nicht zu vernachlässigenden Teil werden auch noch Photonen der Energie 48,0 eV (He II β) emittiert.

Das Licht wird durch eine Glaskapillare zur Probe geleitet, durch welche auch das Helium strömt. Um den Heliumpartialdruck in der Meßkammer so niedrig wie möglich zu halten, wird die Kapillare in zwei Stufen differentiell gepumpt. Die erste Pumpstufe ist eine Drehschieberpumpe (16 m³/h, Leybold-Heraeus) mit zwischen geschalteter Kühlfalle, die zweite wird durch eine Turbomolekularpumpe (50 l/s, Varian) realisiert. Bei einem Basisdruck von $1 \cdot 10^{-11}$ mbar steigt der Druck bei dieser Anordnung auf $7 \cdot 10^{-11}$ mbar.

Diese Lichtquelle bietet die Möglichkeit, mit relativ geringem Aufwand jederzeit im Labor Messungen durchzuführen. Sie liefert mit konstanter und hoher Intensität Photonen der genannten Energien, die ohne Monochromatisierung eine Energiebandbreite von wenigen meV haben. Von Nachteil ist, daß man auf diese Photonenenergien beschränkt ist, daß der Heliumstrom, der direkt auf die Probe trifft, dort die Kontamination mit Kohlenmonoxid, das er mitführt, beschleunigt und daß man ohne Monochromatisierung prinzipiell eine Überlagerung der von den drei Photonenenergien erzeugten Photoemissionsspektren erhält. Der letztgenannte Aspekt führt z. B. bei Lu und Gd dazu, daß die 4f-Emission des 48,0-eV-Spektrums genau bei der Fermi-Kante des 40,8-eV-Spektrums liegt (siehe Abb. 2.6).

2.2.2 Synchrotronstrahlung

Im Elektronenspeicherring von BESSY werden Elektronen der Energie 800 MeV durch Dipolmagneten, sogenannte Biegemagneten, auf eine Kreisbahn gebracht. Als beschleunigte Ladungen strahlen sie elektromagnetische Wellen ab, die Synchrotronstrahlung. Da es sich um Elektronen mit annähernd Lichtgeschwindigkeit, also relativistische Elektronen, handelt, erfolgt die Abstrahlung nicht mit Dipolcharakteristik, sondern in Bewegungsrichtung der Elektronen [103]. Jedes einzelne Elektron liefert tangential an jedem Punkt seiner Kreisbahn bei jeder Umrundung des Rings einen ultrakurzen Lichtblitz. Auf Grund dieses deltafunktionsartigen zeitlichen Verhaltens hat Synchrotronstrahlung ein kontinuierliches Spektrum über einen weiten Energiebereich, im Falle von BESSY von Infrarot bis Röntgenstrahlung von ca. 5 keV. Desweiteren zeichnet sich Synchrotronstrahlung durch hohe Brillianz, d. h. Photonenstrom pro Energieintervall, Raumwinkel und Fläche und durch niedrige Winkeldivergenz senkrecht zur Ringebene aus. In der Ringebene ist Synchrotronstrahlung linear polarisiert. Über Strahlrohre wird das Synchrotronlicht zum Experiment geleitet. Da sowohl der Speicherring, als auch die Strahlrohre unter UHV stehen, steht hiermit eine saubere, UHV-taugliche Lichtquelle zur Verfügung.

In den hier vorgestellten Experimenten wird nicht weißes, sondern Licht einer be-

Mono-chromator	Quelle	Gitter (Striche/mm)	Energiebereich (eV)	Auflösung $E/\Delta E$
TGM 1	Dipol	950	18–125	390
TGM 3	Dipol	600	30–80	400
TGM 5	Undulator	800 1100	15–60 50–190	900–400 1225–390
SX700/II	Dipol	1200	18–2000	10000

Tab. 2.1: Eigenschaften der in dieser Arbeit verwendeten Monochromatoren [104]. Für die Auflösung sind hier lediglich Richtwerte angegeben, da sie im allgemeinen energieabhängig ist und von Parametern, wie Spalteinstellungen, beeinflusst wird.

stimmten Photonenenergie benötigt. Zu diesem Zweck sind in die Strahlrohre jeweils Monochromatoren eingebaut, die sich bezüglich Energiebereich, Photonenfluß und Energieauflösung unterscheiden. Für Licht im Ultraviolettbereich werden Reflexionsgitter als dispersive Elemente verwendet. Die Messungen dieser Arbeit wurden an den Toroidgitter-Monochromatoren TGM 1, TGM 3 und TGM 5, sowie am von der Freien Universität Berlin betriebenen Plangitter-Monochromator SX 700/II durchgeführt. Letzterer ist für höchste Auflösung und hohen Fluß über einen weiten Energiebereich ausgelegt. Der TGM 5 bekommt im Gegensatz zu den anderen Monochromatoren sein Licht nicht von einem Biegemagneten, sondern von einem Undulator. Ein Undulator ist eine periodische Anordnung von Permanentmagneten, die die Elektronen auf eine nahezu sinusförmige Bahn zwingen. Interferenz der Strahlung, die von den einzelnen Umlenkpunkten ausgeht, liefert eine spektrale Verteilung des Undulator-Lichts mit diskreten Maxima, deren Intensität um Größenordnungen höher ist als bei Dipolmagneten.

In Tabelle 2.1 sind noch einmal in einem Überblick die relevanten Eigenschaften der verwendeten Monochromatoren zusammengestellt.

2.3 Elektronenenergieanalysatoren

Die in dieser Arbeit gemessenen Photoemissionsspektren wurden mit zwei unterschiedlichen Elektronenenergieanalysatoren aufgenommen. Zum einen mit einem winkelintegrierenden Analysator EA11/100 des Herstellers Leybold-Heraeus, den relativ hohe Energieauflösung bei guter Transmission auszeichnet, zum anderen mit einem HA50 des Herstellers VSW, den hohe Winkelauflösung auszeichnet. Diese Analysatoren stellen jeweils eine Einheit mit einer UHV-Kammer dar, weshalb sie im folgenden jeweils in einem Unterkapitel zur jeweiligen Kammer vorgestellt werden. Vorher wird jedoch kurz allgemein auf die Funktionsweise von Elektronenanalysatoren eingegangen.

Beide verwendeten Spektrometer sind Halbkugelanalysatoren, deren wesentlicher Teil ein sphärischer Kondensator ist. Beide Hemisphären liegen auf einem Potential V_1 bzw. V_2 symmetrisch zum mittleren Potential V_a in der Mitte zwischen den Hemisphären (siehe Abb. 2.7). Auf diesem Potential liegt gerade die Sollbahn für Elektronen mit der kinetischen Energie $E_{\text{kin}} = E_a$, der sogenannten Passierenergie. Elektronen höherer bzw.

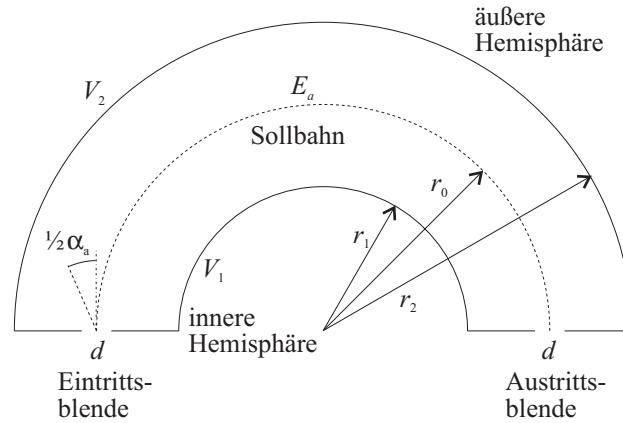


Abb. 2.7: Schematische Darstellung eines Halbkugelanalysators

niedrigerer kinetischer Energie weichen auf Bahnen mit größerem bzw. kleinerem Radius aus und werden bei zu großer Abweichung an der Austrittsöffnung des Analysators ausgeblendet. Es können also nur Elektronen mit kinetischer Energie in einem Bereich ΔE um die Passierenergie den Analysator passieren. Das Energieauflösungsvermögen ΔE ist proportional zur Passierenergie, wobei im Proportionalitätsfaktor der Sollbahnradius r_0 , der Aperturwinkel der eintretenden Elektronen α_a und der Blendendurchmesser d stehen [105]:

$$\Delta E = E_a \left(0,43 \frac{d}{r_0} + 0,25 \alpha_a^2 \right). \quad (2.1)$$

Um Elektronen einer beliebigen kinetischen Energie den Analysator passieren zu lassen, wird dieser gegenüber der geerdeten Probe auf ein Retardierpotential gelegt, so daß sie um die Retardierenergie $E_{\text{Ret}} = E_{\text{kin}} - E_a$ auf die Passierenergie abgebremst bzw. beschleunigt werden. Bei der Aufnahme eines Spektrums wird bei fester Passierenergie die Retardierenergie im interessierenden Bereich in äquidistanten Schritten durchfahren, und jeweils für eine bestimmte Zeit (typischerweise 0,2 oder 0,5 s) mit einem hinter der Austrittsblende befindlichen Detektor die Zahl der Elektronen mit entsprechender kinetischer Energie ermittelt. Die Steuerung der Retardierspannung und das Zählen der durch die Elektronen im Detektor ausgelösten Spannungsimpulse erfolgt mit einem Meßrechner.

2.3.1 WESPE – Hohe Energieauflösung

Der Name WESPE rührt von der charakteristischen Form dieser UHV-Kammer her, die aus zwei übereinander angeordneten, zylindrischen Teilkammern aus Edelstahl besteht, verbunden durch ein Rohr, die ‘Wespentaille’.

Im oberen Teil, der Präparationskammer, befinden sich die Verdampfer, der Schichtdickenmesser, das Sauerstoff-Dosiersystem, ein Quadrupol-Massenspektrometer und das LEED-System. Hier werden die epitaktischen Filme präpariert, ihre Kristallinität mittels LEED überprüft und die Sauerstoffdosierung vorgenommen. Das Massenspektrometer

dient der Restgasanalyse des UHV, auch während des Verdampfens des Probenmaterials und der Sauerstoffdosierung.

Die Probe kann mit dem x-y-z-Manipulator durch das Verbindungsrohr von der Präparationskammer in die darunter befindliche Meßkammer transferiert werden. Hier befindet sich neben dem Analysator der Flansch zum Anschluß der Kammer an die Strahlrohre bei BESSY oder, bei Messungen im Labor, die Heliumlampe. Des weiteren ist in die Meßkammer noch ein Channeltron eingebaut, mit dem die totale Elektronenausbeute bei der Messung von Photoabsorptionsspektren, zur Bestimmung des Absorptionsmaximums für die resonante Photoemission (siehe Abschnitt 1.4), aufgenommen wird. Zur Unterdrückung äußerer Magnetfeldern im Innern der Meßkammer, ist diese innen mit einer Abschirmung aus Mumetall versehen.

Beide Teilkammern werden separat gepumpt, mit einem Pumpensystem, bestehend aus einer schmiermittelfreien, zweistufigen Vorpumpe (Drytel, Hersteller Alcatel), einer Turbomolekularpumpe (360 l/s, Leybold-Heraeus) und einer mit flüssigem Stickstoff betriebenen Kühlfalle, deren Kühlfläche mit Cer-Mischmetall bedampft wird, um die Sorptionswirkung zu erhöhen. Das Vorpumpe wird mit einem 100 l fassenden Edelstahlbehälter gepuffert, um Druckstöße besser aufzufangen. Der Druck im UHV-Bereich (Basisdruck typischerweise $1 \cdot 10^{-11}$ mbar) wird mit Extraktormeßröhren des Herstellers Leybold-Heraeus gemessen.

Mit einer Blende, die in der Präparationskammer vor die Verbindungsrohröffnung gefahren werden kann, wird das empfindliche Meßsystem in der unteren Kammer vollständig abgeschirmt von Präparationsarbeiten. Mit einem Schiebeventil (VAT) lassen sich beide Teilvakua vollständig voneinander trennen, so daß, z. B. bei einem Verdampferwechsel, die Präparationskammer separat belüftet werden kann. Dadurch wird wiederum das empfindliche Meßsystem geschont, außerdem ist das gesamte System schneller wieder einsatzbereit (unter UHV), da gerade das Evakuieren des Analysators, der sich schlecht pumpen läßt, besonders lange dauert.

Der EA11/100 von Leybold-Heraeus ist ein hemisphärischer, 170° Analysator mit einem Sollbahnradius von $r_0 = 127$ mm. Seine großen Hemisphären ermöglichen Messungen bei hoher Auflösung mit für PE akzeptabler Intensität. Dazu trägt auch das winkelintegrierende Retardierungslinsensystem bei, welches Elektronen mit einem Akzeptanzwinkel von $\alpha_t = 7,5^\circ$ einsammelt. Eine Apertur definiert den Eintrittswinkel in die Hemisphären α_a , welcher somit unabhängig von der Retardierenergie E_{Ret} ist. Daher ist die Energieauflösung ΔE (siehe Gleichung (2.1)) unabhängig von der kinetischen Energie E_{kin} der Elektronen, die den Analysator passieren sollen, welche ja gerade durch E_{Ret} festgelegt wird. ΔE hängt also nur von der Passierenergie und der Geometrie des Analysators ab, und beträgt ungefähr 0,5 % der Passierenergie. Für die Aufnahme von Detailspektren der 4f-Emission mit hoher Auflösung wurde eine Passenergie von $E_a = 10$ eV verwendet.

Der Eintrittsbereich des Linsensystems ragt starr unter einem Winkel von 75° relativ zum Lichteinfall (x -Achse der Meßgeometrie, siehe Abb. 2.1) am Synchrotron in die Kammer (entsprechend mit der Heliumlampe $37,5^\circ$), so daß bei Messung der Normalemission ($\theta = 0^\circ$) das Licht unter einem Winkel von $\theta_e = 15^\circ$ auf die Probe einfällt (entsprechend mit der Heliumlampe $\theta_e = 52,5^\circ$).

2.3.2 ARIES – Winkelauflösende Photoemission

Das Akronym „ARIES“ steht für „Angle Resolved Ion and Electron Spectroscopy“ und ist der Name einer Meßkammer des Herstellers VSW, gebaut für die winkelauflösende Spektroskopie geladener Teilchen.

Im Gegensatz zur WESPE ist die ARIES als Ein-Kammer-System aufgebaut. Durch die Anordnung der Flansche für die Aufnahme des UHV-Equipments ist die zylindrische Kammer in einen oberen Präparations- und einen unteren Meßbereich aufgeteilt. Die Ausstattung dieser Bereiche entspricht jener der Teilkammern der WESPE, mit der Ausnahme, daß im Meßbereich kein zusätzliches Channeltron zur Aufnahme von Photoabsorptionsspektren untergebracht ist. Hier wurde als Signal proportional zum Absorptionswirkungsquerschnitt der Erdungsstrom zur Probe verwendet. Die ARIES besitzt eine doppelte Mumetallabschirmung.

Das Pumpensystem der ARIES unterscheidet sich von dem der WESPE nur im Vorvakuumbereich. Hier wurde als Vorpumpe eine Drehschieberpumpe ($16 \text{ m}^3/\text{h}$, Leybold-Heraeus) verwendet und auf den Einsatz eines Puffervolumens verzichtet.

Der in der ARIES eingesetzte Analysator HA50 von VSW ist auf einem zweiachsigen Goniometer aufgebaut, das es erlaubt, ihn im UHV sowohl in der x - y -Ebene, als auch senkrecht dazu zu schwenken, wobei sich der Fokus des Linsensystems des Analysators immer im Zentrum der Kammer befindet, wo das einfallende Licht die Probe trifft. Dieser Aufbau erlaubt es den Emissionswinkel θ der zu analysierenden Elektronen zu variieren, ohne den Lichteinfallswinkel θ_e zu ändern, welcher typischerweise 56° beträgt.

Sowohl für die Winkel-, als auch für die Energieauflösung ist der Akzeptanzwinkel α_t für Elektronen beim Eintritt in das Linsensystem des Analysators von Bedeutung, welcher bestimmt wird durch das Verhältnis von Eintrittsblendendurchmesser zu Probenabstand. Der Fokus des Linsensystems liegt $30,8 \text{ mm}$ vor dem Analysator, und mit einem Blendendurchmesser von 1 mm ergibt sich eine Winkelauflösung von $\Delta\theta = \alpha_t = 1,86^\circ$ [106]. Im Gegensatz zur WESPE werden hier alle Elektronen, die in das Linsensystem eintreten, bis zu den Hemisphären durchgelassen. Daher ist der Aperturwinkel α_a bestimmt durch α_t über die Helmholtz-Lagrange-Beziehung:

$$\alpha_a \sqrt{E_a} = \alpha_t \sqrt{E_{\text{kin}}}. \quad (2.2)$$

Damit ergibt sich für die Energieauflösung mit $d = 1 \text{ mm}$ und $r_0 = 50 \text{ mm}$

$$\Delta E = 8,6 \cdot 10^{-3} E_a + 3 \cdot 10^{-4} E_{\text{kin}}, \quad (2.3)$$

mit einem Term, abhängig von der kinetischen Energie. Bei Spektren über einen Bereich von typischerweise 12 eV und Passierenergien von mindestens 5 eV ergibt das eine Variation der Energieauflösung von 4 meV oder weniger als 10% . Da sich die Gesamtauflösung aus der des Monochromators und der des Analysators zusammensetzt, kann diese für ein Spektrum als konstant angesehen werden. Als ungefährender Richtwert beträgt die Auflösung des Analysators 1% der Passenergie.

Für die \vec{k}_{\parallel} -Auflösung ergibt sich mit Gleichung (1.8):

$$\Delta \vec{k}_{\parallel} = \sqrt{\frac{2m_e E_{\text{kin}}}{\hbar^2}} \cos \theta \Delta\theta + \sqrt{\frac{m_e}{2\hbar^2 E_{\text{kin}}}} \sin \theta \Delta E. \quad (2.4)$$

Der Beitrag der Energieauflösung ist um zwei Größenordnungen kleiner als der der Winkelauflösung und daher vernachlässigbar.

