

KfK 5009
April 1992

**Untersuchung der
Temperaturabhängigkeit
der Struktur der
Au (110)-Oberfläche
durch Elektronenbeugung**

U. Romahn
Institut für Nukleare Festkörperphysik

Kernforschungszentrum Karlsruhe

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

Institut für Nukleare Festkörperphysik

KfK 5009

UNTERSUCHUNG DER TEMPERATURABHÄNGIGKEIT DER
STRUKTUR DER AU(110)-OBERFLÄCHE DURCH
ELEKTRONENBEUGUNG*

Ulrich Romahn

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, Karlsruhe

*von der Fakultät für Physik der Universität (TH) Karlsruhe genehmigte Dissertation

Als Manuskript gedruckt
Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH
Postfach 3640, 7500 Karlsruhe 1

ISSN 0303-4003

Untersuchung der Temperaturabhängigkeit der Struktur der Au(110)-Oberfläche durch Elektronenbeugung

Zusammenfassung

In dieser Arbeit wurde die Temperaturabhängigkeit der Au(110) Oberflächenstruktur mit Elektronenbeugung untersucht. Hierzu kamen zwei Methoden unterschiedlicher Auflösung (LEED und SPA-LEED) zum Einsatz.

Eine kinematische Theorie zur Beschreibung von Beugungsexperimenten an gestuften Oberflächen wurde derart erweitert, daß eine quantitative Beschreibung von Mehrfachstufen und lateralen Defekten an einer (2x1) rekonstruierten fcc(110)-Oberfläche möglich war. Es wurde eine Methode entwickelt, um die Höhenverteilung von Mehrfachstufen durch eine Fourier-Analyse der FWHM-Oszillationen des (00) Reflexes bestimmen zu können.

In den Untersuchungen mit LEED konnte zum ersten Male eine Irreversibilität des (2x1)→(1x1) Überganges festgestellt werden. Eine vollständig geordnete (2x1) Struktur kann nur nach kurzem Sputtern mit 500eV Ar⁺-Ionen bei T=523K erzielt werden. Bei einem Experiment im Temperaturbereich von T=45K bis T=780K wurde bei T=200K eine Anomalie der Halbwertsbreiten von (10) und ($\frac{3}{2}$ 0) Reflexen festgestellt. Aus dem Abfall der Intensitäten mit zunehmender Temperatur wurde der Debye-Waller Faktor im Temperaturbereich zwischen 45K und 500K bestimmt. Hierbei wurde eine Erhöhung der senkrechten Komponente der mittleren Schwingungsamplitude um einen Faktor 1.5 gegenüber dem Bulkwert ermittelt. Bei der Intensitätsanalyse des ($\frac{3}{2}$ 0) Reflexes im Temperaturbereich zwischen 300K und 720K wurde für den (2x1)→(1x1) Übergang eine Übergangstemperatur von $T_c = (700.7 \pm 1)$ K gefunden. Das kritische Verhalten des Ordnungsparameters läßt sich mit einem Exponenten $\beta = 0.102 \pm 0.08$ beschreiben. Zum ersten Mal konnte mit Standard-LEED eine Oszillation der Peakpositionen eines halbzahligen Reflexes, die von Einfachstufen verursacht wird, bei einer Temperatur von T=660K beobachtet werden.

In einer ausführlichen SPA-LEED Untersuchung im Temperaturbereich von T=300K bis T=786K wurde zum ersten Mal mit Elektronenbeugung die temperaturabhängige Positionsoszillation der ($\frac{1}{2}$ 0) Reflexe bestimmt. Aufgrund einer Mißorientierung der Kristalloberfläche wurden zusätzliche Positionsoszillationen der (10) Reflexe beobachtet. Aus einem Vergleich der Meßdaten mit Rechnungen im Rahmen der erweiterten Theorie wurde die mittlere Terrassenbreite ermittelt. Aus der temperaturabhängigen Analyse der Halbwertsbreite des (00) Reflexes im Vergleich mit Modellrechnungen in [001] und [1 $\bar{1}$ 0] Richtung wurde unterhalb einer Temperatur von 700K eine starke Anisotropie in der Stufendichte festgestellt, wobei ausschließlich Einfachstufen in [001] Richtung beobachtet wurden. Aus der Temperaturabhängigkeit der Verbreiterung des ($\frac{1}{2}$ 0) Reflexes wurde eine *Dekonstruktions*-Temperatur von $T_c = (654 \pm 10)$ K abgeschätzt. Während des *Dekonstruktionsüberganges* bei T_c wurde in [001] Richtung ein Anstieg der Dichte von Einfachstufen beobachtet. In einem einfachen Modell wurde diskutiert, daß die Stufen eine wichtige Rolle beim *Dekonstruktionsübergang* spielen. Zwischen T_c und 700K konnte die Bildung einer geordneten (1x1) Struktur mit geringer Stufendichte festgestellt werden. Oberhalb von $T_R = (700 \pm 10)$ K stieg die Stufendichte und die mittlere Stufenhöhe an. Dies läßt auf einen *Rougheningübergang* schließen. Zum ersten Mal wurde ein *Rougheningübergang* durch direkte Beobachtung der Stufenhöhenverteilung nachgewiesen. Es wurde festgestellt, daß der *Rougheningübergang* bei einer Temperatur oberhalb des *Dekonstruktionsüberganges* stattfindet, mit $T_R \approx T_c + 50$ K.

Investigation on the temperature dependent structure of the Au(110) surface with electron diffraction

Abstract

In this thesis the temperature dependence of the Au(110) surface structure was investigated with low energy electron diffraction. Two methods with different resolution (LEED and SPA-LEED) were used.

A theoretical description of diffraction experiments on stepped surfaces in the kinematical limit was extended, in order to describe a (2×1) reconstructed fcc(110) surface with multiple height steps and lateral defects quantitatively. A method to determine the step height distribution was developed using a Fourier-analysis of the FWHM oscillations for the (00) reflex.

First time an irreversibility of the $(2 \times 1) \rightarrow (1 \times 1)$ transition was detected with LEED. A complete ordered (2×1) structure could only be achieved after short sputtering with 500eV Ar⁺ ions at T=523K. An experiment in the temperature range from T=45K up to 780K showed an anomaly in the FWHM of the (10) and $(\frac{3}{2}0)$ reflexes at T=200K. The Debye-Waller factor was deduced inbetween 45K and 500K by analysing the temperature dependent reflex intensities for the (10) and $(\frac{3}{2}0)$ reflexes. The average vibrational amplitude perpendicular to the surface was found to be increased by a factor of 1.5 compared to the bulk value. A detailed analysis of the intensity for the $(\frac{3}{2}0)$ reflex in the temperature range from 300K up to 720K yields a $(2 \times 1) \rightarrow (1 \times 1)$ transition temperature of $T_c = (700.7 \pm 1)K$. The critical behaviour of the order parameter could be well described by an exponent $\beta = 0.102 \pm 0.08$. It was the first time that oscillations of the peak positions, caused by monoatomic steps, could be observed with standard LEED at a temperature of T=660K.

In a detailed SPA-LEED investigation in the temperature region from T=300K up to T=786K the temperature dependent oscillation of the peak positions for the $(\frac{1}{2}0)$ peaks could be detected for the first time. Because of a misorientation of the surface, additional oscillations of the peak positions for the (10) peaks were found. Comparing the measurements to calculations in the frame of the extended theory, the average terrace width could be determined. Analysing the FWHM for the (00) reflex in comparison with model calculations for the $[001]$ and $[1\bar{1}0]$ directions, below a temperature of 700K a strong anisotropy in the step density was found and only monoatomic steps in the $[001]$ direction were observable. The *deconstruction* temperature was estimated to $T_c = (654 \pm 10)K$ from the temperature dependence of the broadening of the $(\frac{1}{2}0)$ reflex. In the temperature range of the *deconstruction* transition at T_c an increasing of the monoatomic step density was observed for the $[001]$ direction. A simple model could explain the importance of the presence of monoatomic steps for the *deconstruction* mechanism. Between T_c and 700K the formation of an ordered (1×1) structure with a small step density could be detected. Above $T_R = (700 \pm 10)K$ the step density as well as the average step height increased. This could be taken as indications for a *roughening* transition. For the first time the *roughening* transition could be detected by directly looking at the step height distribution. It has been found, that the *roughening* transition takes place at a temperature well above the *deconstruction* transition, with $T_R \approx T_c + 50K$.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Experimentelles	5
2.1	LEED	5
2.1.1	Aufbau der Versuchsanordnung	5
2.1.2	Quantitative Datenerfassung	7
2.1.3	Transferbreite	7
2.2	SPA-LEED	9
2.2.1	Funktionsweise des SPA-LEED	9
2.2.2	Experimenteller Aufbau	12
2.3	Probenpräparation	13
3	Theorie struktureller Phasen-Transformationen	19
3.1	Einleitung	19
3.2	Der $(2 \times 1) \rightarrow (1 \times 1)$ Übergang von Au(110)	19
3.2.1	Magnetisches Modell für 2D Phasen-Transformationen	20
3.2.2	Kritisches Verhalten und Exponenten	21
3.2.3	Diskussion des Ising-Modells	22
3.3	Der Rauigkeits-Übergang	25
3.3.1	Makroskopische Beschreibung	25
3.3.2	Mikroskopische Beschreibung	26

4	Beugungstheorie	35
4.1	Phänomenologische Beschreibung	35
4.1.1	Mosaikstruktur	35
4.1.2	Stufen	36
4.2	Berechnung der Peakprofile	40
4.2.1	Das Wahrscheinlichkeitsmodell für Stufen an Oberflächen	40
4.2.2	Berechnung der Beugungs-Peakprofile	42
4.2.3	Berechnung des Grenz-Strukturfaktors	45
4.2.4	Beispiele für Peakprofile an gestuften Oberflächen	49
5	Experimentelle Ergebnisse	61
5.1	LEED-Ergebnisse	61
5.1.1	Reversibilität des <i>Dekonstruktionsüberganges</i>	61
5.1.2	Messung bei tiefen Temperaturen	63
5.1.3	Auswirkungen der kritischen Fluktuationen auf die Überstruktur-Reflexe	67
5.1.4	Analyse der Temperaturabhängigkeit des $(\frac{3}{2}0)$ Reflexes	71
5.1.5	Stufenanalyse	73
5.2	SPA-LEED Ergebnisse	76
5.2.1	Experimentvorbereitung	76
5.2.2	Kalibrierung des parallelen Impulsübertrages	77
5.2.3	Analyse der Peakpositionen	80
5.2.4	FWHM-Analyse des (00) Reflexes	85
5.2.5	Einfluß der apparativen Auflösung auf die Bestimmung der <i>Dekonstruktions</i> -Temperatur	96
5.3	Diskussion der Ergebnisse	97
5.3.1	Modell für die Temperaturabhängigkeit der Oberflächenstruktur	97

6 Zusammenfassung und Ausblick	103
A Ergänzungen	107
A.1 Empirische Regel zur Entfaltung	107
A.2 Fourier-Analyse der Halbwertsbreiten Oszillation	110
Abbildungsverzeichnis	113
Tabellenverzeichnis	116
Literaturverzeichnis	117

Kapitel 1

Einleitung

In dieser Arbeit wurden temperaturabhängige Strukturuntersuchungen an der Au(110) Oberfläche mit Beugungsexperimenten durchgeführt. Hierbei kamen zwei verschiedene Methoden mit unterschiedlicher Auflösung zum Einsatz: Herkömmliches LEED (Low-Energy-Electron-Diffraction) mit einer Transferbreite (Auflösung) von ca. 75Å und SPA-LEED (Spot-Profile-Analysis-LEED) mit einer Transferbreite von größer als 1500Å.

Die Motivation für die Wahl der Au(110)-Oberfläche zu diesen Untersuchungen war, daß die Oberflächenstruktur bei Raumtemperatur zum Zeitpunkt des Beginns dieser Arbeit hinreichend gut bekannt war [23, 47, 65, 66] und zahlreiche theoretische Betrachtungen über das *Preroughening* [94, 96, 105] und das *Roughening* [77, 87], d.h. über die Bildung thermisch aktivierter Stufen, vorlagen. Jedoch gab es noch keine entsprechenden systematischen experimentellen Untersuchungen zur Stufenbildung. Im folgenden möchte ich einen groben Überblick über bisher durchgeführte Arbeiten an der Au(110) Oberfläche geben.

Die genaue laterale Struktur der Au(110)(2x1)-Oberfläche bei Raumtemperatur konnte erst Anfang der 80'er Jahre im Vergleich mit experimentellen LEED Daten durch umfangreiche dynamische Rechnungen zur Elektronenbeugung in einem ersten Ansatz von Noonan und Davis [23] und endgültig durch Moritz *et al.* [24, 47] geklärt werden. Alle Modelle nahmen eine *missing row* Rekonstruktion der (2x1) Struktur und eine Multilagen-Relaxation an. Später wurde dieses Modell durch Untersuchungen mit Raster-Tunnel-Mikroskopie [37], Röntgenbeugungs Experimente am Synchrotron [38, 40], mit MEIS (Medium-Energy-Ion-Scattering) [56], durch *First Principle* Rechnungen [66] von Ho und Bohnen und noch durch andere theoretische Arbeiten [65, 81] bestätigt. Diese Arbeiten zeigten, daß die Au(110)-Oberfläche bei Raumtemperatur spontan, d.h. ohne äußeren Einfluß, eine (2x1) *missing-row* Rekonstruktion (siehe Abb.1.1) bildet. Die rekonstruierte Oberfläche geht oberhalb einer kritischen Temperatur T_c in eine unrekonstruierte Struktur [22, 49] über.

Die Frage war, warum die (110)-Oberflächen der Edelmetalle Ir, Au und Pt alle eine (2x1) *missing row* Rekonstruktion zeigen, wohingegen die im Periodensystem oberhalb liegenden Edelmetalle und Halbedelmetalle Rh, Pd, Ag, Co und Ni keine spontane Rekonstruktion der Oberfläche zeigen. An den Oberflächen von Cu, Rh, Pd und Ag kann durch Bruchteile einer Monolage von Alkalimetallen und anderer Adsorbaten eine (2x1) Rekonstruktion induziert werden. Dies führte zum Schluß, daß die elektronische Struktur an den Oberflächen eine entscheidende Rolle spielen könnte. Ho und Bohnen [68] zeigten, daß die wenig lokalisierten und somit mehr Platz beanspruchenden 5*d*-Orbitale

der Edelmetalle Ir, Au und Pt entscheidend sind für eine spontane Rekonstruktion. In dem Fall einer *missing row* Rekonstruktion finden die Elektronen der $5d$ -Orbitale mehr Platz, wodurch die kinetische Energie der $2s$ Elektronen verringert und somit die gesamte Oberflächenenergie minimiert wird. Der Mechanismus zur Bildung einer (2×1) *missing row* Rekonstruktion, der ebenso für die *Dekonstruktion* verantwortlich sein wird, ist bis heute nicht geklärt. Ein wichtiger ungeklärter Punkt ist, wie der große Massentransport, der notwendig ist zur Umordnung von einer (1×1) Struktur in eine (2×1) Struktur, erklärt werden kann. Ein STM (Scanning-Tunnelling-Microscope) Experiment an der Pt(110)(2×1)-Oberfläche [86] zeigte bei Belegung mit CO ein lokales Verschwinden der (2×1) Rekonstruktion bei Temperaturen von $T=250\text{K}$ und 300K . Hierbei wurde nicht nur eine laterale Diffusion der Atome, sondern auch vertikal zwischen erster und zweiter Lage beobachtet. Der Masseaustausch zwischen erster und zweiter Lage macht einen wesentlich kleineren lateralen Massentransport notwendig. Dies wird in zwei theoretischen Arbeit von Roelofs *et al.* [93, 111] bestätigt. Mit einer erweiterten *embedded atom Methode* (EAM) wurden die Wechselwirkungsenergien zwischen den Atomen an einer Au(110)(2×1) Oberfläche berechnet. In [93] wird der Bildung von Stufen eine wichtige Rolle beim Ordnungsprozess zur (2×1) Struktur zugeschrieben. In einem zweiten Teil der Arbeit [111] wurden verschiedene Diffusionsprozesse an dieser Oberfläche untersucht.

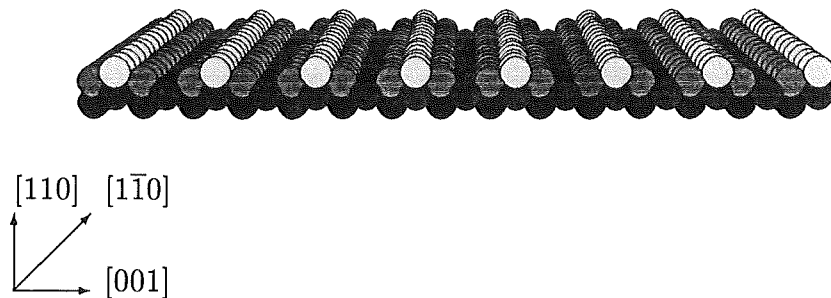


Abb. 1.1: Kugelmodell der (2×1) rekonstruierten Au(110)-Oberfläche in perspektivischer Ansicht.

Zahlreiche experimentelle [40, 47, 54, 56, 91] und theoretischen Arbeiten [66, 65, 81] befaßten sich mit der Klärung der Struktur der Au(110)-Oberfläche senkrecht zur Oberfläche. Die Ergebnisse dieser Arbeiten ergaben eine komplizierte Multilagenrelaxation, bei der der erste Lagenabstand kontrahiert ist, die nächsten beiden Lagenabstände leicht expandiert sind und die Atome in der dritten Lage um ihre mittlere Lagenposition senkrecht zur Oberfläche oszillierend angeordnet sind (*buckling* [56]). Zusätzlich sind die Atome der zweiten Lage leicht in $[001]$ Richtung um ihre Bulkposition verschoben (*row pairing* [38]).

Besonderes Interesse galt der Temperaturabhängigkeit der Rekonstruktion, dagegen gab es keine systematische Analyse der Temperaturabhängigkeit der Stufenbildung und der Relaxation. Zum Temperaturverhalten der Rekonstruktion gab es zahlreiche experimentelle Untersuchungen durch LEED [22, 49, 57, 70], mit X-Ray am Synchrotron [89] und durch ein LEIS (Low-Energy-Ion-Scattering) Experiment [92], die den $(2 \times 1) \rightarrow (1 \times 1)$ Phasenübergang (im Folgenden *Dekonstruktion* genannt) untersuchten und diskutierten. Die genaue Struktur der unrekonstruierten Phase war nicht geklärt. In einem ersten Ansatz wird davon ausgegangen, daß sich an der Au(110)-Oberfläche oberhalb T_c eine kommensurable (1×1) Struktur ausbildet. Jug und Tosatti [95] zeigten durch Rechnungen für ein erweitertes SOS-Modell, daß dieser Übergang ein Multiphasenübergang sei, bei dem in einem gewissen Temperaturbereich mehrere inkommensurable Phasen koexistent sind. Als weiteres Ergebnis dieser Rechnungen zeigte sich ab einer bestimmten Temperatur T_R eine raue Phase (*Roughening*). In dem LEIS Experiment von Riet *et al.* [92] wurden schon unterhalb der *Dekonstruktionstemperatur* T_c Anzeichen für einen Phasenübergang gesehen. Die Deutung des Experiments war, daß sich schon unterhalb T_c die Leerstellenkonzentration signifikant erhöht.

Um den *Dekonstruktionsübergang* zu beschreiben wurden unterschiedliche Modelle diskutiert. Bei dieser Diskussion wurden zwei wesentliche Modelle vorgeschlagen [98]:

Die *Dekonstruktion* wird durch einen Rauigkeitsübergang hervorgerufen [87, 93] oder,

der *Dekonstruktionsübergang* ist ein Ordnungs-Unordnungs-Übergang der durch ein zweidimensionales Ising-Modell beschrieben werden kann [49, 77]. Dieses Modell geht davon aus, daß eine eventuelle Stufenbildung den *Dekonstruktionsübergang* nicht beeinflusst.

In der Arbeit von Villain und Vilfan [77] wird das zweite Modell bevorzugt. Zusätzlich zur Diskussion des *Dekonstruktionsüberganges* wurde in dieser Arbeit ca. 100K oberhalb des *Dekonstruktionsübergangs* ein *Rougheningübergang* vorhergesagt. In einer neueren Arbeit von den Nijs [94, 105] und unabhängig hiervon durch Kohanoff *et al.* [96] wurde die Bildung von Einfachstufen weit unterhalb der *Dekonstruktion* vorausgesagt. Hierbei gehen den Nijs und Kohanov *et al.* davon aus, daß die *Dekonstruktion* durch ein *Preroughening*, d.h. der Bildung von Einfachstufen, an der Oberfläche eingeleitet wird. Alternativ wurde in einer Modellrechnung für ein erweiterten SOS-Modells von Jug und Tosatti ein *Multiphasenübergang* vorgeschlagen [95] bei dem auch ein *Preroughening* beobachtet werden kann. Hinweise auf den in den Arbeiten [77, 95, 96, 97] vorhergesagten *Rougheningübergang* oberhalb T_c wurden erstmals im Zusammenhang mit dieser Arbeit gefunden [112, 116]. Parallel hierzu fanden Sprösser *et al.* [118] mit Beugung thermischer Atom-Strahlen (TEAS) den *Rougheningübergang* ebenfalls bei einer Temperatur oberhalb der *Dekonstruktions* Temperatur.

Zu Beginn dieser Arbeit waren jedoch die folgenden Punkte noch nicht, oder nur teilweise geklärt:

- Wird die *Dekonstruktion* durch ein Aufrauen der Oberfläche eingeleitet (*Preroughening*), bzw. begleitet? Oder ist dies ein reiner Ising-Übergang ohne Vorhandensein von Einfachstufen, hervorgerufen durch Bildung lateraler Defekte in der (2x1) Struktur? (Als *Preroughening* wird ein Ansteigen der Dichte monoatomarer Stufen bezeichnet, wobei die Oberfläche im Mittel eben bleibt.)
- Findet das *Roughening* oberhalb oder bei T_c statt? Falls der *Rougheningübergang* oberhalb T_c einsetzt stellt sich die zusätzliche Frage: Wird das *Roughening* oberhalb T_c von einem *Preroughening* eingeleitet, oder bildet sich oberhalb T_c eine unrekonstruierte glatte Struktur, bevor der *Rougheningübergang* stattfindet. (Der *Rougheningübergang* wird durch ein Ansteigen der Korrelationslänge der Höhen-Höhen-Korrelationsfunktion charakterisiert.)
- Läßt sich in Beugungsexperimenten die vorausgesagte und inzwischen durch ein MEIS-Experiment [119, 120] beobachtete quasi-flüssige Schicht (*Premelting*) oberhalb des *Rougheningüberganges* nachweisen. Ein Indiz hierfür wäre eine Verringerung der Stufendichte [83].
- Wird der *Premelting* Effekt von einer stark überhöhten Gitterexpansion begleitet [121].

Das Hauptziel dieser Arbeit war es nun, durch Experimente mit Elektronenbeugung (LEED, SPA-LEED) die Stufenbildung an der Au(110) als Funktion der Temperatur zu untersuchen, und somit den Versuch zu unternehmen, einige der offenen Fragen zu klären und die theoretischen Vorhersagen zu überprüfen. Parallel zu dieser Arbeit wurde am selben Institut eine Arbeit zur Untersuchung des *Premelting* Effekts durchgeführt [119, 120].

Kapitel 2

Experimentelles

Als erstes wird ein kurzer Überblick über den prinzipiellen Versuchsaufbau bei beiden Methoden gegeben. Dabei soll auf die Besonderheit der jeweiligen Methode etwas genauer erklärt werden. Im letzten Teil dieses Kapitels wird dann die Präparation des Au-Kristalls beschrieben, die notwendig war, um eine *saubere* Oberfläche für diese Untersuchungen zu erhalten.

2.1 LEED

Für die Untersuchungen zu dieser Arbeit wurde eine *reversed view* LEED-Optik verwendet. Die prinzipielle Funktionsweise und der genaue Aufbau ist in der Literatur schon ausführlich beschrieben worden (unter anderem in [58]). Aus diesem Grund soll an dieser Stelle nur auf Besonderheiten eingegangen werden, die für diese Arbeit wesentlich sind. Das Standard-LEED bietet den Vorteil sehr schnell und ohne großen experimentellen Aufwand einen ersten Überblick über die Kristallstruktur einer Oberfläche zu erhalten. Aus diesem Grund ist LEED besonders geeignet, eine schnelle Qualitätskontrolle und Charakterisierung der Oberflächenstruktur nach der Probenpräparation durchführen zu können. Zudem bietet die im folgenden beschriebene Datenerfassung die Möglichkeit schnelle Messungen durchführen zu können.

2.1.1 Aufbau der Versuchsanordnung

Die LEED-Optik ist in einer UHV-Kammer montiert, in der sich noch ein Auger-Elektronen-Spektrometer (AES), ein Quadrupol-Massenanalysator (QMA) und eine Ionenkanone zum *Sputtern* mit Edelgas-Ionen befinden. Die Probe wurde auf einem Probenträger aus Molybdän befestigt. In den Probenträger wurde eine bifilar gewickelte Widerstandsheizung eingearbeitet, die ein Heizen des Kristalls bis auf ca. 1000°C ermöglicht. Der Probenträger wurde auf einem kommerziellen 2-Achsen-Manipulator befestigt. Dieser hatte als Besonderheit einen integrierten Verdampferkryostaten, der mit flüssigem Helium gekühlt werden konnte. Die thermische Kopplung zwischen dem Kryostaten und dem Probenträger wird durch eine Kupferlitze hergestellt. Hierbei wurde eine minimale Temperatur von ca. 21K am Ort der Probe erzielt. Der Manipulator ermöglichte eine Rotation um zwei Achsen. Hierbei konnte der Azimuth und die Orientierung bezüglich des Elektronenstrahls verändert werden. Zusätzlich sind Translationen in X-, Y- und Z-Richtung möglich. Der genaue Experimentelle Aufbau ist

in zwei Arbeiten [116, 121] ausführlicher beschrieben. In Abbildung 2.1 wird nur eine schematische Skizze der Kammer gezeigt.

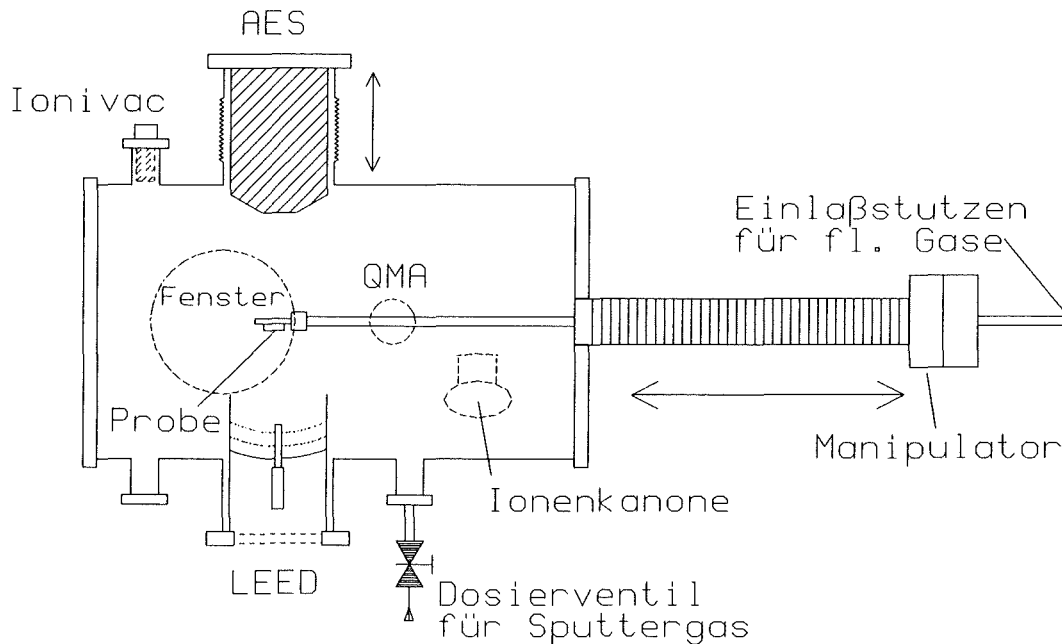


Abb. 2.1: Schema der LEED UHV-Kammer (Schnitt von oben gesehen).

Der Basisdruck in der Kammer war bei Raumtemperatur $p < 1 \times 10^{-10}$ mbar und stieg auf $p \approx 2.0 \times 10^{-10}$ mbar bei einer Probentemperatur von $T = 600^\circ\text{C}$. Dieser Druckanstieg kann auf den Dampfdruck von Au zurückgeführt werden, der 1×10^{-10} mbar bei $T = 700^\circ\text{C}$ beträgt, sowie einer erhöhten Desorptionsrate von einer Cu-Litze, die zur thermischen Kopplung zwischen Probenträger und Verdampferkryostaten angebracht ist. Durch das Restgas wurde die maximale Meßzeit auf ca. 30h begrenzt. Die Probentemperatur wurde mit einem Ni-CrNi-Thermoelement gemessen, welches am Rand der Probe durch die Probenhalterung befestigt war. Um eine möglichst genaue Temperaturmessung zu erhalten, wurde eine Kalibrierung der Temperatur vorgenommen. Hierzu wurde anstelle des Au-Kristalls ein Au-Block aus polikristallinem Material von gleicher Masse und Geometrie auf dem Probenträger befestigt. Auf der Oberfläche der polikristallinen Ersatzprobe wurde nun ein weiteres, extern zugeführtes, Ni-CrNi-Thermoelement angepreßt und die Temperaturanzeige des zusätzlichen Thermoelementes gegenüber der Temperaturanzeige des Thermoelements am Rande der Probe aufgetragen. Dies wurde im Temperaturbereich zwischen $T = 30\text{K}$ und 1050K durchgeführt. Hierbei wurde mehrmals hochgeheizt und wieder abgekühlt. Dabei konnte keine Hysterese festgestellt werden. An die gemessenen Temperaturwerte konnte eine Eichkurve mit schwachem quadratischen Anteil angepasst werden [116]. Alle Temperaturangaben in dieser Arbeit sind mit der so ermittelten Eichkurve korrigiert worden. Diese Kalibrierung ist für alle Messungen gleich, da bei einem Wechsel von LEED zu SPA-LEED die Au-Probe nie vom Probenträger entfernt wurde und das Thermoelement immer

wieder an der selben Stelle angebracht wurde. Der absolute Fehler aller Temperaturangaben ist kleiner als $\Delta T = 0.5\text{K}$. Die Langzeit-Temperaturstabilität wurde durch einen PID-Temperaturcontroller gewährleistet. Hierbei war die Temperaturänderung während einer Messung maximal 0.1K .

2.1.2 Quantitative Datenerfassung

Bei einer *reversed view* LEED-Optik werden die gebeugten Elektronen auf einem sphärischen Leuchtschirm hinter der Kathode sichtbar gemacht. Die Leuchtstärke ist hierbei direkt proportional zur Intensität des jeweiligen Reflexes. Um eine quantitative Auswertung zu ermöglichen, wird das optische Signal mit einer Videokamera, die einen Restlichtverstärker besitzt (spektrale Empfindlichkeit für grünes Licht $\approx 5 \times 10^{-3}$ Lux), aufgenommen. Das Videosignal wird einem 12-Bit A-D-Wandler zugeführt und von einem Microcomputersystem weiter verarbeitet. Mit dieser Meßmethode können integrale Intensitätsmessungen sowie Peakprofile, d.h. Intensität I als Funktion des parallelen Impulsübertrages k_{\parallel} ($I(k_{\parallel})$) quantitativ aufgenommen werden. Zusätzlich lassen sich relativ einfach Intensitätsmessungen als Funktion der Elektronenenergie $I(E)$ durchführen. Hierbei tritt jedoch das Problem auf, daß durch optische Reflexion dem Spekularreflex das Kathodenlicht der Glühkathode überlagert ist. Dies machte bei Messungen von $I(k_{\parallel})$ -Profilen eine Untergrundkorrektur notwendig, indem bei jeder Einstellung der Untergrund bei einer Elektronenenergie von 0eV (keine Emission) abgezogen wird. Durch die endliche Auflösung der Digitalisierung können $I(k_{\parallel})$ -Profile mit einer Genauigkeit von ca. 2% der Größe der Brillouin-Zone (BZ) aufgelöst werden (dies entspricht z.B. einer Auflösung von ca. 0.03\AA^{-1} des parallelen Impulsübertrages k_{\parallel} bei einer Größe der BZ von 1.54\AA^{-1}).

2.1.3 Transferbreite

Da in dieser Arbeit zwei verschiedene Beugungsmethoden mit unterschiedlicher Transferbreite (Auflösung) angewendet wurden, war es auch notwendig die Transferbreite des Standard-LEED's zu bestimmen. Dies wurde in einer Arbeit von Zimmermann [116, Seiten 26-28] durchgeführt, indem die Halbwertsbreite (FWHM) des Spekularreflexes bei Raumtemperatur für verschiedene Energien bestimmt wurde. Die Halbwertsbreite ist nun ein direktes Maß für die Transferbreite der Elektronenoptik, da beim Spekularreflex keine Kristalleigenschaften, außer der Mosaikverteilung und bei bestimmten Energien eventuell vorhandene Stufen, eingehen. Die Mosaikbreite des untersuchten Kristalls war jedoch, laut Angaben des Herstellers, kleiner als $0.17^{\circ}(10')$ und es wurde angenommen, daß nach langem Tempern keine hohe Stufendichte vorhanden sein würde. Deshalb wurde der Kristall für dieses Experiment länger als 24h bei $T=250^{\circ}\text{C}$ getempert, um Sputterdefekte gut auszuheilen. In diesen Messungen konnte eine maximale Transferbreite von ca. 75\AA bei einer Elektronenenergie von ca. 50eV festgestellt werden. Oberhalb und unterhalb dieses Energiebereiches nimmt die Auflösung monoton

ab. Das Ergebnis dieser Messung ist in Abbildung 2.2 dargestellt. Die eingezeichneten Punkte stellen die Messergebnisse dar und die durchgezogene Linie ist das Ergebnis eines glättenden Spline-Fits¹. Die abnehmende Transferbreite ist durch die Elektronenoptik begründet. Die Elektronenkanone besitzt eine energieabhängige Fokussierung, die jedoch nur für Elektronenenergien größer 40eV zufriedenstellend arbeitet. Eine mögliche Verbesserung könnte durch Verwendung einer Elektronenoptik mit extern einstellbarer Fokussierung erzielt werden. Die aus der Messung ermittelte Transferbreite liefert eine Auflösung von ca. 0.085\AA^{-1} , oder 5.5% der BZ. Aus diesen Werten ist erkennbar, daß die apparative Auflösung bei der Digitalisierung (siehe Kapitel 2.1.2) ausreichend ist, um die Peakprofile gut auflösen zu können. Um die Verbreiterung der Peaks, die z.B. durch *Preroughening* verursacht wird, eindeutig aufzulösen, ist jedoch eine größere Transferbreite erforderlich. Eine zusammenfassende Diskussion über den Einfluß der unterschiedlichen Auflösungen auf die verschiedenen Ergebnisse wird in Kapitel 5.2.5 geführt.

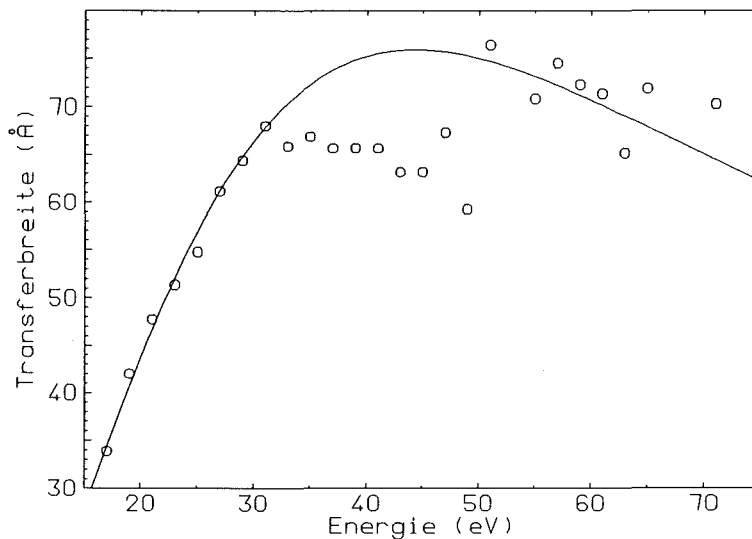


Abb. 2.2: Energieabhängigkeit der Transferbreite der LEED Optik, bestimmt aus Halbwertsbreitenmessungen für den Spekularreflex bei $T=320\text{K}$. Die Punkte wurden aus direkten Meßergebnissen errechnet, während die durchgezogene Linie ein glättender Spline-Fit an die Daten darstellt. Die Werte zwischen 30eV und 45eV wurden beim Spline-Fit nicht berücksichtigt.

¹Die Meßpunkte zwischen 30eV und 45eV wurden nicht berücksichtigt, da dies der Bereich ist, in dem Stufen die Halbwertsbreite des Spekularreflexes besonders stark beeinflussen.

2.2 SPA-LEED

Als zweite Methode wurde SPA-LEED zur Untersuchung benutzt. Die Messungen wurden an einer Apparatur des *Instituts für Theoretische und Physikalische Chemie der Universität Tübingen* durchgeführt. SPA-LEED ist eine Weiterentwicklung des Standard-LEED's, das im *Institut für Festkörperphysik der Universität Hannover* [53, 100] speziell zur Untersuchung von Oberflächendefekten entwickelt wurde. Das SPA-LEED ist mit einer speziellen Elektronenoptik ausgerüstet, die es ermöglicht einen nahezu parallelen Elektronenstrahl zu erzeugen. Hierdurch werden sehr große Transferbreiten von bis zu 1500\AA erzielt [53, 78, 80, 113]. Aufgrund dieser großen Transferbreite des SPA-LEED's kann die Form der Peakprofile besser aufgelöst werden, im besonderen die Flanken der Beugungsreflexe. Da SPA-LEED keine Standardmethode ist, möchte ich an dieser Stelle etwas genauer auf den Aufbau und die physikalischen Grundlagen eingehen.

2.2.1 Funktionsweise des SPA-LEED

Im SPA-LEED wird, ganz analog zum herkömmlichen LEED, die Oberfläche durch Beugung niederenergetischer Elektronen untersucht. Zum Nachweis der gebeugten Elektronen wird ein Channeltron eingesetzt. Die Symmetrieachse des Channeltrons steht im Winkel von 7.5° zur Achse der Elektronenkanone. Nun könnten nur Elektronen im Channeltron nachgewiesen werden, die an einer Oberfläche mit einem Winkel von 7.5° abgebeugt werden. Um einen größeren Raumwinkel vermessen zu können, durchlaufen die Elektronen ein elektrostatisches Feld in einer Oktopolanordnung. Abbildung 2.3 zeigt eine Zeichnung des instrumentellen Aufbaus zusammen mit einem Schema der Steuer- und Datenerfassungselektronik. Durch anlegen einer geeigneten Spannung an den Oktopolfeldplatten können hierbei auch Elektronen mit unterschiedlichem Beugungswinkel in das Channeltron abgelenkt werden. In Abbildung 2.4 werden die Wege der Elektronen mit (gekrümmte Bahnen) und ohne (grade Bahnen) eine Ablenkspannung an den Feldplatten schematisch dargestellt.

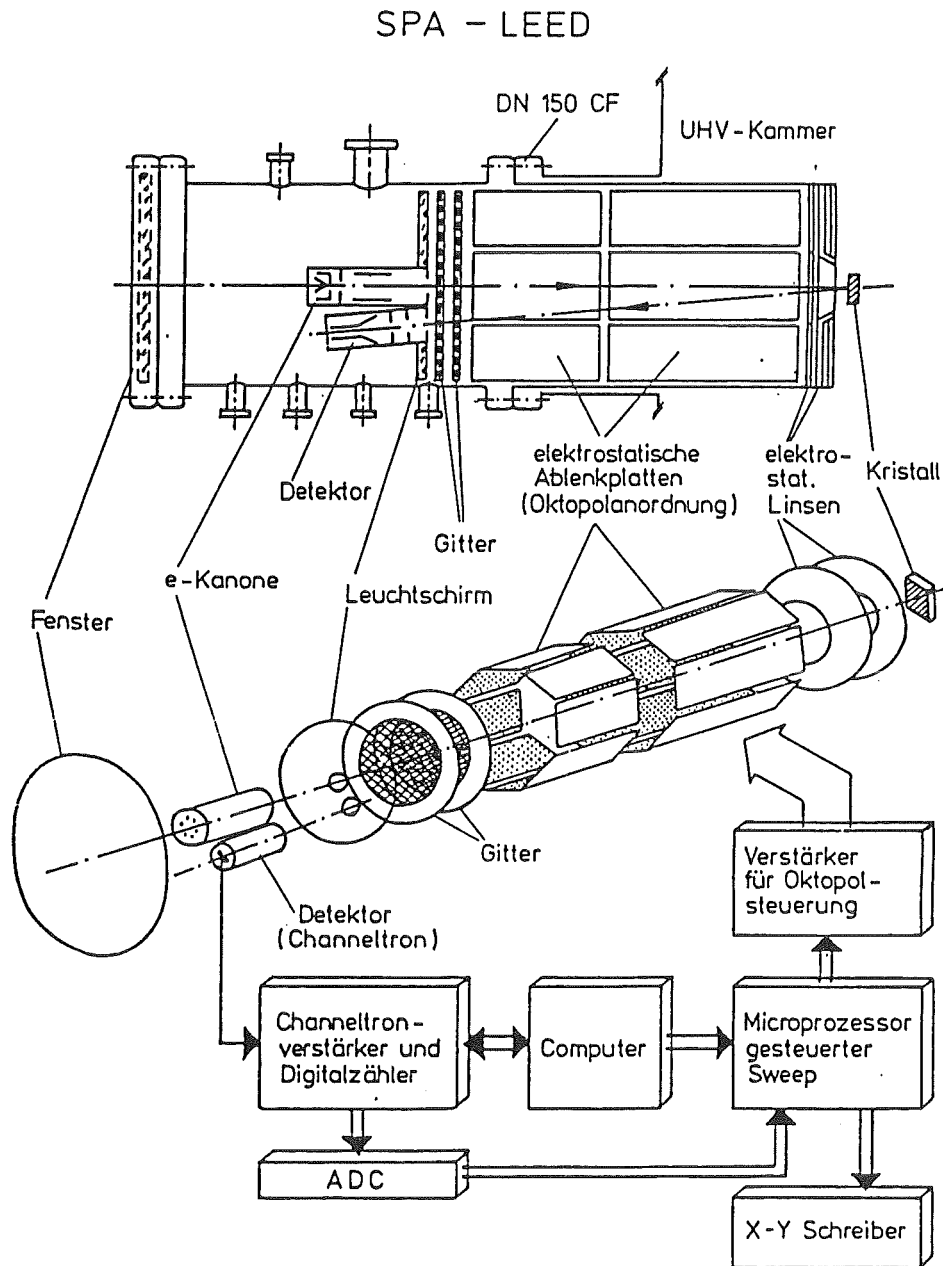


Abb. 2.3: Schematischer Aufbau des SPA-LEED's zusammen mit der Steuer- und Datenerfassungselektronik. Die Abbildung wurde aus dem technischen Manual für das SPA-LEED (Fa. Leybold) entnommen.

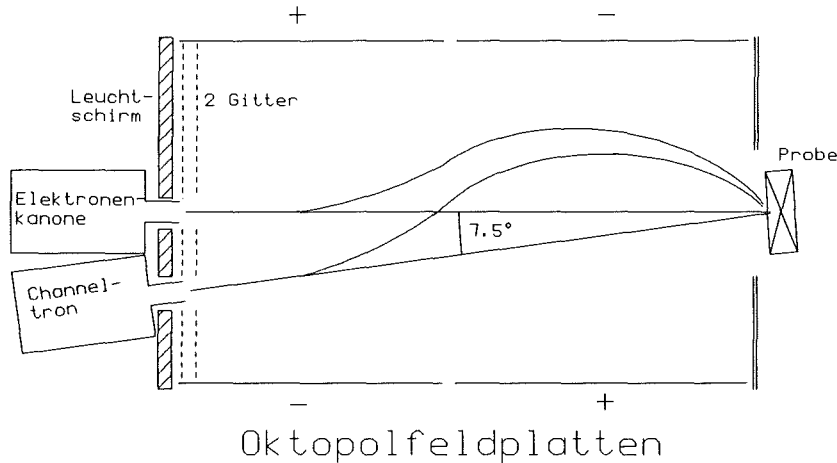


Abb. 2.4: Schematische Darstellung der Laufwege von Elektronen ohne (gerade Bahnen) und mit Ablenkspannung an den Feldplatten.

Wie auf Abbildung 2.4 gut zu erkennen ist, trifft der Elektronenstrahl bei einer von Null verschiedenen Ablenkspannung nicht mehr unter 3,75° auf der Probe auf, sondern ändert seinen Einfallswinkel. Da bei SPA-LEED Experimenten der Betrag des Gesamtimpulsübertrages $\vec{K} = \vec{k}_f - \vec{k}_i$ immer konstant ist, wird die Ewald-Konstruktion modifiziert (siehe Abbildung 2.5). Der Wellenvektor der einfallenden Elektronen wird mit \vec{k}_i und der der ausfallenden mit \vec{k}_f bezeichnet. Die Ewaldkugel hat den Durchmesser $K = |\vec{k}_f - \vec{k}_i|$ mit dem Mittelpunkt bei (0,0,0). Der Beugungswinkel zwischen \vec{k}_i und \vec{k}_f ist durch den mechanischen Aufbau unveränderbar festgelegt und beträgt wie oben schon erwähnt 7,5°.

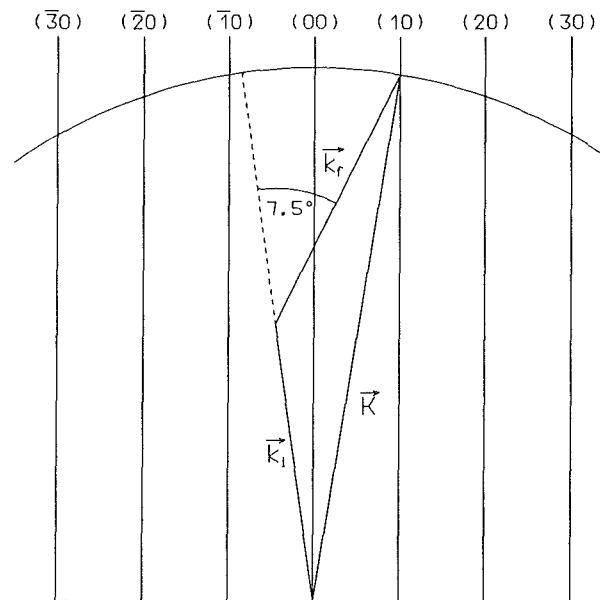


Abb. 2.5: Modifizierte Ewaldkugel Konstruktion für die SPA-LEED-Optik. Der Winkel zwischen \vec{k}_i und \vec{k}_f wurde zur besseren Darstellung vergrößert gezeichnet.

Zur Verbesserung der Auflösung wurde zusätzlich ein elektrostatisches Linsensystem in die Optik integriert (siehe Abb. 2.3), mit dem es möglich ist, die Spitze der Kathode auf die Öffnung des Channeltrons abzubilden. Dies ergibt am Ort der Probe einen fast parallelen Elektronenstrahl. Der Nachteil hierbei ist jedoch, daß zu diesem Zweck der Elektronenstrahl an der Probenoberfläche den größten Durchmesser, nämlich ca. 3mm, besitzt. Dies erschwert Experimente an inhomogen präparierten Oberflächen. Zusätzlich wandert der Auftreffpunkt der Elektronen mit Veränderung der Ablenkspannung und Elektronenenergie. Deshalb ist es nur möglich große und homogen präparierte Oberflächen mit einer Fläche größer ca. $5 \times 5 \text{mm}^2$, zu untersuchen. Eine ausführlichere Beschreibung der SPA-LEED-Optik findet man in [30], bzw. [32], sowie mit einer neuen modifizierten Optik in [100].

Im Gegensatz zum herkömmlichen LEED können mit der in dieser Arbeit verwendeten SPA-LEED Apparatur ohne größeren experimentellen Aufwand keine $I(E)$ Messungen durchgeführt werden. Durch die gerade beschriebene Elektronenoptik zur Erzeugung einer möglichst großen Transferbreite verändert sich der Elektronenstrom als Funktion der Elektronenenergie. Zusätzlich verändert sich die Transmission des Channeltrons als Funktion der Energie. Deshalb müßte die gemessene Elektronenintensität mit dem Emissionsstrom und der Transmission des Channeltrons korrigiert werden.

2.2.2 Experimenteller Aufbau

Das SPA-LEED ist in einer UHV-Kammer montiert in der sich zusätzlich eine Ionenkanone zum Sputtern befindet. Die Probe war an einem einfachen Manipulator befestigt, der durch eine Drehdurchführung rotiert werden konnte. Der Einfallswinkel der Elektronen auf die Probenoberfläche konnte mit Hilfe einer kippbaren Konstruktion eingestellt werden. Eine Einstellung des Probenazimuths war nicht möglich, jedoch aufgrund der Meßmethode auch nicht notwendig, da durch die Zylindersymmetrie des Oktopolfeldes Peakprofile in beliebigem Azimuthwinkel aufgenommen werden konnten. Durch die Beibehaltung des Probenträgers konnte auf die schon durchgeführte Temperaturkalibrierung zurückgegriffen werden. Die Probenheizung wurde auch hier von einem PID-Controller geregelt. Die Probentemperatur wurde mit zwei Ni-CrNi Thermoelementen gemessen, wobei eines davon an der selben Stelle angebracht wurde, an der die Temperaturkalibrierung vorgenommen wurde. Somit konnte die in Kapitel 2.1.1 beschriebene Genauigkeit der Probentemperatur erzielt werden. In Abbildung 2.6 wird eine schematische Skizze des Aufbaus gezeigt. Die Kammer konnte durch ein Heizzelt ausgeheizt werden. Nach ca. 48h Ausheizen und Auskühlen der Kammer wurde ein Basisdruck von $p < 1.0 \times 10^{-10} \text{mbar}$ erreicht. Die Probe zeigte nach ca. 10 maligem Sputtern mit Ar-Ionen bei $E_{Ar}=500\text{eV}$, einem über die Probe gemessenen Ionenstrom von $I_{Ar} = 5\mu\text{A}$ für jeweils 1min und anschließendem mehrstündigem Tempern bei Temperaturen zwischen $T=250^\circ\text{C}$ und 500°C scharfe LEED-Reflexe. Die Oberfläche wurde mit Hilfe der Drehdurchführung und der Kippvorrichtung derart ausgerichtet, daß der Spekularreflex ohne Ablenkspannung an den Oktopolfeld-Platten in das Channeltron trifft.

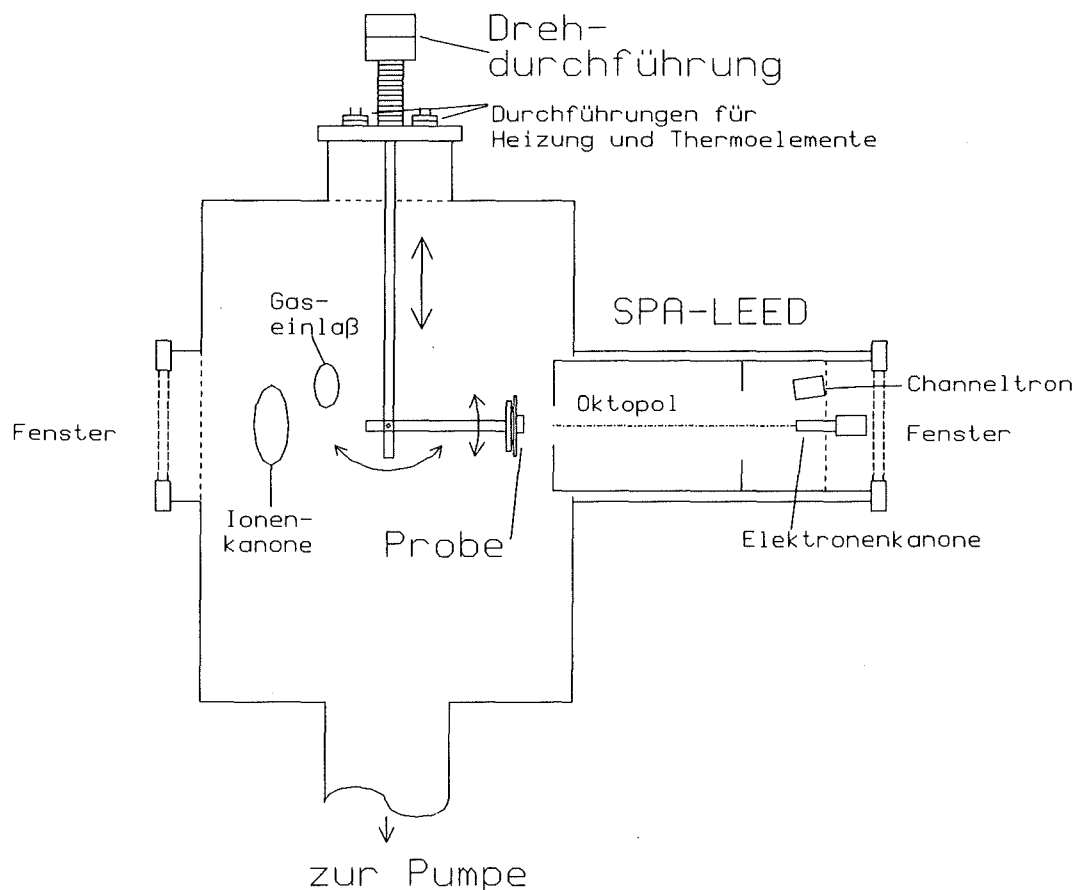


Abb. 2.6: Schema der SPA-LEED UHV-Kammer (Schnitt von der Seite).

2.3 Probenpräparation

Um Oberflächenuntersuchungen mit Beugungsmethoden durchführen zu können, muß eine auf atomistischer Skala saubere und geordnete Oberfläche vorliegen. Dies wird mit einer *in situ* Oberflächenpräparation durch aufeinanderfolgende Sputter- und Temperzyklen mit Ar^+ -Ionen ausgeführt.

Der eingesetzte Au-Einkristall wurde bei einer Firma [90] orientiert und poliert gekauft. Nach Angaben dieser Herstellerfirma wurde der Einkristall nach dem Bridgeman-Verfahren aus der Schmelze gezogen. Nach Angaben des Herstellers beträgt die vermutete Mosaikbreite von Au-Einkristallen, die unter identischen Bedingungen hergestellt wurden, weniger als 10^{-15} . Es handelt sich hierbei um den gleichen Kristall, der auch in [116] verwendet wurde. Die Einkristallscheibe wurde durch Funkenerosion aus dem Rohling geschnitten. Die Genauigkeit des Schnittes war besser als 10^{-1} , bezogen auf die [110] Richtung. Die Kristallscheibe war Kreisförmig, mit einem Durchmesser von ca. 10mm und ca. 2mm Dicke. Entlang des Umfanges wurde eine Nut mit 0.5mm Breite und ca. 0.5mm Tiefe durch Funkenerosion angebracht, um eine gute Befestigung

des Kristalles zu ermöglichen, ohne die Oberfläche direkt berühren zu müssen. Die Oberfläche wurde zuerst elektrochemisch geätzt, um grobe Unebenheiten zu beseitigen. Anschließend wurde die Oberfläche durch mechanische Feinpolitur bearbeitet. (Diese Präparationsschritte wurden durch die Herstellerfirma ausgeführt.)

Der Au-Kristall wurde auf einem rechteckigen Probenträger aus Molybdän befestigt. Zur Befestigung wurden zwei rechteckige Molybdän-Plättchen mit ca. 0.5mm Dicke an einer Seite halbkreisförmig ausgeschnitten, um in die Nut am Kristallumfang eingepaßt zu werden. Durch Langlöcher in den Molybdänplättchen wurde der Kristall nun mit Schrauben auf dem Probenträger fixiert. Für die Wahl von Mo gab es zwei wesentliche Gründe: Erstens bildet Mo mit Au bei höheren Temperaturen kein eutektisches Gemisch und zweitens besitzt Mo eine gute Wärmeleitfähigkeit. Bei der Montage des Kristalls wurde darauf geachtet, daß keine mechanische Beanspruchung auf den Kristall ausgeübt wurde, um die Bildung von Gleitversetzungen oder sonstigen massiven Kristallgitterfehlern zu vermeiden.

Im UHV (siehe Abb. 2.1) wurde der Kristall zuerst durch Sputtern mit 500eV Ar⁺ bei einem Ar-Partialdruck von 8×10^{-5} mbar bei Raumtemperatur gesputtert. Der über die Probe gemessene Ionenstrom betrug ca. 7 μ A. Um die Abtrage von Au-Atomen an der Kristalloberfläche zu erhöhen, wurde unter einem Winkel von ca. 20°–30° gegenüber der Oberflächennormalen gesputtert. Jeder dieser Sputterzyklen dauerte ca. 30min. Da der Durchmesser des effektiven Sputterbereiches auf der Probe durch Versuche auf ca. 4mm abgeschätzt wurde, wurde die Probe in 9 verschiedenen Positionen gesputtert, um eine gleichmäßig präparierte Oberfläche zu erhalten. Die anfänglich niedrig gewählte Ionenenergie begründete sich in der Befürchtung, durch höhere Ionen-Energien die Oberfläche zu stark zu schädigen. Nach jedem Sputterzyklus wurde die Probe bei ca. 670K–870K für ca. 1 Stunde getempert. Nach 10 solcher Zyklen konnte ein erstes LEED-Bild festgestellt werden, daß jedoch eine ungeordnete hexagonale Struktur zeigte. Dies ließ den Schluß zu, daß die Oberfläche durch die mechanische Feinpolitur mehrere μ m tief nachhaltig geschädigt worden war. Nach zahlreichen erfolglosen Sputterzyklen bei 500eV Energie wurde die Ionenenergie auf 2keV erhöht, um eine dickere Oberflächenschicht abzutragen. Nach weiteren Sputter- und Temperzyklen mit dieser hohen Ionenenergie konnte schließlich mit LEED eine (110)(2x1) Struktur beobachtet werden.

Nach längerem Tempern bei ca. 870K wurde mit AES jedoch eine starke Verunreinigung mit Ca, C und O festgestellt. Das AES-Spektrum ist in Abb. 2.7 dargestellt. Die Herkunft der Ca-Verunreinigung wird auf die mechanische Politur zurückgeführt, da bei den eingesetzten Diamant-Polierpasten als Füllmittel CaCO₃ verwendet wurde. Das gezeigte AES-Spektrum ist in einem sehr frühen Präparationsstadium aufgenommen worden. Nach weiteren durchgeführten Präparationszyklen konnte nur noch Ca festgestellt werden.

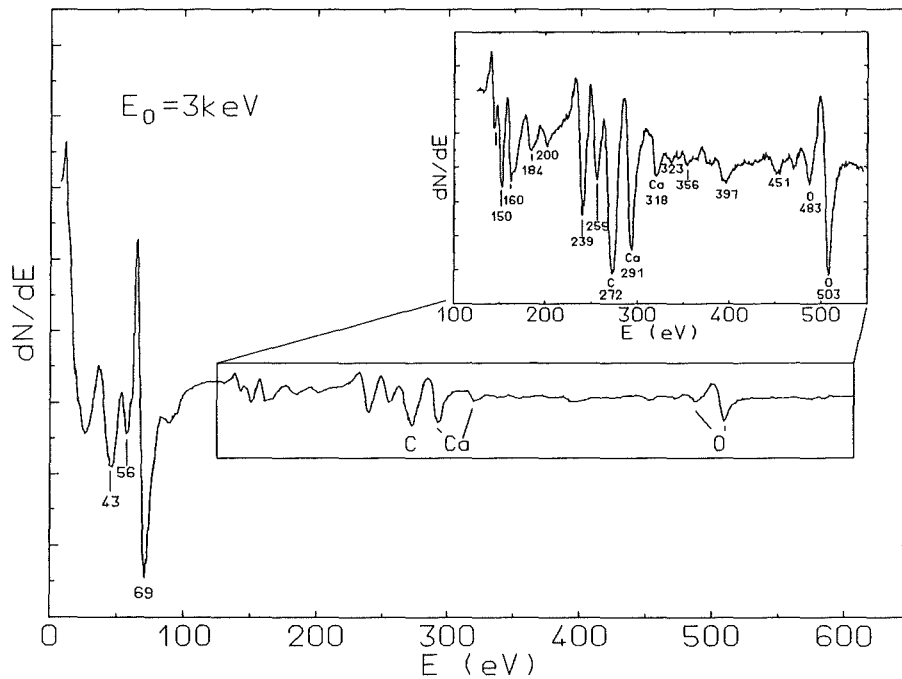


Abb. 2.7: AES-Spektrum von der Au-Oberfläche mit Verunreinigungen in einem frühen Präparationsstadium. Die zusätzlichen AES-Peaks stellen Verunreinigungen von C, Ca und O dar. Im Teilbild wurde der interessante Energiebereich herausvergrößert.

Die relativen Konzentrationen der Verunreinigungen auf der Oberfläche, bezogen auf das AES-Signal von Au, wurden nach folgender Formel berechnet [19]:

$$c_X = \frac{\frac{I_X \cdot b_X}{a_X}}{\left(\frac{I_X \cdot b_X}{a_X}\right) + \left(\frac{I_{Au} \cdot b_{Au}}{a_{Au}}\right)} \quad (2.1)$$

mit

I_X : AES-Peak Intensität der jeweiligen Substanz X . X z.B. steht für Ca , C und O .

a_X : Relative Nachweiswahrscheinlichkeit der Substanz X . Für $Au(2024eV)$: $a_{Au} = 0.018$; $Ca(291eV)$: $a_{Ca} = 0.45$; $C(272eV)$: $a_C = 0.2$; $O(503eV)$: $a_O = 0.51$.

b_X : Korrekturfaktor, der sich aus der Umrechnung von Hauptpeakhöhe auf die Nebenpeakhöhe ergibt. Dies ist notwendig, da sich die relativen Nachweiswahrscheinlichkeiten a_X immer auf den Haupt-AES-Übergang beziehen. Für $Au(MNN)$: $b_{Au} = 0.49$ ($239eV/2024eV$). Bei den restlichen Elementen wurde $b_X = 1$ gesetzt, da die Intensität des Hauptübergangs bestimmt wurde.

Bei der Messung mit einem Lock-In-Verstärker wurde das AES-Signal nach der Elektronenenergie differenziert. Deshalb muß für die Bestimmung der Intensität eine Näherung gemacht werden. Es wird angenommen, daß die Peak-zu-Peak Höhe der dN/dE Peaks direkt proportional zur AES-Intensität sei. Dies ist jedoch nur korrekt, falls die AES-Peaks identische Breiten besitzen. Aus Abbildung 2.7 wurden folgende, relativ auf Au bezogene Konzentrationen in Einheiten einer Monolage (ML) Au abgeschätzt (1ML Au entspricht 1.7×10^{15} Au-Atome pro cm^2):

$$\begin{aligned} c_C &= 0.030\text{ML} \\ c_{Ca} &= 0.015\text{ML} \\ c_O &= 0.015\text{ML} \end{aligned}$$

Um die Verunreinigung durch Ca zu verringern, wurde die Probe für ca. 30min auf 870K getempert, und anschließend bei 523K ca. 30sec mit 500eV-1keV Ar^+ gesputtert. Diese Prozedur wurde solange wiederholt, bis auch nach Temperzyklen von länger als 12h kein Ca-AES-Signal mehr zu sehen war. In Abb. 2.8 wird ein AES-Spektrum gezeigt, daß nach ca. 24h tempern auf ca. 770K (höchste Temperatur bei den Experimenten) aufgenommen wurde. Alle AES-Signale können Au zugeordnet werden, so daß keine Verunreinigung sichtbar ist. Vor der Messung dieses Spektrums war der Au-Kristall schon ca. 1 Jahr lang unter UHV Bedingungen.

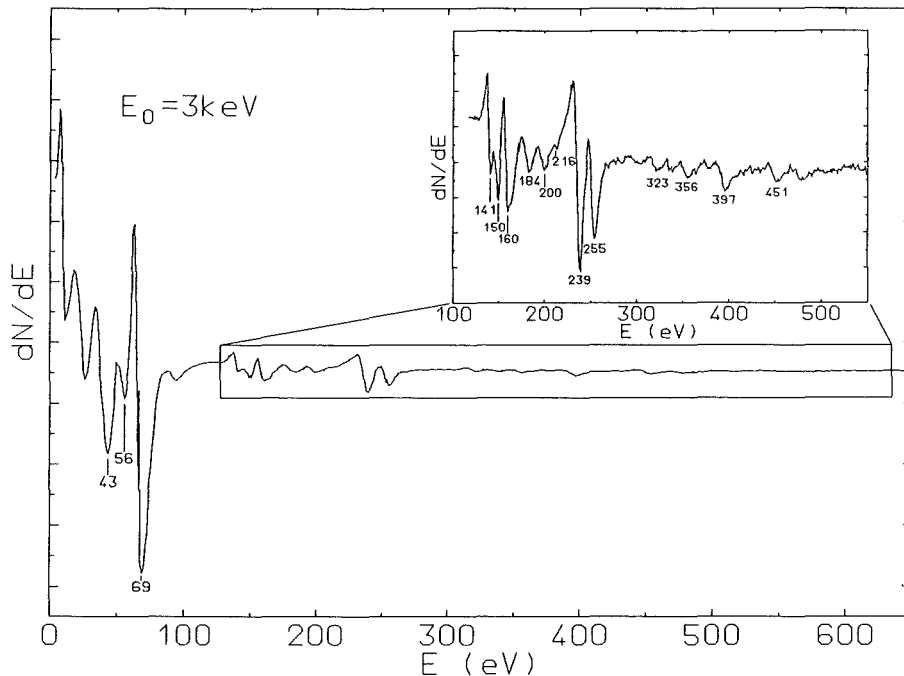


Abb. 2.8: AES-Spektrum von der Au-Oberfläche ohne Verunreinigungen. Alle AES-Peaks können Übergängen von Au zugeordnet werden. Im Teilbild wurde der interessante Energiebereich herausvergrößert.

Um sicher zu stellen, daß sich nach längeren Experimenten an der Oberfläche kein Ca anreichert, wird der Kristall vor jedem Experiment ca. 30sec lang mit 500eV Ar⁺ bei 523K gesputtert und anschließend mindestens 12h lang bei der selben Temperatur getempert. Aus dem Rauschen σ_{RMS} des AES-Signals zwischen E=280eV-300eV (Bereich des Ca-Signals, siehe Abb. 2.7 und 2.8) wird eine untere Schranke für die Ca-Konzentration abgeschätzt. Als untere Schranke wird hierbei nach Gl. (2.1) eine Ca-Konzentration von

$$c_{Ca} \leq 0.004 \quad ML$$

abgeschätzt. Die AUGER-Elektronen des als Bezugspunkt genommenen Goldes kommen jedoch nicht ausschließlich von der Oberfläche, sondern zusätzlich noch aus tieferen Schichten des Au-Kristalls. Deshalb wurde die Ca-Konzentration nicht auf eine Au-Monolage bezogen, sondern auf ein endliches Volumen des Au-Kristalls. Die Peakhöhe des Au-Bezugspunktes wurden für AUGER-Elektronen mit einer Energie von E=239eV bestimmt. Elektronen mit dieser Energie haben eine mittlere freie Weglänge von ca. 8.4Å in Au, d.h. die AUGER-Elektronen, die von Au-Atomen aus einer Tiefe von 8.4Å kommen (d.h. von Atomen der 6 Lage unterhalb der Oberfläche), werden um einen Faktor 1/e abgeschwächt. Aus diesem Grund muß die oben angegebene Nachweisgrenze für die Ca-Konzentration korrigiert werden und es ergibt sich eine Ca-Nachweisgrenze auf Au von

$$c_{Ca} \leq 0.0007ML.$$

In einer früheren Arbeit [70] wurde gezeigt, daß Verunreinigungen mit Sn den (2x1)→(1x1) Übergang an der Au(110)-Oberfläche beeinflussen können. Ebenso können Einflüsse auf den *Rougheningübergang* [64] nicht ausgeschlossen werden. An dem in dieser Arbeit verwendeten Au-Kristall konnte durch AES jedoch kein Sn nachgewiesen werden.

Kapitel 3

Theorie struktureller Phasen-Transformationen an Oberflächen

In diesem Kapitel möchte ich einen kurzen Überblick über die in dieser Arbeit untersuchten Phasen-Transformationen an Oberflächen geben. Nach einer kurzen Einleitung wird die theoretische Beschreibung des $(2 \times 1) \rightarrow (1 \times 1)$ Überganges an der Au(110)(2×1)-Oberfläche diskutiert. Anschließend gebe ich einen kurzen Überblick über die Theorie des *Roughenings*. Als Grundlage dieses Überblicks dienten im wesentlichen Artikel von E.Bauer [63], bzw. H.van Beijeren und I.Nolden [64].

3.1 Einleitung

Phasen-Transformationen (im weiteren durch *PhT* abgekürzt) in Festkörpern, machen sich durch eine stetige oder sprunghafte Änderung der Ordnung eines Teilsystems des Festkörpers als Funktion der Temperatur bemerkbar. Eine *PhT* wird durch das Verhalten der freien Energie $F = U - TS$ des Teilsystems charakterisiert, bzw. durch das Verhalten ihrer Ableitungen nach den thermodynamischen Variablen Temperatur T und Druck p . Hierin sind U die innere Energie und S die Entropie des Systems. Falls $(\partial^n F / (\partial T)^n)_p$, bzw. $(\partial^n F / (\partial p)^n)_T$ eine Unstetigkeitsstelle aufweist, wird die *PhT* n -ter Ordnung genannt.

PhT die durch ein 2D-Ising Modell beschrieben werden, sind 2.Ordnung, und wie im folgenden Kapitel noch erläutert werden wird, ist der *Rougheningübergang* eine *PhT* unendlicher Ordnung.

3.2 Der $(2 \times 1) \rightarrow (1 \times 1)$ Übergang von Au(110) im Rahmen des 2D-Ising Modells

Um die strukturelle *PhT* der Au(110)-Oberfläche im Rahmen des 2D-Ising Modells diskutieren zu können, werde ich zuerst noch einige Definitionen einführen. Eine Phase ist durch ihren Grad der Ordnung charakterisiert, beschrieben durch einen Ordnungsparameter Ψ . Bei Temperaturen in der Nähe des absoluten Nullpunkts wird die Struktur der Oberfläche in einem engen Verhältnis zur Ordnung des Kristallvolumens stehen, d.h. eine hohe Ordnung aufweisen. Der Ordnungsparameter wird nun im reziproken

Raum durch die Fourier-Koeffizienten $\rho_{\vec{G}}(\vec{r})$ der atomaren Dichteverteilung (Besetzungswahrscheinlichkeit) über die Einheitszellen definiert, wobei \vec{r}_i den Ort einer Einheitszelle angibt. Die Dichte-Dichte Korrelationsfunktion

$$\Phi_{\vec{G}}(\vec{r}_i) = \langle \rho_{\vec{G}}(\vec{r}_i) \rho_{\vec{G}}(0) \rangle \quad (3.1)$$

ist ein Maß für die Wahrscheinlichkeit, die atomare Dichte $\rho_{\vec{G}}(\vec{r}_i = 0)$ bei $\vec{r}_i \neq 0$ zu finden. Im Falle eines perfekten Kristalls (langreichweitige Ordnung, punktförmige Masseverteilung) ist demnach

$$\lim_{\vec{r}_i \rightarrow \infty} \Phi_{\vec{G}}(\vec{r}_i) = \text{const} \cdot \delta(\vec{r}_i) \quad (3.2)$$

Für den Fall, daß kein perfekt geordneter oder ein ungeordneter Kristall vorliegt, zeigt die Dichte-Dichte Korrelationsfunktion ein charakteristisches asymptotisches Verhalten auf zwei unterschiedliche Arten: ein 'algebraischer' und 'exponentieller' Zerfall:

$$\lim_{\vec{r}_i \rightarrow \infty} \Phi_{\vec{G}}(\vec{r}_i) = (|\vec{r}_i|/a)^{\eta(\vec{G})} \cdot \delta(\vec{r}_i) \quad (3.3)$$

$$\lim_{\vec{r}_i \rightarrow \infty} \Phi_{\vec{G}}(\vec{r}_i) = c \cdot e^{-|\vec{r}_i|/\xi} \cdot \delta(\vec{r}_i) \quad (3.4)$$

Der Parameter ξ in Gl. (3.4) hat die Funktion einer Korrelationslänge. In Gl. (3.3) korreliert der Zerfall mit der Gitterkonstanten a . Der Exponent η in Gl. (3.3) verändert sich im allgemeinen mit der Temperatur. Bei einem Ordnungs-Unordnungs Übergang, wie z.B. dem *Premelting* oder der *Dekonstruktion* im Ising Modell zeigt der Ordnungsparameter des Systems einen 'exponentiellen' Zerfall nach Gl. (3.4) für Temperaturen oberhalb des Phasenübergangs. Im Falle des *Rougheningübergangs* wird das asymptotische Verhalten des Ordnungsparameters durch einen 'algebraischen' Zerfall charakterisiert (Gl. (3.3)).

3.2.1 Magnetisches Modell für 2D Phasen-Transformationen

Das 2D-Ising Modell wurde ursprünglich zur Beschreibung von Spin-Systemen entwickelt [5] und zur Beschreibung der *Dekonstruktion* der Au(110) Oberfläche abgewandelt [25]. Das 2D-Ising Modell geht von einem physikalischen System aus, indem eine physikalische Größe nur zwei unterschiedliche Zustände annehmen kann; im Falle des Spins, nur Spin-up (+) und Spin-down (-). Zur Beschreibung des Systems wird eine 'Ising-Pseudo-Spin-Variable' s_i eingeführt, die die Werte +1 und -1 annehmen kann. Es kann nun ein allgemeiner Ising-Hamiltonian \mathcal{H}_{Ising} definiert werden:

$$\mathcal{H}_{Ising} = -H \sum_i s_i - \sum_{i \neq j} J_{ij} s_i s_j, \quad (3.5)$$

mit dem effektiven magnetischen Feld H und der 2-Spin Austausch-Wechselwirkungskonstanten J_{ij} . Die magnetischen Variablen H , J und s können nun in die thermodynamischen Variablen ϵ , μ und Θ transformiert werden, wobei ϵ die Bindungsenergie

eines isolierten Oberflächenatoms zum Kristallvolumen und μ das chemische Potential ist.

$$\frac{\epsilon + \mu}{2} = -H - \sum_{i \neq j} J_{ij} \quad (3.6)$$

$$\Theta = (1 - m)/2, \quad (3.7)$$

mit der Magnetisierung m , definiert durch

$$m = \sum_{i=1}^N \langle s_i \rangle. \quad (3.8)$$

Ohne Magnetfeld H (ohne äußeren Einfluß auf die Oberfläche) kann der allgemeine Hamiltonian vereinfacht werden

$$\mathcal{H}_{Ising} = -J \sum_{i \neq j} s_i s_j. \quad (3.9)$$

Der Hamiltonian (Gl.(3.5) und Gl.(3.9)) ist invariant unter der Transformation $H, J, \{s_i\} \rightarrow -H, -J, \{-s_i\}$. Für Gleichung (3.9) ist das Phasendiagramm symmetrisch bezüglich $\Theta = 1/2$.

Die freie Energie des Systems kann aus dem Hamiltonian über die Zustandssumme berechnet werden:

$$F = -k_B T \ln Z = -k_B T \sum_{\{s_i\}} e^{-\mathcal{H}/k_B T} \quad (3.10)$$

Dieses Modell kann auf die Beschreibung von kristallinen Oberflächen übertragen werden, indem ein Wert von $s_i = +1$ mit einem besetzten Gitterplatz an der Oberfläche und ein Wert von $s_i = -1$ mit einem unbesetzten identifiziert wird.

Phasen-Transformationen die durch ein 2D-Ising Modell beschrieben werden können, sind 2.Ordnung, d.h. der Ordnungsparameter verschwindet kontinuierlich bei Annäherung an die kritische Temperatur T_c .

3.2.2 Kritisches Verhalten und Exponenten

In einer PhT 2.Ordnung ändert sich die Ordnung (der oder die Ordnungsparameter Ψ) über einen endlichen Temperaturbereich bis der Ordnungsparameter bei einer kritischen Temperatur T_c verschwindet. Bei Annäherung an T_c haben thermodynamische Größen, durch die das System beschrieben werden, ein asymptotisches (kritisches) Verhalten. Die Korrelationslänge ξ zeigt am Phasenübergang ein asymptotisches Verhalten charakterisiert durch einen kritischen Exponenten ν , in der Form,

$$\xi = \xi_0 |t|^{-\nu}. \quad (3.11)$$

Die reduzierte Temperatur t ist mit $t = |1 - T/T_c|$ definiert. Ein weiterer charakteristischer Exponent η beschreibt den Zerfall der Dichte-Dichte Korrelation (Gl. (3.1)) exakt bei T_c :

$$\Phi(r) = \Phi_0 r^{-\eta}. \quad (3.12)$$

Einem chemischen Potential kann ein effektives Feld h zugeordnet werden (siehe Gl.(3.6)), welches die Ordnung aufrecht erhalten will (Ordnungsfeld). Der Ordnungsparameter Ψ hängt im Ising Modell von der Temperatur T , sowie dem chemischen Potential μ und somit nach Gl. (3.6) vom Ordnungsfeld H ab. Es werden nun drei weitere kritische Exponenten durch das asymptotische Verhalten des Ordnungsparameters $\Psi(T, H)$ und seiner partiellen Ableitung nach H definiert:

$$\Psi(T, 0) = \Psi_0 |t|^\beta \quad (3.13)$$

$$\Psi(T_c, H) = \Psi_h |H|^{1/\delta} \quad (3.14)$$

$$\frac{\partial \Psi}{\partial H}(T, 0) = \Psi_0 |t|^{-\gamma}. \quad (3.15)$$

Die letzte Gleichung (3.15) stellt das Verhalten der Suszeptibilität χ bei magnetischen Systemen, sowie die Kompressibilität bei Teilchensystemen dar. Ein weiterer kritischer Exponent α charakterisiert das asymptotische Verhalten der spezifischen Wärme c_ψ in der Nähe von T_c .

$$c_\psi(T, 0) = c_0 |t|^{-\alpha}. \quad (3.16)$$

Die sechs hier vorgestellten kritischen Exponenten sind nicht unabhängig voneinander, sondern durch die sogenannten *Skalierungsgesetze* verbunden. Auf diese *Skalierungsgesetze* möchte ich an dieser Stelle jedoch nicht eingehen, sondern auf den oben erwähnten Artikel [63] verweisen.

Für das 2D-Ising Modell konnten aus theoretischen Berechnungen die kritischen Exponenten exakt bestimmt werden [5]. Das Ergebnis ist in Tabelle 3.1 dargestellt.

Exponent	β	γ	ν	η	α
Wert	1/8	7/4	1	1/4	0

Tabelle 3.1: Kritische Exponenten des 2D-Ising Modells.

3.2.3 Diskussion des Ising-Modells im Hinblick auf den $(2 \times 1) \rightarrow (1 \times 1)$ Übergang

In diesem Abschnitt möchte ich die Anwendung des Ising-Modells auf den $(2 \times 1) \rightarrow (1 \times 1)$ Übergangs der Au(110)-Oberfläche diskutieren und mit Hilfe des Ergebnisses einer LEED Untersuchung von Campuzano *et al.* [49] belegen.

Die kritischen Exponenten sind aus experimentellen Größen ableitbar. Bei einem Beugungsexperiment an einer (2x1) Überstruktur setzt sich die Intensität der Überstruktur-Reflexe aus einem kohärenten Beitrag, hervorgerufen durch die langreichweitige Ordnung, und einem diffusen Beitrag, verursacht durch Fluktuationen, zusammen [75, S.132]. Die Wurzel aus der Intensität des kohärenten Beitrages ist ein Maß für den Ordnungsparameter Ψ . Aus dem Temperaturverhalten kann der kritische Exponent β bestimmt werden (Gl.(3.13)). Die inverse Halbwertsbreite des diffusen Beitrags ist proportional zur Korrelationslänge ξ . Aus der Bestimmung der temperaturabhängigen Halbwertsbreite kann ν ermittelt werden (Gl. (3.11)). In [75, S.132] wurde gezeigt, daß die Intensität des diffusen Beitrages der dynamischen Suszeptibilität $\chi = \frac{\partial \psi}{\partial h}$ zugeordnet werden kann. Der kritische Exponent γ (Gl. (3.15)) kann durch eine temperaturabhängige Untersuchung der Intensität des diffusen Beitrags bestimmt werden. Die dynamische Suszeptibilität χ und somit die Intensität des diffusen Peaks steigt bei Annäherung an T_c von Temperaturen unterhalb T_c an, um exakt bei T_c zu divergieren (vergl. Gl. (3.15)). Oberhalb T_c fällt χ wieder ab.

Die kritischen Exponenten β , γ und ν des (2x1)→(1x1) Überganges an der Au(110) Oberfläche wurden zum ersten Male in einer Arbeit von Campuzano *et al.* [49] mit Hilfe eines LEED-Experimentes bestimmt. Als Ergebnis erhielten die Autoren aus Fits an die Meßdaten für $\beta = 0.13 \pm 0.022$, $\gamma = 1.75 \pm 0.03$ und $\nu = 1.02 \pm 0.02$. Diese Werte stehen in guter Übereinstimmung mit den theoretischen Werten (vergl. Tabelle 3.1).

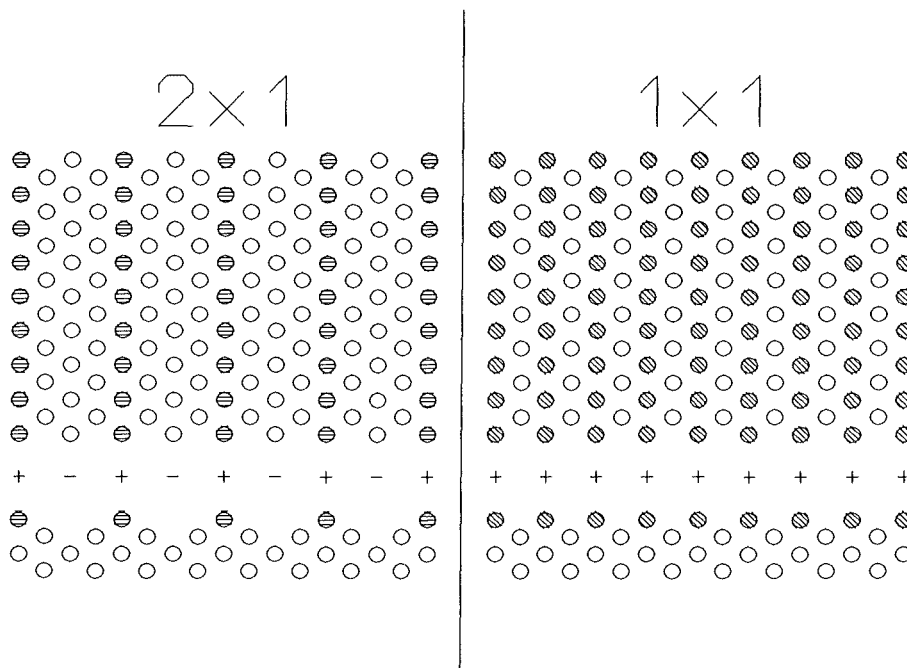


Abb. 3.1: Modell einer (2x1) und einer (1x1)-Oberfläche in Aufsicht (oben) und Schnitt (unten). In der Mitte zwischen beiden Projektionen sind die Werte der 'Ising-Pseudo-Spin-Variablen' angegeben.

In Abbildung 3.1 ist eine Oberfläche in zwei verschiedenen Zuständen gezeigt. Auf der linken Seite wird eine (2x1) Rekonstruktion und auf der rechten Seite eine (1x1)

Struktur gezeigt. Die schraffierten Kreise sollen die Atome der obersten Lage, die offenen, die der zweiten, dritten und vierten Lage darstellen. In der Mitte zwischen Oberflächen- und Schnittdarstellung wurden für die interessierende Richtung ($[001]$ im Falle der Au(110)-Oberfläche) die Werte der entsprechenden 'Ising-Pseudo-Spin-Variablen' angegeben. Wie aus diesem Bild zu ersehen ist, besitzt die (2×1) rekonstruierte Oberfläche in der $[001]$ Richtung eine 'anti-ferromagnetische' und in der $[1\bar{1}0]$ Richtung eine 'ferromagnetische' Ordnung. Im Falle der (1×1) Struktur besitzt die Oberfläche eine 'ferromagnetische' Ordnung in beiden Kristallrichtungen. Würde nur das linke Bild zur Beschreibung des $(2 \times 1) \rightarrow (1 \times 1)$ Phasenübergangs herangezogen, so ist die Übertragung des 2D-Ising Modells auf den *Dekonstruktionsübergang* plausibel. Durch ein Ising-Modell wird jedoch die *PhT* eines geordneten Systems in ein ungeordnetes System beschrieben. Hinweise in dieser Arbeit (Diskussion in Kapitel 5.3.1, Punkt 3) zeigen jedoch, daß der $(2 \times 1) \rightarrow (1 \times 1)$ Übergang kein Ordnungs-Unordnungs-Übergang, sondern ein Ordnungs-Ordnungs-Übergang sein könnte. In gewissem Sinne kann dieser Übergang jedoch auch im Rahmen eines Ising Modells diskutiert werden. Wenn als Ordnungsparameter die integrale Intensität eines halbzahligen Beugungsreflexes genommen wird, der ja ausschließlich durch die Rekonstruktion verursacht wird, so verschwindet dieser bei der *PhT*. Der Ordnungsparameter dieser *PhT* verhält sich also wie der eines Ordnungs-Unordnungs-Überganges.

Aus der obigen Diskussion und den Ergebnissen von Campuzano *et al.* [49], bzw. Ergebnissen für β und ν aus [116] und dieser Arbeit (vergl. Kapitel 5.1.3 und Kapitel 5.1.4) wird gefolgert, daß der $(2 \times 1) \rightarrow (1 \times 1)$ Übergang sehr gut im Rahmen eines 2D-Ising Modells beschrieben werden kann.

3.3 Der Rauhgigkeits-Übergang

Ein Rauhgigkeits-Übergang ist makroskopisch durch das Verschwinden einer Facette, d.h. einer ebenen Kristallfläche bestimmter Symmetrie, charakterisiert. Die Übergangstemperatur wird im allgemeinen für Flächen verschiedener Orientierung unterschiedlich sein. Mikroskopisch zeigt sich ein Rauhgigkeits-Übergang an einer Oberfläche im thermodynamischen Gleichgewicht durch spontane Stufenbildung.

Ein experimenteller Nachweis des Rauhgigkeits-Übergangs (im folgenden *Roughening*) wurde im Zusammenhang mit Beobachtungen der makroskopischen Form von Einkristallen im thermodynamischen Gleichgewicht gegeben [26]. Später wurden an Cu vizinal Flächen der Orientierung $(11m)$, mit $m = 3, 5, 7$, [51, 52, 55, 62] sowie an Ni vizinal Flächen mit der selben Orientierung ($m = 3, 5$) [88] Beugungsexperimente mit thermischen He-Atomen durchgeführt, um die *Roughening*-Temperatur als Funktion der Oberflächenstruktur zu bestimmen. In diesem Teil des Kapitels möchte ich nun die theoretische Beschreibung des *Roughening* diskutieren, wie sie z.B. in [64] zusammengefaßt wurde.

3.3.1 Makroskopische Beschreibung

Die makroskopische Beobachtung des *Roughening* basiert auf Untersuchungen der Form kleiner Kristallite deren Durchmesser in der Größenordnung einiger μm ist. Diese Beobachtungen wurden an verschiedensten Materialien, wie z.B. bei den Metallen Au, Pb und In [26], bei NaCl Kristalliten [61] und ^4He Kristallen bei Temperaturen unterhalb 1.35K [59], durchgeführt. Hierbei wurde beobachtet, daß Facetten unterschiedlicher Orientierung nicht in scharfen Kanten aneinander grenzen, sondern durch abgerundete Bereiche voneinander getrennt sind. Zusätzlich konnte das verschwinden von Facetten mit verschiedener Orientierung bei unterschiedlichen Temperaturen festgestellt werden. Dies läßt den Schluß zu, daß die Temperatur bei der eine Facette verschwindet von der Orientierung und somit von der Struktur der Oberfläche abhängt. Die thermodynamisch stabile Form eines Kristalles wird dadurch charakterisiert, daß seine freie Oberflächenenergie minimiert wird. Eine geometrische Bestimmung der Kristallform wird mit Hilfe der Wulff-Konstruktion durchgeführt [1], die an dieser Stelle nur kurz erläutert wird, um bei späteren Diskussionen auf bestimmte Sachverhalte zurückgreifen zu können.

Nehmen wir an, die Oberflächenspannung oder Oberflächenenergie je Flächenelement $\sigma(\hat{n})$ sei als Funktion der Orientierung \hat{n} gegeben. Eine Minimalfläche, die stabile Kristallform also, erhält man, indem für jede Richtung \hat{n} eine Ebene senkrecht zu \hat{n} in einer Entfernung $\lambda\sigma(\hat{n})$ vom Ursprung konstruiert wird. λ ist ein Parameter, durch den die makroskopischen Ausmaße des Kristalls definiert werden. Die Minimalfläche ist nun die Einhüllende aller Ebenen. Diese geometrische Konstruktion kann auch in analytischer Form abgeleitet werden [123]. In Abbildung 3.2 sind zwei Beispiele einer Wulff-

Konstruktion in zwei Dimensionen gezeigt. Die äußere Kurve zeigt die Oberflächenspannung $\lambda\sigma(\hat{n})$, die innere die Kristallform im thermodynamischen Gleichgewicht. In Abb. 3.2a ist eine Kristallform bei einer Temperatur gezeigt, bei der keine Facette mehr vorhanden ist, d.h. oberhalb des *Roughening*-übergangs. Abb. 3.2b zeigt einen Kristall bei $T=0$, bei dem alle Facetten in Kanten aneinander stoßen, d.h. die Stufenbildung hat noch nicht eingesetzt. Wie deutlich zu erkennen ist, zeigt im ersten Fall $\sigma(\hat{n})$ keine Spitze, ist also stetig differenzierbar, im zweiten Fall treten in der Oberflächenspannung Spitzen bei den entsprechenden Orientierungen auf. Durch diese Spitzen entstehen Facetten der entsprechenden Kristallorientierungen im Wulff-Plot. Das *Roughening* kann also durch das Verschwinden von Spitzen in der Oberflächenspannung $\sigma(\hat{n})$ charakterisiert werden. Die *Roughening*-Temperatur $T_R(\hat{n})$ ist durch die Temperatur definiert, bei der die Flächen der Facette mit Orientierung \hat{n} verschwindet.

Eine ausführliche Diskussion der makroskopischen Form von Kristallen und den makroskopischen Beobachtungen des *Roughening* wird in einem Artikel von M.Wortis [76] gegeben.

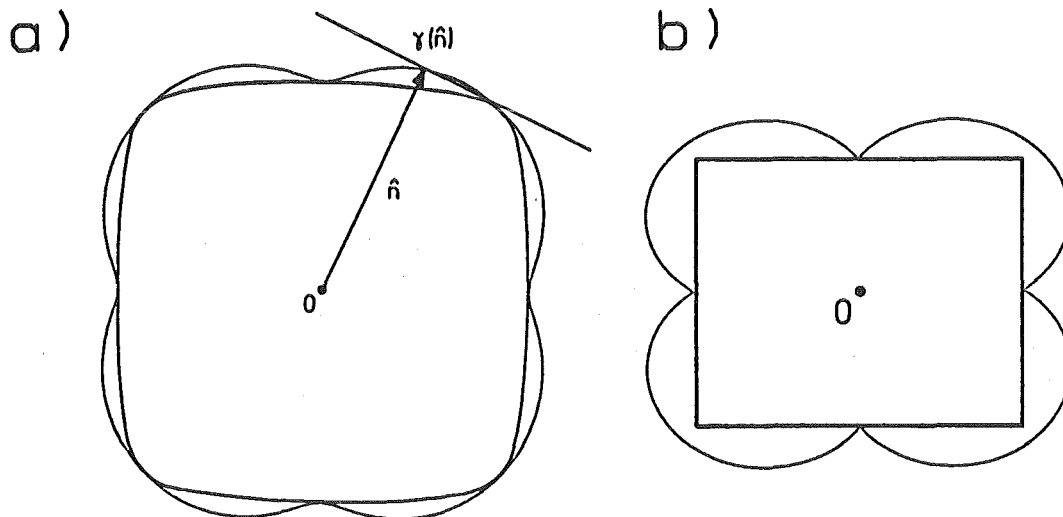


Abb. 3.2: Zwei Beispiele für die Wulff-Konstruktion in zwei Dimensionen. Bild a) zeigt eine Kristallform oberhalb der *Roughening*-Temperatur, in b) wird eine Kristallform für $T=0$ gezeigt. Die äußere Linie definiert die Oberflächenspannung $\sigma(\hat{n})$, die innere die Kristallform im thermodynamischen Gleichgewicht. (Abb. nach [76])

3.3.2 Mikroskopische Beschreibung

Um eine mikroskopische Beschreibung des *Roughening* zu erhalten, wird ein einfaches Kristallmodell definiert. Das einfachste Modell ist das eines Kristalls bestehend aus harten Blöcken kubischer Symmetrie. Dieses Modell ist auch als *Kossel-Kristall* [3] bekannt. In diesem Modell werden reale Eigenschaften, wie z.B. Gitterschwingungen,

Verlagerungen und Fehlstellen, vernachlässigt. Trotzdem können mit Hilfe dieses Modells realistische Ergebnisse gewonnen werden. Chui und Weeks modifizierten dieses Modell [16]. Sie beschrieben das Modell von Kossel im Rahmen eines *lattice gas* oder 3D-Ising Modells. Hierbei wird die Existenz einer gasförmigen Phase eingeführt und die Grenze zwischen Kristall und Dampf (Oberfläche) des Kristalls wird durch den Sprung im Dichtegradienten definiert. Die gasförmige Phase konnte jedoch nur sehr unrealistisch simuliert werden, da auch hier die Atome nur an festen 'Gitterpositionen' definiert waren. Dieses Modell wurde als SOS (Solid-on-Solid) Modell eingeführt und beschreibt (001)-Oberflächen eines primitiv kubischen Kristalls. Chui und Weeks konnten hierbei zum ersten Mal qualitative Aussagen über den *Rougheningübergang* machen.

Im Gegensatz zum $(2 \times 1) \rightarrow (1 \times 1)$ Phasenübergang genügt zur Beschreibung des *Rougheningüberganges* nicht mehr ein reines 2D-Modell. Das *Roughening* kann nur unter Berücksichtigung der 3. Dimension korrekt im Modell beschrieben werden. Erste Ansätze durch Burton *et al.* [7] im Rahmen eines 2D-Modells zeigten deshalb keine realistische Beschreibung des Phänomens.

Das SOS-Modell

Das SOS-Modell basiert auf der Annahme, daß die Atome nur auf festen Gitterplätzen sitzen und über ihre nächsten Nachbarn wechselwirken. Die Atome (oder Atompositionen) werden als strukturlose Kuben definiert. Hierbei wird auf einem rechteckigen Grundgitter für jeden Gitterplatz (i, j) eine ganzzahlige Höhenvariable h_{ij} definiert, die angibt, bis zu welcher maximalen Höhe der Gitterplatz (i, j) besetzt ist. Die Energie einer bestimmten Konfiguration $\{h_{ij}\}$ ist definiert durch:

$$E\{h_{ij}\} = J \sum_{i,j,i \neq j} (|h_{i,j} - h_{i+1,j}| + |h_{i,j} - h_{i,j+1}|), \quad (3.17)$$

d.h. die Energie ist proportional zur Anzahl der ungesättigten Nächsten-Nachbar-Bindungen. Die Konstante J ist die mittlere Bindungsenergie zwischen nächsten Nachbarn

Trotz dieser sehr einfachen Beschreibung können mit dem SOS-Modell viele Kristalleigenschaften qualitativ und in einigen Fällen auch quantitativ bestimmt werden. Es wurde unter anderem auf die Beschreibung des Kristallwachstums erfolgreich angewandt.

Freie Energie der Stufen

Die freie Energie f^S einer Stufe pro Einheitslänge und Einheitsstufenhöhe wird definiert durch:

$$f^S = f_r - f_s, \quad (3.18)$$

mit f_r der freien Energie je Einheitsfläche einer gestuften (rauen) Oberfläche und f_s der freien Energie der identischen Oberfläche ohne Stufen. Diese Definition ist unabhängig vom SOS-Modell universell gültig.

Aus der Zustandssumme (Gl. (3.10)) des SOS-Modells kann ein analytischer Ausdruck für die freie Energie einer Stufe (Gl. (3.18)) gefunden werden [64]. Aus der Oberflächenspannung $\sigma(\hat{n})$ als Funktion der freien Stufenenergie f^S wird in [64] gefolgert, daß eine Facette eines makroskopischen Kristalls verschwindet, falls die freie Stufenenergie verschwindet ($f^S = 0$), d.h. an der Fläche die zu der entsprechenden Facette gehört findet ein *Rougheningübergang* statt.

Höhenfluktuationen

Im SOS-Modell ist eine ideale flache Oberfläche dadurch gekennzeichnet, daß die Höhenvariable h_{ij} über die gesamte Oberfläche $\{ij\}$ einen konstanten Wert besitzt. Dies ist jedoch nur für $T=0$ der Fall. Betrachten wir den Mittelpunkt $(0,0)$ eines $N \times N$ Quadrates (i,j) . Für eine Temperatur $T > T_R$ werden sich lange geschlossene Stufen auf der Oberfläche bilden. In diesem Fall wird die Höhe h_{00} um einen thermischen Mittelwert $\langle h_{00} \rangle$ fluktuieren. Dies ist eine alternative Möglichkeit den rauen Zustand einer Oberfläche zu charakterisieren. Man erhält

$$\begin{aligned} \lim_{N \rightarrow 0} \langle (h_{00} - \langle h_{00} \rangle)^2 \rangle &= \infty, \quad \text{für } T > T_R, \\ &= \text{const}, \quad \text{für } T < T_R. \end{aligned} \quad (3.19)$$

Die eckigen Klammern stehen für eine Mittelung über eine Gleichgewichtsverteilung der Oberfläche $\{i,j\}$. Eine andere Beschreibung für Gleichung (3.19) ist die **Höhen-Höhen-Korrelationsfunktion**, die die mittlere quadratische Höhendifferenz zwischen zwei Punkten auf der Oberfläche beschreibt. In Abhängigkeit von der Temperatur findet man:

$$\begin{aligned} \lim_{R_{ij,kl} \rightarrow \infty} \langle (h_{ij} - h_{kl})^2 \rangle &= \infty, \quad \text{für } T > T_R, \\ &= 0, \quad \text{für } T < T_R, \end{aligned} \quad (3.20)$$

wobei $R_{ij,kl}$ der Abstand zwischen dem Gitterplatz (i,j) und (k,l) ist. Die Höhen-Höhen-Korrelationsfunktion divergiert oberhalb T_R logarithmisch mit wachsendem Abstand $R_{ij,kl}$, d.h.

$$\langle (h_{ij} - h_{kl})^2 \rangle \sim \log \left[\frac{R_{ij,kl}}{\xi} \right], \quad \text{für } R_{ij,kl} \rightarrow \infty. \quad (3.21)$$

Die Größe ξ hat hier die Funktion einer Korrelationslänge. In Worten ausgedrückt bedeutet Gl. (3.21), daß die quadratische Rauigkeitstiefe der Oberfläche logarithmisch mit wachsendem Abstand $R_{ij,kl}$ zunimmt.

In Abbildung 3.3 ist ein Ergebnis einer Monte-Carlo-Simulationsrechnung von Chui und Weeks [29] zu sehen. In Abb. 3.3b ist die Entwicklung einer gestuften *vizinal*¹

¹Benachbarte Flächen; in der Nachbarschaft der niedrig indizierten Flächen.

Fläche zu sehen. In dieser Simulation ist das Verschwinden der ursprünglichen Stufen oberhalb T_R deutlich zu erkennen.

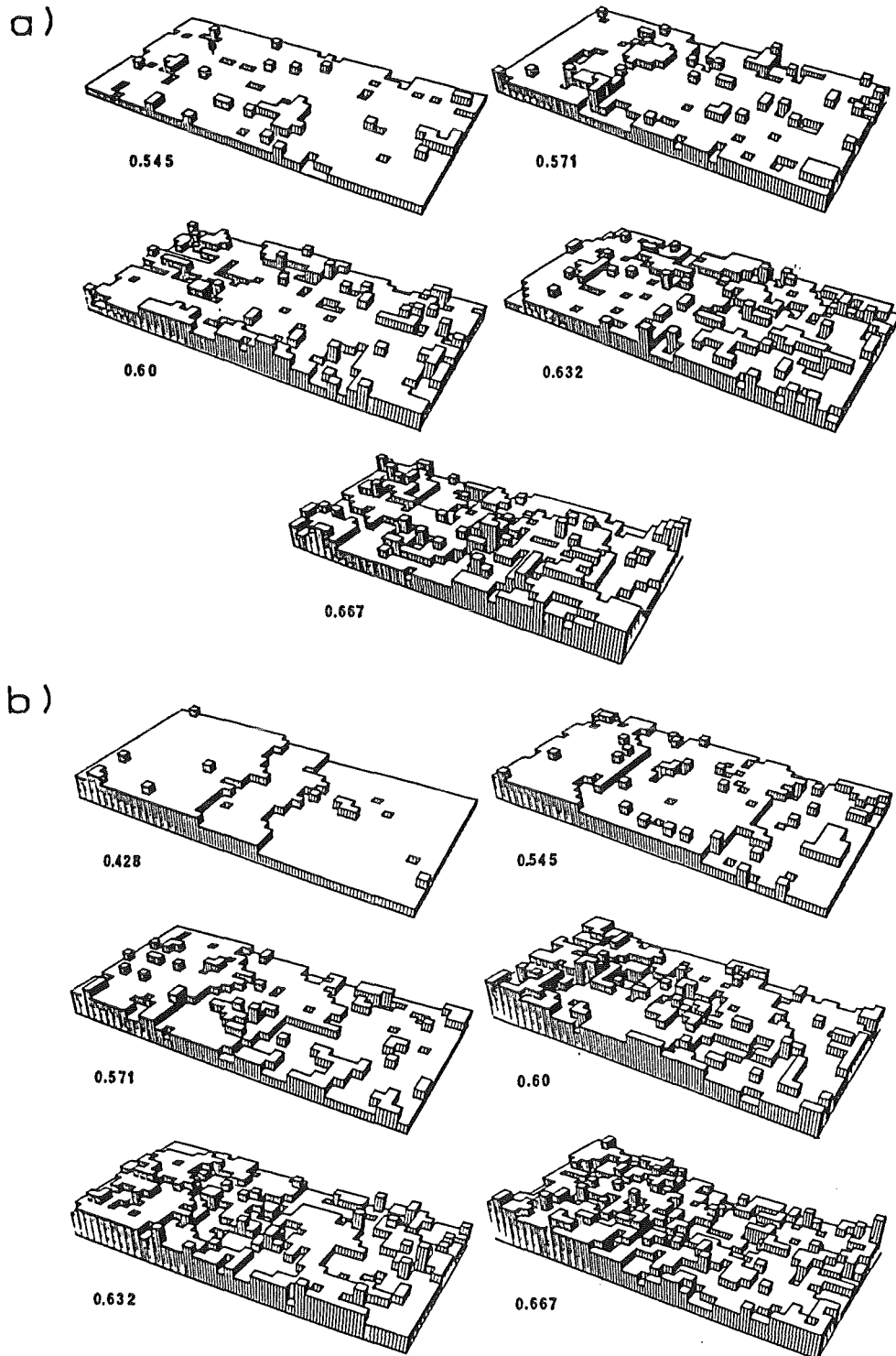


Abb. 3.3: Durch Monte-Carlo-Simulation ermittelte Konfigurationen einer (001) SOS-Oberfläche nach [29] im thermodynamischen Gleichgewicht. Die Zahlenangaben an den Teilbildern entsprechen Temperaturen: $0.71T_R$ (0.428), $0.91T_R$ (0.545), $0.95T_R$ (0.571), $1.00T_R$ (0.60), $1.05T_R$ (0.632) und $1.11T_R$ (0.667). In a) ist eine ebene (001) Oberfläche, in b) eine gestufte (001)-Oberfläche (vizinal Fläche), gezeigt.

Statistische Mechanik des SOS-Modells

Eine präzise quantitative Beschreibung des *Rougheningübergangs* folgt hauptsächlich aus Modellrechnungen der statistischen Mechanik, z.B. des SOS-Modell. Diese Berechnungen sind im wesentlichen durch Lösungen im Rahmen einer Renormalisierungs-Gruppen-Theorie durchgeführt worden. Die Renormalisierungs-Gruppen gehen im allgemeinen von der Zustandssumme des SOS-Modells aus. Als Wechselwirkungs-Potential wird hierbei ein Rechteck-Potential angenommen. Diese einfache Annahme wird durch erstaunlich gute Ergebnisse gerechtfertigt. Die wohl erfolgreichsten Arbeiten auf diesem Gebiet stammen von Villain *et al.* [51] und Kosterlitz *et al.* [14]. Aus der Renormalisierungs-Gruppen-Theorie nach Kosterlitz [14] konnten einige thermodynamische Größen mit hoher Genauigkeit abgeleitet werden:

Roughening-Temperatur:

Die *Roughening*-Temperatur für das SOS-Modell konnte mit [18]

$$T_R = J/(k_B \ln 2) \approx 1.45J/k_B \quad (3.22)$$

bestimmt werden. Die Größe J ist die in Gl. (3.17) eingeführte Bindungsenergie. Dieses Ergebnis ist in guter Übereinstimmung mit Computersimulationen [21].

Freie Energie einer Stufe:

Die freie Energie einer Stufe in der Nähe von T_R zeigt ein kritisches Verhalten mit [18]

$$\begin{aligned} f^S &\approx f^0 \exp \left[-A/(T_R - T)^{1/2} \right], & T < T_R \\ &= 0, & T > T_R. \end{aligned} \quad (3.23)$$

Die Konstanten f^0 und A sind nicht universell. Bei der *Roughening*-Temperatur T_R zeigt die freie Stufenenergie eine schwache Singularität. Die freie Energie ist unendlich oft nach der Temperatur differenzierbar aber nicht analytisch darstellbar, d.h. der *Rougheningübergang* ist eine *PhT* unendlicher Ordnung.

Korrelations Länge:

Die Korrelations Länge (Gl. (3.20)) zeigt im SOS-Modell in der Nähe von T_R die gleiche Singularität wie die freie Stufenenergie (Gl. (3.23)) [18]:

$$\begin{aligned} \xi &\approx \xi^0 \exp \left[A/(T_R - T)^{1/2} \right], & T < T_R \\ &= \infty, & T \geq T_R. \end{aligned} \quad (3.24)$$

Die Konstante A ist hier dieselbe wie in Gl. (3.23).

Da beim *Rougheningübergang* die thermodynamischen Größen eine sehr schwache Singularität bei T_R zeigen, ist es schwierig aus diesen Größen die Übergangstemperatur

des Phasenübergang experimentell zu bestimmen. Aus der Divergenz der Korrelationslänge ξ für $T > T_R$ (Gl. (3.24)) läßt sich ableiten, daß sich beim *Rougheningübergang* Stufen verschiedener Höhen entwickeln werden. Deshalb kann der *Rougheningübergang* durch Auftreten von mehrfachen Stufenhöhen charakterisiert werden. In mehreren Arbeiten (z.B. [51]) wurde gezeigt, daß sich bei einer logarithmischen Divergenz der Höhen-Höhen-Korrelationsfunktion (Gl. (3.21)) die Peakform von Reflexen bei Beugungsexperimenten oberhalb T_R durch eine Exponentialfunktion der Form

$$I(k_{\parallel}) = A \cdot |k_{\parallel}|^{-n(T)}, \quad (A = \text{const.}) \quad (3.25)$$

beschreiben läßt. Der Exponent $n(T)$ steigt monoton mit der Temperatur an und besitzt bei T_R exakt den Wert '1'. Durch Bestimmung dieses Exponenten aus den Beugungsreflexen als Funktion der Temperatur kann die *Roughening-Übergangstemperatur* T_R ermittelt werden. Dies ist in [104] für die Pb(110)-Oberfläche gezeigt worden.

Das BCSOS-Modell

Um andere Kristallsymmetrien als die einfach kubischen zu modellieren, wurde das SOS-Modell durch van Beijeren [18] zu dem BCSOS (body centered solid-on-solid) Modell erweitert. In diesem Modell wird das quadratische Kristallgitter in zwei Untergitter geteilt, wobei im einen Untergitter die Höhenvariable h nur ganzzahlige Werte ($0, \pm 1, \pm 2, \dots$) und im anderen nur halbzahlige Werte ($\pm 1/2, \pm 3/2, \dots$) annehmen kann. Zusätzlich ist der Höhenunterschied zwischen Nachbarplätzen auf halbzahlige Werte von $\pm 1/2$ beschränkt. Van Beijeren zeigte, daß dieses Modell isomorph mit dem von Lieb *et al.* eingeführten 6-Vortex-Modell [13] ist. Jayaprakash [39] zeigte, daß alle Aussagen über das kritische Verhalten der physikalischen Größen im SOS-Modell auch auf das BCSOS-Modell (für eine (001)-Oberfläche) zutreffen.

Modellrechnungen für die Au(110)-Oberfläche

Rechnungen von Levi und Touzani [87] mit dem 6-Vortex-Modell ergaben eine Abschätzung der *Roughening*-Temperatur für die Au(110) Oberfläche. Als Resultat erhielten sie, daß der *Rougheningübergang* mit der *Dekonstruktion* gekoppelt sei, d.h. daß beide gleiche Übergangstemperatur haben sollten.

Um verschiedene Oberflächenstrukturen, wie z.B. eine (2x1) rekonstruierte fcc(110)-Oberfläche simulieren zu können, wurde das SOS-Modell und das BCSOS-Modell noch weiter modifiziert. Diese Erweiterungen wurden im Rahmen eines anisotropen² BCSOS [95, 96], bzw. anisotropen 3D-Ising-Modell [97] gemacht. Eine dritte Abwandlung stammt von den Nijs [94, 105], der ein RSOS (restricted SOS) Modell einführte. Für den Fall der (2x1) rekonstruierten Au Oberfläche wurde das RSOS Modell noch um

²Gemeint ist hier die Anisotropie in der Nächsten-Nachbar-, bzw. Übernächsten-Nachbar-Wechselwirkung.

eine Chiralität erweitert [105], um die möglichen Konfigurationen der rekonstruierten Oberflächenstruktur zu berücksichtigen.

Die eben aufgeführten Arbeiten untersuchten die Struktur der Oberfläche in Abhängigkeit von der Anisotropie der Wechselwirkung und Temperatur. Den Nijs [94, 105] sagte für die rekonstruierte Au(110)(2x1) Oberfläche einen *Dekonstruktionsübergang* unterhalb T_R voraus, der durch Bildung von Einfachstufen induziert werden soll. Oberhalb T_c wird ein Kosterlitz-Thouless (KT) *Rougheningübergang* vorhergesagt. In der Arbeit von Jug und Tosatti [95] wurde durch Berechnung eines Phasendiagrammes ein 'Multiphasen' Übergang bei T_c vorausgesagt. Bei T_c wird die Bildung von Bereichen verschiedener Strukturen ((1x1), (2x1), (3x1), (4x1) und (5x1)) erwartet. Im Temperaturbereich zwischen T_c und T_R existiert ein Gemisch aus allen Phasen. Ab einer Temperatur T_R , die von der Anisotropie abhängt, wird ein KT *Rougheningübergang* vorausgesagt.

Es existiert nur eine Arbeit, in der eine konkrete Abschätzung der *Roughening*-Temperatur durchgeführt wurde. Villain und Vilfan [77] diskutierten den *Dekonstruktionsübergang* im Rahmen eines anisotropen 2D-Ising Modells. In dieser Arbeit wird als Abschätzung für die *Roughening*-Temperatur in Zusammenhang mit Ergebnissen eines LEED-Experimentes von Wolf *et al.* [22] ein Wert relativ zur *Dekonstruktions*-Temperatur T_c angegeben, mit

$$T_R \approx 1.14T_c, \quad (3.26)$$

d.h. der *Rougheningübergang* wird in dieser Arbeit auch oberhalb T_c vorausgesagt.

Orientierungsabhängigkeit des Rauigkeitsüberganges

In He-Beugungsexperimenten an unterschiedlich orientierten Cu Oberflächen [51, 52, 55, 62] wurde die Abhängigkeit von T_R von der Oberflächenorientierung untersucht. Hierbei wurden folgende Werte gefunden:

Orientierung	T_R (K)
Cu(113)	479
Cu(115)	380
Cu(117)	315

Tabelle 3.2: *Roughening*-Temperatur in Abhängigkeit der Orientierung an Cu(11n)-Oberflächen

Es ist deutlich zu erkennen, daß für höher indizierte, d.h. offenere Oberflächen die *Roughening*-Übergangstemperatur sinkt. Mit anderen Worten, je offener eine Oberfläche ist, desto thermisch instabiler gegenüber Stufenbildung ist sie. In einer theoretischen Arbeit von Villain *et al.* [51] wurde für Kupfer ein Vergleich der experimentellen Daten mit theoretischen Abschätzungen durchgeführt. Hierbei wurde eine gute Übereinstimmung der Ergebnisse gefunden.

T_R für unterschiedliche Materialien

Bisher wurden fünf fcc(110)-Oberflächen im Hinblick auf einen *Rougheningübergang* durch Beugungsexperimente (LEED, Röntgenbeugung und Beugung mit thermischen He-Atomen) untersucht: Cu(110) [67], Pb(110) [84, 104], Ag(110) [69, 106], Al(110) [114, 117] und Au(110) [112, 118, 116]. In diesen Experimenten und bei den Untersuchungen der Au(110)-Oberfläche in dieser Arbeit wurden folgende Ergebnisse bezüglich *Preroughening*- und *Rougheningübergang* gefunden:

Metall	Prerough.	Roughening	T_R
Al(110)	X	X	$\sim 690\text{K}$ ($\sim 0.74T_m$)
Cu(110)	–	X	$\sim 873\text{K}$ ($\sim 0.55T_m$)
Pb(110)	O	X	415K ($\sim 0.7T_m$)
Ag(110)	–	X	723K–790K ($\sim 0.61T_m$)
Au(110)	X	X	690K–700K ($\sim 0.52T_m$)

Tabelle 3.3: *Roughening*-Temperatur unterschiedlicher fcc(110) Metalloberflächen. Ein 'X' in der entsprechenden Spalte bedeutet, daß das entsprechende Phänomen beobachtet wurde. Ein 'O' bedeutet Hinweise auf das entsprechende Phänomen.

Angemerkt sei jedoch, daß an der Cu(110)-Oberfläche durch ein Beugungsexperiment mit He-Atomen [82] – im Gegensatz zum Beugungsexperiment mit Röntgenstrahlen [67] – kein *Rougheningübergang* beobachtet wurde. Die Ursache dieses widersprüchlichen Verhaltens ist jedoch noch nicht geklärt.

Der *Rougheningübergang* könnte ein Vorläufer des *Premelting* Effektes sein. Bisher wurde an drei der in Tabelle 3.3 aufgeführten Oberflächen der *Premelting* Effekt nachgewiesen: An Pb(110) [48, 79], Al(110) [60, 101] und an Au(110) [119, 120].

Kapitel 4

Beugungstheorie

In diesem Kapitel soll nun auf die Möglichkeit näher Eingegangen werden, Stufen an Oberflächen im atomaren Bereich mit Beugungsexperimenten zu analysieren. Hierzu wird eine Beschreibung der Beugung im Rahmen der kinematischen Theorie diskutiert. Im ersten Teil dieses Kapitels wird ein kurzer Überblick über phänomenologische Ergebnisse der Beugung an Oberflächendefektstrukturen gegeben. Im zweiten Teil soll die Anwendung einer von Lu *et al.* [36] entwickelten theoretischen Beschreibung von Beugungsexperimenten an Oberflächen mit statistischen Stufen beispielhaft aufgezeigt werden. Die Theorie wurde gegenüber [36] derart erweitert, daß eine Beschreibung von Mehrfachstufen und lateralen Defekten an der Au(110)(2x1)-Oberfläche möglich war.

4.1 Phänomenologische Beschreibung von Beugungsexperimenten an Oberflächen mit Stufen

In diesem Teil des Kapitels möchte ich auf die phänomenologische Beschreibung der Beugungsexperimente an Oberflächen mit Stufen eingehen. Hierbei wird versucht das Profil der Beugungsreflexe ($I(k_{\parallel})$) durch Konstruktion des reziproken Raumes qualitativ zu erklären. Dies möchte ich anhand einiger einfach zu überblickender Beispiele vorführen.

Als Diskussionsgrundlage des nun Folgenden, dienten Arbeiten von Henzler [17, 34, 74], bzw. Welkie und Lagally [31].

4.1.1 Mosaikstruktur

Reale Kristalle bestehen aus einzelnen, mehr oder weniger großen Kristalliten. Von einem Einkristall spricht man, wenn die einzelnen Kristallite innerhalb eines kleinen Winkelbereichs einheitlich orientiert sind. Ein Maß für die mittlere Abweichung der Orientierung der Kristallite gibt die *Mosaikbreite*, die angibt, um welchen mittleren Winkel die Orientierung der einzelnen Kristallite von einer Hauptorientierung abweicht. Die Winkelverteilung um die mittlere Orientierung wird im allgemeinen als Gaußverteilung angenommen, deren Halbwertsbreite die Mosaikbreite angibt. Bei Metalleinkristallen von guter Qualität liegt die Mosaikbreite zum Beispiel unterhalb 0.2° . In Abbildung 4.1 wird der Einfluß der Mosaikbreite auf die Breite eines Beugungsreflexes verdeutlicht.

Bei der Ewald-Konstruktion muß der Kreis um den ausgezeichneten Punkt $\vec{K} = 0$ geschlagen werden. Hierbei wird erkennbar, daß sich die Reflexe linear mit wachsendem Impulsübertrag k , d.h. mit wachsendem Radius des Ewald-Kreises, verbreitern.

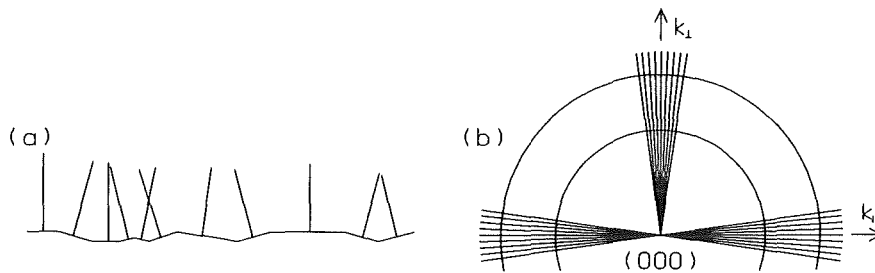


Abb. 4.1: Verdeutlichung des Einflusses einer Mosaikstruktur auf den reziproken Raum. In (a) wird eine Oberfläche skizziert, bei der die einzelnen Kristallite gegen die mittlere Orientierung um einen kleinen Winkel verkippt sind. In (b) wird der reziproke Raum für diese Anordnung skizziert. Da hierdurch die Periodizität des Kristalls gestört wird, gibt es durch die Brechung der Symmetrie im reziproken Raum einen ausgezeichneten Punkt $\vec{K} = 0$. An der durch die Kreise angedeuteten Ewald-Konstruktion ist erkennbar, daß mit wachsendem \vec{K} (größerem Radius der Ewald-Kugel) die Schnittfläche von Ewald-Kugel und reziproken Gitterstangen größer wird, d.h. die Reflexe werden breiter.

Da sich die Breite der Reflexe als Funktion des Impulsübertrages nur relativ langsam und linear ändert, kann der Einfluß einer vorhandenen Mosaikstruktur leicht von anderen Beiträgen zur Reflexbreite separiert (entfaltet) werden. Bei großer Mosaikbreite sollte der Impulsübertrag bei einer Messung der Reflexform möglichst klein gewählt werden, um den Einfluß der Mosaikstruktur gering zu halten. Dies wurde bei den hier vorgestellten Experimenten berücksichtigt.

4.1.2 Stufen

In diesem Teilkapitel möchte ich den Einfluß von Stufen auf Beugungsprofile diskutieren. Hierbei unterscheide ich bei der Charakterisierung in der relativen Anordnung der Stufen zueinander:

1. Regelmäßige (periodische) Stufen, d.h. Stufen mit gleicher Terrassenbreite.
2. Statistisch verteilte Stufen.

Während an *vizinal* Flächen periodische Stufen auftraten, bilden sich statistisch verteilte Stufen im thermischen Gleichgewicht oberhalb der *Roughening*-Temperatur.

Regelmäßige (periodische) Stufen

Da in dieser Arbeit keine Untersuchungen an regelmäßig gestuften Oberflächen durchgeführt wurden, möchte ich hier nur beispielhaft deren Auswirkungen in Beugungsexperimenten aufzeigen, um den Unterschied zu statistisch angeordneten Stufen zu verdeutlichen.

Periodische Stufen sind an Festkörperoberflächen nicht die Regel und können nur gezielt erzeugt werden. Eine Möglichkeit regelmäßige Stufen herzustellen besteht darin, einen Einkristall unter einem kleinen Winkel gegenüber einer kristallographischen Hauptorientierung zu schneiden. Hierdurch werden die sogenannten *vizinal* Flächen hergestellt.

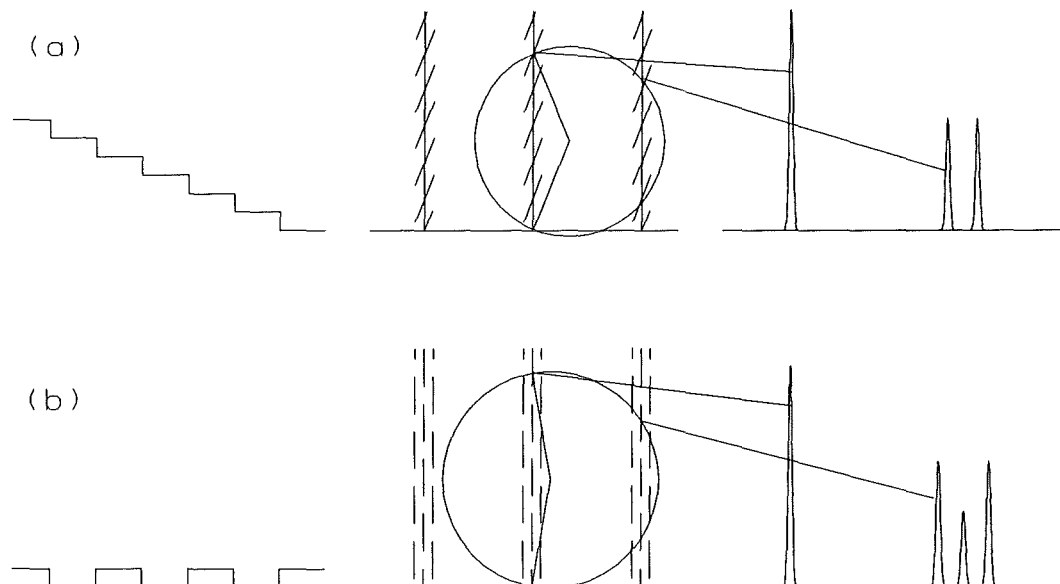


Abb. 4.2: Einfluß von regelmäßig angeordneten Stufen auf das Peakprofil. In den linken Teilbildern ist der reale Raum, in den mittleren Teilbildern der reziproke Raum und rechts die Peakprofile für zwei verschiedene Werte von k_{\perp} dargestellt. Die eingezeichneten Kreise in den mittleren Teilbildern zeigen die Ewald-Konstruktion. Das linke Profil zeigt den Peak an einer in-phasen Bedingung, während das rechte Profil eine anti-phasen Bedingung darstellt. In Bild (a) ist der Fall einer *vizinal* Fläche skizziert. In (b) fällt die Orientierung der Oberfläche mit einer kristallographischen Hauptrichtung zusammen. Hierzu müssen gleichviel auf- wie abwärts Stufen vorhanden sein.

Der Einfluß von regelmäßigen Stufen auf die Beugungsprofile ist sehr markant. Deshalb lassen sich die Profile von Beugungsexperimenten auch relativ einfach interpretieren und die Struktur somit leicht charakterisieren. In Abbildung 4.2a wird der Einfluß von regelmäßigen Stufen, die einer *vizinal* Fläche entsprechen, auf das Beugungsprofil gezeigt. Das Peakprofil ganz links entspricht einem senkrechten Impulsübertrag, bei

dem die Ewaldkugel nur einen reziproken Gitterstab schneidet. Dieser Impulsübertrag entspricht im realen Raum gerade einer Wellenlänge, die ein ganzzahliges Vielfaches der Stufenhöhe entspricht. Dieser Fall wird auch *in-phasen Bedingung* genannt. Bei dieser Bedingung ist nur ein sehr scharfer Reflex zu sehen. Die Halbwertsbreite des Peaks entspricht, unter der Annahme keinerlei sonstiger Gitterfehler oder Störungen, der apparativen Auflösung. Bei anderen Werten von k_{\perp} werden zwei, oder unter bestimmten Bedingungen sogar drei Peaks zu sehen sein. Dieser Fall ist im rechten Peakprofil dargestellt. Diese Bedingung wird auch *außer-phasen Bedingung* genannt. Falls der Wert für k_{\perp} exakt zwischen zwei in-phasen Bedingungen liegt, bezeichnet man dies als *anti-phasen Bedingung*. Wie man sich an der Skizze des reziproken Raumes deutlich machen kann, verändert sich das Peakprofil periodisch mit k_{\perp} . Der Abstand der aufgespaltenen Peaks nimmt kontinuierlich zu und wieder ab. Wie in den skizzierten Peakprofilen erkennbar, ändert sich die Halbwertsbreite der Peaks nicht.

In Abbildung 4.2b ist der Fall regelmäßiger auf- und abwärts Stufen skizziert. In diesem Fall gibt es auch nur einen Peak bei der in-phasen Bedingung. Im Falle der außer-phasen Bedingung tritt bei bestimmten Werten von k_{\perp} eine spontane Aufspaltung in drei Peaks auf, wobei sich der Abstand der Peaks nicht mehr mit senkrechtem Impulsübertrag ändert. Auch hier ist das Peakprofil periodisch in k_{\perp} , wobei sich auch hier die Halbwertsbreite der Peaks nicht ändert.

Statistisch verteilte Stufen

Ich möchte zuerst den Begriff der *statistischen Stufen* genauer definieren. Unter statistischen Stufen versteht man Stufen, deren Verteilung keinerlei Korrelation besitzt und die von ebenen Terrassen statistisch verteilter Breite getrennt sind. Im Besonderen darf zwischen den Stufen keine Wechselwirkung auftreten, die eine Korrelation zwischen den Stufen herstellen könnte. Da die statistisch verteilten Stufen in einem späteren Abschnitt noch genauer diskutiert werden, möchte ich an dieser Stelle nur eine kurze Übersicht erörtern.

Im Gegensatz zu periodischen Stufen zeigen sich statistisch verteilte Stufen nicht so prägnant im Peakprofil. In den meisten Fällen wird keine Aufspaltung, sondern eine charakteristische Verbreiterung der Peaks beobachtet. Diese Verbreiterung ist jedoch nur bei einer großen Stufendichte¹ oder durch Beugungsexperimente mit großer Auflösung, wie z.B. SPA-LEED, beobachtbar.

¹Große Stufendichte bedeutet, daß der mittlere Abstand der Stufenkanten kleiner als ca. 10 Gitterkonstanten ist.

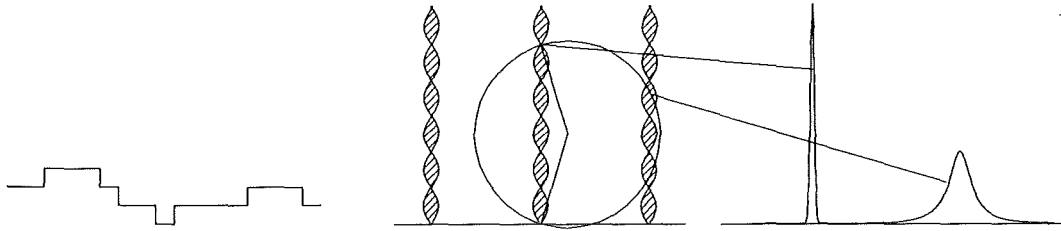


Abb. 4.3: Beispiel für den Einfluß von statistisch verteilten Stufen auf das Peakprofil. Im linken Teilbild ist der reale Raum, im mittleren der zugehörige reziproke Raum skizziert. Der eingezeichnete Kreis im mittleren Teilbild zeigt die Ewald-Konstruktion. Im rechten Teilbild zeigt das linke Profil, den Peak bei einer in-phasen Bedingung, das rechte Profil bei einer außer-phasen Bedingung.

Mit Hilfe von Abbildung 4.3 möchte ich kurz das Zustandekommen dieser charakteristischen Verbreiterung diskutieren. Im reziproken Raum verändern sich die Gitterstangen durch den Einfluß statistischer Stufen zu periodisch angeordneten 'Zigarren'. Im rechten Teilbild ist wieder das Peakprofil bei zwei verschiedenen Werten von k_{\perp} gezeigt. Das linke Profil zeigt den Peak bei einer in-phasen Bedingung, wobei das Profil nur durch die apparative Auflösung gegeben ist. Bei einer außer-phasen Bedingung ist das Peakprofil stark verbreitert. Die verbreiterte Peakform ist in den meisten Fällen sehr 'Lorentzähnlich'. Die exakte Peakform wird im folgenden Teil genauer diskutiert. Anhand der Ewald-Konstruktion ist erkennbar, daß die Peakbreite periodisch in Abhängigkeit von k_{\perp} oszilliert.

4.2 Berechnung der Peakprofile

Im folgenden wird eine Theorie diskutiert, die als Grundlage aller quantitativen Auswertungen dieser Arbeit diene. Diese Theorie basiert auf Arbeiten von Lu, Lagally, Precicci, Fenter und Pimbley [36, 43, 44, 46], in denen die Berechnung von Beugungsprofilen an gestuften Oberflächen, im Rahmen der kinematischen Beugungstheorie, entwickelt wurde. Um dies auf die hier untersuchte Au(110)(2x1)-Oberfläche anwenden zu können, wurden einige Modifikationen und Erweiterungen zur Berechnung von Beugungsprofilen an einer Oberfläche mit Mehrfachstufen und lateralen Defekten in der Rekonstruktion durchgeführt.

In diesem Teilkapitel möchte ich zuerst das Wahrscheinlichkeits-Modell für Stufen diskutieren, um dann später einen Ausdruck zur Berechnung des Beugungsprofils herzuleiten. Im dritten Abschnitt wird dann die Anwendung der Theorie auf die in dieser Arbeit untersuchte Au(110)(2x1)-Oberfläche spezifiziert und diese dann im vierten Abschnitt anhand einiger Beispiele zu diskutieren.

In Kapitel 5 werden die experimentellen Ergebnisse im Vergleich mit Modellrechnungen nach der hier vorgestellten Theorie quantitativ diskutiert.

4.2.1 Das Wahrscheinlichkeitsmodell für Stufen an Oberflächen

Der Einfachheit halber wird im folgenden nur ein eindimensionales Modell der Oberflächenstruktur diskutiert. Unter bestimmten Voraussetzungen kann das eindimensionale Modell leicht auf zwei Dimensionen erweitert werden. Es wird angenommen, daß Stufen nur in Einheiten der kleinsten atomaren Höheneinheit d (Netzebenenabstand) sowie in Vielfachen von d auftreten können.

Das Auftreten von Stufen an Oberflächen soll im folgenden über *Wahrscheinlichkeiten* definiert werden. γ_h sei die Wahrscheinlichkeit für das Auftreten eines Oberflächenatoms, welches gegenüber einem seiner Nachbarn um eine Höhe hd , mit $h = 1, 2, \dots$, verschoben ist. Die gesamte Wahrscheinlichkeit, eine Stufe beliebiger Höhe anzutreffen, ist demnach:

$$\gamma = \sum_{h=1}^H \gamma_h, \quad (4.1)$$

wobei H die maximale Stufenhöhe – in atomaren Einheiten d – darstellt, die im System auftreten kann.

Gehen wir davon aus, daß das Auftreten einer Stufe von rein statistischen Gesetzmäßigkeiten geprägt wird (Markov Prozesse [27]) und daß zwei benachbarte Stufen nichts voneinander wissen – mit anderen Worten, daß keine Wechselwirkung zwischen den Stufen existiert – so läßt sich die Verteilungsfunktion der Terrassenbreiten W in

Einheiten der lateralen Gitterkonstanten a , die zwei Stufen voneinander trennen, durch eine geometrische Verteilung beschreiben [36]:

$$P(W) = \gamma(1 - \gamma)^{W-1}. \quad (4.2)$$

In dieser Formel stellt der Ausdruck $(1 - \gamma)^{W-1}$ die Wahrscheinlichkeit dar, beim Überqueren von $W - 1$ Gitterplätzen, beginnend bei einem beliebigen Platz, **keine** Stufe anzutreffen, während γ die Wahrscheinlichkeit beschreibt, beim Wechsel von der $(W - 1)$ 'ten zur W 'ten Position eine Stufe anzutreffen. Das Produkt von $(1 - \gamma)^{W-1}$ und γ definiert deshalb die Wahrscheinlichkeit, Terrassen mit der Breite $(W \cdot a)$ auf der Oberfläche anzutreffen. Geometrische Verteilungen sind in vielen natürlichen Prozessen, insbesondere in Wachstumsprozessen, beobachtbar. Ein wichtiges Beispiel stellt das Wachstum von Polymer-Ketten dar, deren Längenverteilung einer geometrischen Verteilung genügt [8].

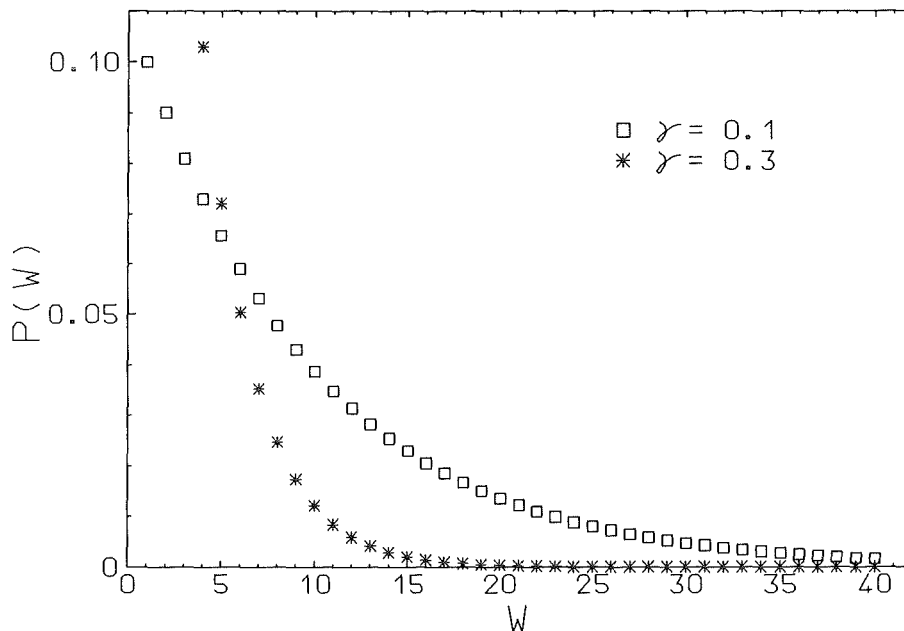


Abb. 4.4: Geometrische Verteilungsfunktion der Terrassenbreiten W . Die Wahrscheinlichkeit, beim Wechsel von einem zum nächsten Gitterplatz eine Stufe zu treffen, ist γ .

In Abbildung 4.4 wird die geometrische Verteilung für zwei Werte von γ beispielhaft dargestellt. Die Wahrscheinlichkeit eine gewisse Terrassenbreite anzutreffen nimmt exponentiell mit steigender Breite W ab. Die Wahrscheinlichkeit sehr große Terrassen zu finden ist somit stark unterdrückt. Sobald eine Wechselwirkung zwischen den Stufen existiert, wird sich diese Verteilungsfunktion ändern. Wenn z.B. eine abstoßende Wechselwirkung existiert, so wird die Breitenverteilung bei kleinen Terrassenbreiten W kein Maximum, sondern ein Minimum besitzen, und die maximale Häufigkeit liegt bei $W > 1$ (siehe auch [20]). In dieser Arbeit wird jedoch nur die geometrische Terrassenbreitenverteilung diskutiert, da die mittlere gemessene Terrassenbreite so groß ist (γ so klein ist), daß eine eventuelle Wechselwirkung in sehr guter Näherung vernachlässigt werden kann.

Eine mittlere Terrassenbreite $\langle W \rangle$ ist für beliebige Verteilungsfunktionen definiert durch:

$$\langle W \rangle a = a \sum_w W P(W). \quad (4.3)$$

Im Spezialfall der geometrischen Verteilungsfunktion errechnet sich die mittlere Terrassenbreite $\langle W \rangle$ nach [44] zu:

$$(\langle W \rangle - 1)a = \left(\frac{1 - \gamma}{\gamma} \right) a. \quad (4.4)$$

In dieser Diskussion wurde bis jetzt keinerlei Aussagen über die Stufenhöhenverteilung gemacht. Unter der Annahme, daß die Stufenhöhenverteilung keine Abhängigkeit von der Terrassenbreitenverteilung besitzt, was sicherlich eine sehr gute Annahme darstellt, ist die Verteilungsfunktion der Terrassenbreiten für jedes γ dieselbe, was auch immer für eine Verteilung die γ_h 's haben. In den meisten Modellen wird angenommen, daß die Oberfläche entweder monoatomare Stufen besitzt, d.h. $\gamma = \gamma_1$, oder, daß die Höhenverteilung auch einer geometrischen Verteilungsfunktion gehorcht. Die zweite Annahme ist jedoch, meiner Meinung nach, nicht realistisch, da in realen Systemen die Höhe der verschiedenen Stufen nicht völlig unabhängig voneinander sein wird, sondern sich energetischen und strukturellen Gegebenheiten anpaßt.

Dieses Modell kann auf zwei Dimensionen erweitert werden, indem die Annahme gemacht wird, daß die Terrassenbreitenverteilung der einen Richtung unabhängig sei von der Terrassenbreitenverteilung der anderen. Dies ist sicherlich nur richtig, falls angenommen wird, daß die mittleren Terrassenbreiten in beiden Richtungen sehr groß sind. Falls dies nicht der Fall wäre, dann wäre die Form der Peakprofile und die integralen Peakintensitäten eine Funktion des Azimuths. Es würde notwendig, die Peakprofile als Funktion des Azimuths zu messen.

4.2.2 Berechnung der Beugungs-Peak-Profile für das Wahrscheinlichkeitsmodell der Stufen

Wie in Kapitel 4.1.2 schon diskutiert wurde, verändern ausgedehnte Defekte, wie z.B. Stufen, die Winkelverteilung der Intensität der Beugungsreflexe $I(k_{\parallel})$ nachhaltig. In diesem Abschnitt möchte ich einen Ausdruck zur Berechnung von Intensitätsprofilen herleiten, wie er in [36] gegeben wurde.

Zuerst müssen einige grundlegende Annahmen gemacht werden:

- Die $I(k_{\parallel})$ -Profile werden nicht von Vielfachstreuung beeinflusst.
- Die $I(k_{\parallel})$ -Profile werden nicht von Strukturparametern senkrecht zur Oberfläche beeinflusst (wie z.B. Relaxation, bzw. Buckling).
- Inelastische Streuung wird vernachlässigt.
- Der Debye-Waller-Faktor wird nicht berücksichtigt.

Mit diesen Voraussetzungen und unter der zusätzlichen Annahme, daß der einfallende Strahl (Elektronen, Röntgenstrahlen oder He-Atome) in Form einer ebenen Welle mit der komplexen Amplitude $A_i = A_0 \exp(i\vec{k}_0 \cdot \vec{r})$ beschrieben werden kann, läßt sich ein Ausdruck für die gebeugte Intensität finden. Ausgehend von der komplexen Streuamplitude A_f findet man:

$$A_f = A_0 \left[\sum_{n=1}^N f_n(\vec{q}) \exp(i\vec{q} \cdot \vec{r}_n) \right] \exp(i\vec{k}_{out} \cdot \vec{r}). \quad (4.5)$$

A_0 ist in diesem Ausdruck eine Proportionalitätskonstante, \vec{k}_0 der Wellenvektor der einfallenden Welle und \vec{r} ein Ortsvektor. Im Ausdruck für die gebeugte Welle ist $f_n(\vec{q})$ die atomare Streuamplitude (abhängig vom Impulsübertrag!) des n -ten Atoms an der Position \vec{r}_n . Die Summation wird über die Anzahl N der beteiligten Streuzentren ausgeführt. Der Ausdruck $\vec{q} = \vec{k}_{out} - \vec{k}_0$ definiert den Impulsübertrag beim Streuvorgang wobei \vec{k}_{out} der Wellenvektor der ausfallenden Welle ist. Die Vektoren \vec{k}_0 und \vec{k}_{out} sind durch Energie- und Impulssatz miteinander verknüpft:

$$E = \frac{\hbar^2}{2m} |\vec{k}_0|^2 = \frac{\hbar^2}{2m} |\vec{k}_{out}|^2 \quad (4.6)$$

$$\vec{k}_{out} = \vec{k}_0 + \vec{q} \quad (4.7)$$

Die in Klammern umfaßte Summe in Gleichung (4.5) ist der Strukturfaktor \mathcal{S} . Um nun den Einfluß der Stufen an der Oberfläche richtig zu berücksichtigen, wird ein zusätzlicher Phasenfaktor im Strukturfaktor eingeführt, der die Phasenverschiebung darstellt, die durch Beugung an Terrassen unterschiedlicher Höhe verursacht wird. Somit läßt sich der Strukturfaktor \mathcal{S} unter Ausnutzung der Bragg-Beziehung schreiben als:

$$\mathcal{S}(\vec{q}) = \sum_{n=1}^N f_n(\vec{q}) \exp[i\Phi(n)] \exp[in\vec{q} \cdot \vec{a}]. \quad (4.8)$$

N ist hierbei die Anzahl der berücksichtigten Streuer, \vec{a} der laterale Gittervektor senkrecht zu den Stufen und $\Phi(n)$ die zusätzliche Phase an der Position n , hervorgerufen

durch eine Stufe. Unter der Annahme von identischen Punktstreuern, d.h. $f_n(\vec{q}) \equiv 1$ und Vernachlässigung des Debye-Waller-Faktors, läßt sich die Intensität berechnen durch:

$$\begin{aligned} I(\vec{q}) &= \mathcal{S}(\vec{q}) \cdot \mathcal{S}^*(\vec{q}) \quad (* = \text{konjugiert Komplex}) \\ &= \sum_{n,n'}^N \exp[i\{\Phi(n') - \Phi(n)\}] \exp[i(n' - n)\vec{q} \cdot \vec{a}]. \end{aligned} \quad (4.9)$$

Unter einer Transformation der Indices $m = n - n'$ und der Einführung eines über benachbarte Gitterplätze gemittelten komplexen Phasenfaktors $f \equiv \langle \exp[i\Phi(1)] \rangle$, kann die Doppelsumme in eine Einfachsumme über m vereinfacht werden, und man findet den folgenden Ausdruck [36] für die Intensität:

$$I(\vec{q}) = \sum_{m=0}^{N-1} N(m)(f)^m \exp[im\vec{q} \cdot \vec{a}] + \sum_{m=1}^{N-1} N(m)(f^*)^m \exp[-im\vec{q} \cdot \vec{a}]. \quad (4.10)$$

Die Anzahl N der Streuer ist nun vom Index m abhängig. Dies läßt sich wie folgt plausibel machen: Durch die Überführung der Doppelsumme in eine Einfachsumme wurde durch die Mittelung des Phasenfaktors die Summation über alle Atompositionen einer Terrasse implizit ausgeführt. Die Summation wird nun nur noch über Terrassen des Index m ausgeführt. Hierbei wird mit der Anzahl $N(m)$ der Streuzentren der m 'ten Terrasse multipliziert. Die Größe f wird auch *Grenz-Strukturfaktor* genannt. Mit dem Ansatz $f = \rho e^{i\Psi}$, mit $\rho = |f|$ und $\Psi = \arctan(\Im m(f)/\Re e(f))$ kann Gleichung (4.10) wie folgt umgeschrieben werden:

$$I(\vec{q}) = \sum_{m=0}^{N-1} N(m)\rho^m \exp[im(\vec{q} \cdot \vec{a} + \Psi)] + \sum_{m=1}^{N-1} N(m)\rho^m \exp[-im(\vec{q} \cdot \vec{a} + \Psi)] \quad (4.11)$$

Unter der Annahme, daß $N \gg 1/(1 - \rho)$ ist, lassen sich die Anzahl der Streuer $N(m)$ pro Terrasse in guter Näherung als konstant annehmen. Wird dies in Gl. (4.11) berücksichtigt, dann kann in Gleichung (4.11) im Grenzfall für sehr große $N(m)$ (aber $N(m)$ bleibt endlich), $N(m)$ durch N ersetzt werden. In diesem Fall kann Gleichung (4.11) als geometrische Summe geschrieben werden. Als Resultat erhält man einen geschlossenen Ausdruck für die Intensität:

$$I(\vec{q}) = N \frac{1 - \rho^2}{1 + \rho^2 - 2\rho \cos(\vec{q} \cdot \vec{a} + \Psi)}. \quad (4.12)$$

Für $f = f^* = \rho = 1$ ist die Intensität proportional zu N und geht für $|\vec{q}| \rightarrow n \frac{2\pi}{|\vec{a}|}$, $n = 0, 1, \dots$ gegen ∞ , bzw. die Breite der Peaks geht gegen Null: Das Peakprofil geht in eine δ -Funktion über. Für zwei Fälle kann die Bedingung $\rho = 1$ erfüllt werden: (1) $\gamma \equiv 0$; oder mit anderen Worten, die Oberfläche hat keine Stufen, sowie (2) $\gamma \neq 0$ aber $\Phi(1)$ ist ein Vielfaches von 2π . Diese Bedingung wird für bestimmte Werte von k_{\perp} erfüllt und stellt die schon diskutierten in-phasen Bedingungen dar.

Der obige Ausdruck für die Intensität (Gleichung (4.12)) besitzt nur exakte Gültigkeit, falls die erwähnte Näherung $N(m) \rightarrow N$ gut erfüllt ist. Dies ist nur der Fall, falls die mittlere Terrassenbreite $\langle W \rangle a \gg a$ ist. In diesem Fall kann der Einfluß der endlichen Breite einer Terrasse eines bestimmten Höhenniveaus auf das Beugungsprofil vernachlässigt werden.

4.2.3 Berechnung des Grenz-Strukturfaktors

In diesem Unterkapitel möchte ich den Grenz-Strukturfaktor f für die in dieser Arbeit untersuchte Au(110)-Oberfläche herleiten. Deshalb wird zuerst der Grenz-Strukturfaktor f für das einfachere Beispiel einer unrekonstruierten fcc(110)-Oberfläche hergeleitet, um dann den Grenz-Strukturfaktor für eine (2x1) rekonstruierte fcc(110)-Oberfläche anzugeben. Um im folgenden die Beugung von Wellen an einer Oberfläche mit unterschiedlichen Höhenniveaus beschreiben zu können, wird eine Phasendifferenz Φ_h^\pm zwischen gebeugten Wellen von unterschiedlichen Terrassen eingeführt. Das unterschiedliche Vorzeichen wird durch aufwärts (+), bzw. abwärts (-) Stufen der Höhe h definiert.

$$\Phi_h^\pm = \vec{q} \cdot \Delta \vec{r}_h^\pm. \quad (4.13)$$

Der Phasensprung wird durch einen Translationsvektor $\Delta \vec{r}_h^\pm$ verursacht, der die Verschiebung des periodischen Oberflächengitters angibt, die durch eine Stufe verursacht wird. Nach [36] kann eine allgemeine Darstellung für f angegeben werden:

$$f = (1 - \gamma) + \sum_{h=1}^H \gamma_h [\beta \exp(i\Phi_h^+) + (1 - \beta) \exp(i\Phi_h^-)]. \quad (4.14)$$

Der erste Summand $(1 - \gamma)$ ist ein Ausdruck dafür, daß kein Phasensprung stattfindet, falls bei einem Wechsel von einer Position zur nächsten **keine** Stufe gefunden wurde. Im zweiten Term wird über alle möglichen Stufenhöhen summiert, um eine gemittelte Phase zu erhalten. Der Faktor β ist ein Ausdruck für die Symmetrie in der Anzahl der aufwärts (+), bzw. abwärts (-) Stufen. Ein Wert von $\beta = 0.5$ bedeutet gleich viel aufwärts, wie abwärts Stufen. Der Grenzfall mit einem Wert von $\beta = 1.0$ stellt z.B. einen Fall dar, in dem nur aufwärts Stufen vorkommen.

In Abbildung 4.5 wird eine entsprechende fcc(110) Oberfläche mit zwei Stufen skizziert. Wie zu sehen ist, erzeugen Stufen an einer solchen Oberfläche nicht nur eine vertikale, sondern zusätzlich noch eine horizontale Translation. Der Translationsvektor ist definiert durch:

$$\Delta \vec{r}_h^\pm = \left(\frac{1}{2}h - 1\right)\vec{a} \pm h d \hat{c}, \quad \text{mit} \quad \hat{c} = \frac{\vec{c}}{|\vec{c}|}. \quad (4.15)$$

Eine Höheneinheit der Stufe ist gegeben durch $d = |\vec{c}|/2$. Zu jeder Höheneinheit kommt noch eine vertikale Translation in Einheiten der Größe einer halben Einheitszelle $a/2$ mit $a = |\vec{a}|$. Die Phasendifferenz, definiert durch Gleichung (4.13) ist somit:

$$\Phi_h^\pm = \left(\frac{1}{2}h - 1\right)q_{\parallel}a \pm h d q_{\perp}. \quad (4.16)$$

Da es grundsätzlich möglich sein kann, daß die vertikale Verschiebung nicht exakt eine halbe Gittereinheit ist (inkommensurable Stufen), wird der Faktor $\frac{1}{2}$ durch einen Parameter α ersetzt. Die Phasendifferenz läßt sich somit schreiben:

$$\Phi_h^\pm = (\alpha h - 1)q_{\parallel}a \pm h d q_{\perp}. \quad (4.17)$$

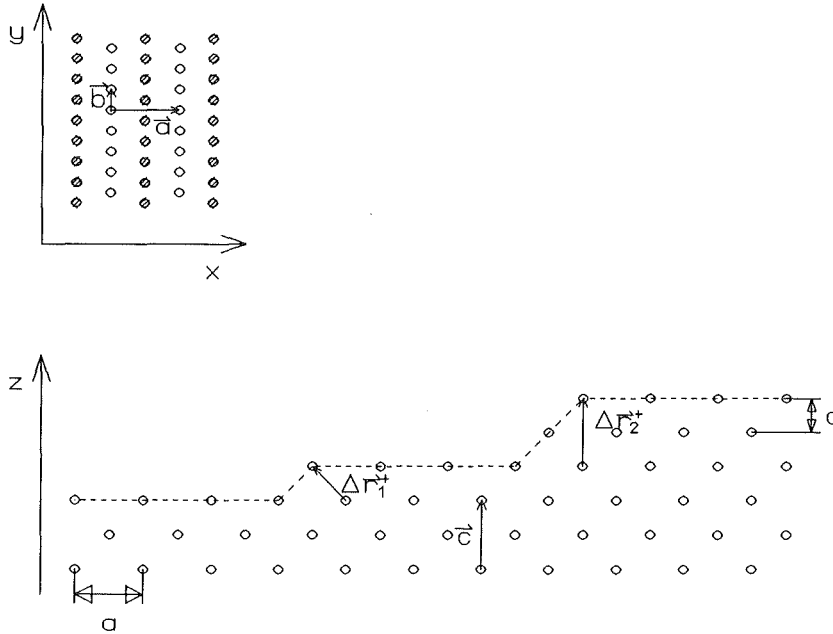


Abb. 4.5: Schematisches Modell einer Oberfläche mit ABAB-Stapelung, mit dem z.B. eine fcc(110)-Oberfläche beschrieben werden kann. In der Aufsicht auf die Oberfläche wurden die sichtbaren Atome in der zweiten Lage schraffiert dargestellt. Im vertikalen Schnittbild (unten) sind zwei aufwärts Stufen mit einer (Einfachstufe), bzw. zwei (Zweifachstufe) Höheneinheiten d skizziert und die zugehörigen Translationsvektoren Δr_h^+ eingezeichnet.

Wird Gleichung (4.17) in (4.14) eingesetzt, so folgt ein Ausdruck des Grenz-Strukturfaktors für die unrekonstruierte fcc(110)-Oberfläche:

$$f = 1 - \gamma + \sum_{h=1}^H \gamma_h \left\{ \beta e^{i[(\alpha h - 1)q_{\parallel} a + h d q_{\perp}]} + (1 - \beta) e^{i[(\alpha h - 1)q_{\parallel} a - h d q_{\perp}]} \right\}. \quad (4.18)$$

Bei der Erweiterung von Gleichung (4.18) auf (2x1) rekonstruierte Oberflächen ist nur zu berücksichtigen, daß die Größe der Einheitszelle a in der entsprechenden Richtung verdoppelt wird, wohingegen die horizontale Translation bei einer kommensurablen Stufe immer noch $\frac{1}{2}$ ist. Gleichung (4.18) läßt sich leicht auf (2x1) rekonstruierte fcc(110)-Oberflächen erweitern, indem die 1 im ersten Term der zwei Exponenten durch eine 2 ersetzt wird. In [44] wurde der Grenz-Strukturfaktor einer fcc(110)(2x1)-Oberfläche für den Fall monoatomarer Stufen hergeleitet. Der Grenz-Strukturfaktor für eine (2x1) rekonstruierte fcc(110) Oberfläche mit beliebigen Stufenhöhen ergibt sich ganz analog zu Gl. (4.18):

$$f = 1 - \gamma + \sum_{h=1}^H \gamma_h \left\{ \beta e^{i[(\alpha h - 2)q_{\parallel} a + h d q_{\perp}]} + (1 - \beta) e^{i[(\alpha h - 2)q_{\parallel} a - h d q_{\perp}]} \right\}. \quad (4.19)$$

Zusätzlich zu Stufen, erzeugen auch laterale Fehler in der Ordnung der rekonstruierten Oberfläche laterale Phasensprünge. Diese Fehlstrukturen werden auch als *Domänenwände* bezeichnet. Diese Domänenwände trennen geordnete (2x1) Bereiche,

die einen lateralen Phasensprung relativ zueinander haben. Da dies, bezogen auf die laterale Periodizität der (2x1) Struktur, einem Phasensprung von π entspricht, werden diese Domänenwände auch als *Anti-Phasengrenzen* bezeichnet. Ich möchte diese Domänenwände wie in der Literatur üblich [77] als *Ising-Defekte* einführen. Die Motivation für die Namenswahl ist bei der Diskussion des (2x1) \rightarrow (1x1) Phasenüberganges im vorherigen Kapitel deutlich geworden.

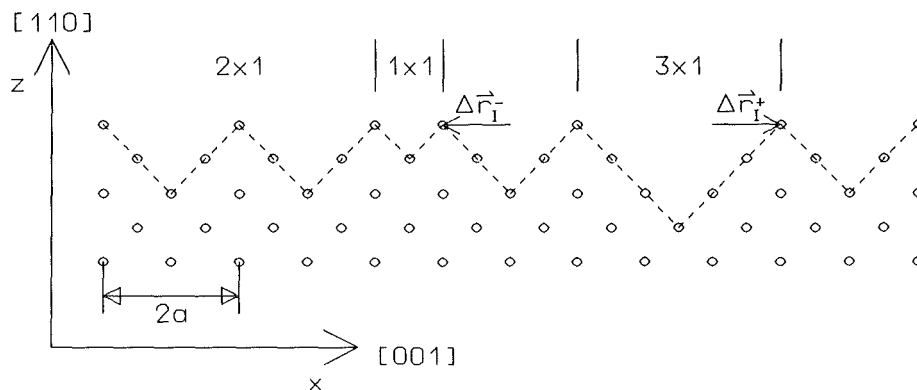


Abb. 4.6: Schematisches Modell einer rekonstruierten Au(110)(2x1)-Oberfläche. Im linken Bereich ist eine (1x1) Anti-Phasengrenze die einen Translationsvektor von $\Delta\vec{r}_I^- = -\vec{a}$ besitzt und rechts eine (3x1) Anti-Phasengrenze mit ihrem zugehörigen Translationsvektor von $\Delta\vec{r}_I^+ = +\vec{a}$. Die Anti-Phasengrenzen werden als *Ising-Defekte* bezeichnet.

In Abbildung 4.6 wird ein Schnitt in [001] durch eine fcc(110)(2x1) rekonstruierte Oberfläche mit zwei verschiedenen Ising-Defektsorten skizziert. Ein *Ising-Defekt* ist eine Anti-Phasengrenze durch eine lokale (1x1) Struktur. Die zweite Möglichkeit besteht darin, daß die (2x1) Struktur durch einen lokalen (3x1) 'Graben' gestört ist. Bei beiden Arten von *Ising-Defekten* entsteht ein identischer Phasensprung, jedoch von unterschiedlichem Vorzeichen. Der von *Ising-Defekten* hervorgerufene Phasensprung soll im folgenden als Φ_I^\pm bezeichnet werden, mit:

$$\Phi_I^\pm = \pm q_{\parallel} a \quad (4.20)$$

Das unterschiedliche Vorzeichen bezieht sich hier auf den spezifischen *Ising-Defekt*: '+' steht für einen (3x1) 'Graben' und '-' für eine (1x1) 'Wand' (siehe Abbildung 4.6). Um eine mögliche Asymmetrie zwischen beiden Arten von Defekten zu berücksichtigen, wird noch, ähnlich wie der Asymmetrie-Parameter β für auf-, bzw. abwärts Stufen, ein Asymmetrie-Parameter δ eingeführt. Damit ergibt sich ein Grenz-Strukturfaktor für fcc(110)(2x1)-Oberflächen, der alle Stufenhöhen sowie *Ising-Defekte* beinhaltet mit:

$$f = 1 - \gamma - \epsilon + \sum_{h=1}^H \gamma_h \left\{ \beta e^{i[(\alpha h - 2)q_{\parallel} a + h d q_{\perp}]} + (1 - \beta) e^{i[(\alpha h - 2)q_{\parallel} a - h d q_{\perp}]} \right\} + \epsilon [\delta e^{-i q_{\parallel} a} + (1 - \delta) e^{i q_{\parallel} a}]. \quad (4.21)$$

Der zusätzliche Parameter ϵ gibt die Wahrscheinlichkeit an, bei einem Wechsel von einer Gitterposition zur nächsten einen der beiden möglichen *Ising-Defekte* zu finden. Ein Wert von $\delta = 0.5$ bedeutet, daß beide Defektarten gleich wahrscheinlich sind, während

ein Wert von $\delta = 1.0$ aussagt, daß nur (1x1) Wände vorhanden sind. Der erste Term mit $1 - \gamma - \epsilon$ gibt die Wahrscheinlichkeit an, weder eine Stufe noch einen *Ising-Defekt* bei einem Wechsel von einer Position zur Nächsten zu finden. Aus diesem Grund ist leicht einzusehen, daß für γ und ϵ die Normierungsbedingung $\gamma + \epsilon \leq 1.0$ erfüllt sein muß.

In Gleichung (4.14) wurde der Parameter β eingeführt, der ein Maß für die Symmetrie zwischen auf-, bzw. abwärts Stufen ist. Bei Oberflächen, deren Orientierung jedoch nicht exakt mit einer Hauptsymmetrierichtung übereinstimmt², führt diese Mißorientierung automatisch zu einer Asymmetrie in den auf-, bzw. abwärts Stufen. Der Zusammenhang zwischen Mißorientierungswinkel Θ und Asymmetrie-Parameter β ist nach [44] für fcc(110)-Oberflächen:

$$\beta = \frac{\sqrt{2}(P + \alpha\gamma)}{\gamma} \tan \Theta + \frac{1}{2} \quad (4.22)$$

Der Parameter P steht für die Größe der Einheitszelle in Einheiten des Einheitsvektors der unrekonstruierten Einheitszelle $|\vec{a}|$ in [001] Richtung. Für eine (2x1) Rekonstruktion ist $P = 2$.

²In der Realität führt der Schnitt des Kristalls meistens zu einer Mißorientierung von einigen zehntel Grad.

4.2.4 Beispiele für Peakprofile an gestuften Oberflächen

In diesem Abschnitt werde ich die Anwendung von Gleichung (4.12) und (4.14) zur quantitativen Berechnung von Peakprofilen an gestuften Oberflächen anhand einiger typischer Beispiele demonstrieren. Allen Beispielen liegt eine rekonstruierte fcc(110)(2x1)-Oberfläche zugrunde, wie sie auch bei dem hier untersuchten Au-Kristall anzutreffen ist. Zu diesem Zweck wurde ein Computerprogramm entwickelt, welches die Ausdrücke für die Gleichungen (4.12) sowie (4.14) numerisch auswertet. Zur Ermittlung von Größen, wie z.B. der Lage des Peakmaximums (Peakposition) oder der Halbwertsbreite (FWHM) eines Peaks, wurden die Gleichungen numerisch ausgewertet. Somit wurden Näherungen zur Berechnung dieser Größen, wie sie in [44] vorgeschlagen wurden, umgangen.

Bei den folgenden Ergebnissen wurden die Impulsüberträge k_{\parallel} sowie k_{\perp} in Einheiten des reziproken Gitters angegeben. Durch diese Normierung ist es möglich die Rechnungen mit Messungen an Kristallen unterschiedlichster Gitterkonstanten zu vergleichen. k_{\parallel} wird auf die Größe der reziproken Einheitszelle der betrachteten Richtung $|\vec{g}_{[001]}| = 2\pi/a$ normiert und in Prozent derselben angegeben, k_{\perp} wird mit dem senkrechten Interlagenabstand d multipliziert und in Einheiten von π angegeben.

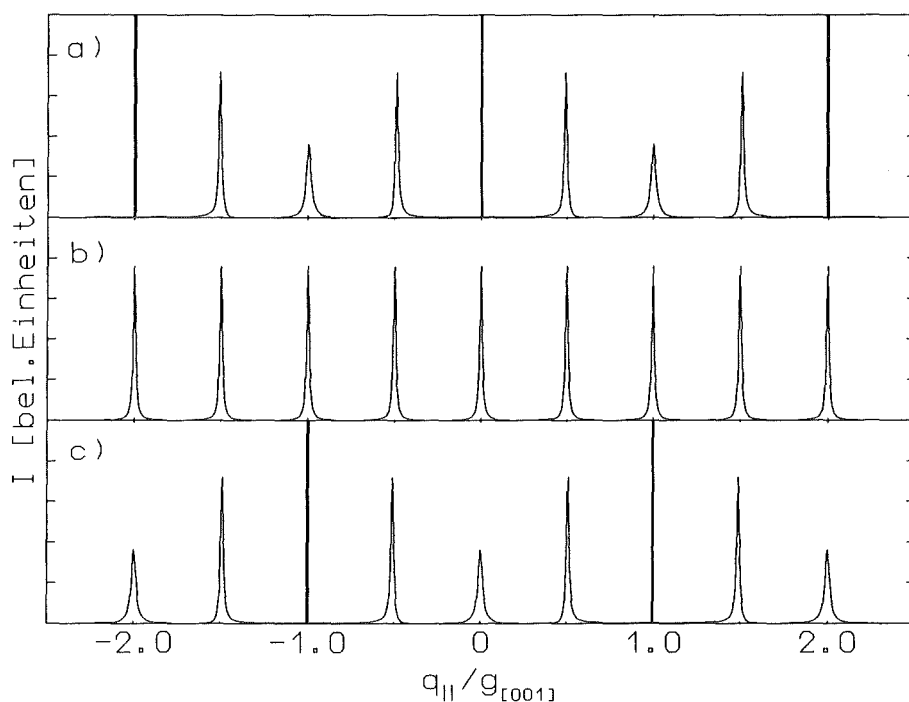


Abb. 4.7: Berechnete Profile von Beugungsreflexen an einer fcc(110)(2x1)-Oberfläche in [001] Richtung mit ausschließlich monoatomaren Stufen, d.h. zwei Höhenniveaus. Die Parameter waren für alle drei Profile: $\gamma = 0.1$, $\alpha = 0.5$, $\beta = 0.5$ und $\epsilon = 0$. Bei Bild a) ist $k_{\perp} \cdot d = 2.0\pi$, bei b) $k_{\perp} \cdot d = 2.5\pi$ und bei c) $k_{\perp} \cdot d = 3.0\pi$.

In Abbildung 4.7 sind drei simulierte Beugungsprofile dargestellt, wie sie von einer idealen fcc(110)(2x1) rekonstruierten Oberfläche mit ausschließlich monoatomaren Stufen in [001] Richtung erwartet werden, d.h. die Profile sind nicht mit einer apparativen Auflösung gefaltet worden. Die Profile wurden für drei verschiedene Werte von k_{\perp} berechnet. Der erste Wert stellt eine in-phasen Bedingung dar, bei der die Phasendifferenz zwischen den beiden Terrassen-Niveaus gerade ein ganzzahliges Vielfaches von 2π ist, d.h. die Elektronen die an Terrassen mit unterschiedlichem Höhenniveau gebeugt werden interferieren konstruktiv. Beim letzten Wert von k_{\perp} ist eine anti-phasen Bedingung erreicht, bei der die Phasendifferenz ein ungeradzahliges Vielfaches von π ist. In diesem Fall interferieren die Elektronen die an Terrassen mit verschiedenem Höhenniveau gebeugt werden destruktiv. Wie im Bild zu sehen ist, sind der (00) Reflex und alle geradzahlig Reflexe bei einer in-phasen Bedingung ideal scharf (δ -Peaks), wohingegen alle ungeradzahlig Peaks eine maximale Halbwertsbreite (FWHM) aufweisen. Bei der anti-phasen Bedingung sind die Verhältnisse gerade umgekehrt, d.h. alle geradzahlig Peaks haben eine maximale Halbwertsbreite und alle ungeradzahlig Peaks sind δ -Peaks. Bei $k_{\perp} \cdot d = 2.5\pi$ haben alle Peaks eine identische Form. Das Profil bei einem Wert von $k_{\perp} \cdot d = 3.5\pi$ ist identisch zu $k_{\perp} \cdot d = 2.5\pi$. Die Profile setzen sich weiter periodisch fort mit einer Periode von $k_{\perp} \cdot d = 2\pi$. Bei den halbzahligen Reflexen ist bei den in-phasen-, bzw. anti-phasen Bedingungen eine deutliche Asymmetrie zu erkennen. Die vorhandene Verschiebung der Peakmaxima der halbzahligen Reflexe ist in dieser Darstellung nicht deutlich zu erkennen. Diese Eigenschaften der einzelnen Reflexe soll im folgenden ausführlicher an einigen Beispielen diskutiert werden.

Die Abbildungen 4.8, 4.9 sowie 4.10 stellen Ergebnisse einer Auswertung der Positionen der Peakmaxima und der zugehörigen Halbwertsbreiten einiger Reflexe als Funktion des senkrechten Impulsübertrages für unterschiedliche Parameter dar. Die Peakpositionen als Funktion von $k_{\perp} \cdot d$ sind als durchgezogene Linien eingezeichnet, die Halbwertsbreite (FWHM) der entsprechenden Reflexe wurde durch den senkrechten Abstand zwischen den gestrichelten Linien angegeben. Abbildung 4.8 zeigt die Positionen, bzw. Halbwertsbreiten der (10), $(\frac{1}{2}0)$, (00), $(\frac{1}{2}0)$ sowie $(\bar{1}0)$ Peaks als Funktion von $k_{\perp} \cdot d$. Die 'normale' Position der halbzahligen Reflexe wurde zusätzlich als strich-punktierte Linie eingezeichnet. Es ist zu sehen, daß sich die Positionen der ganzzahligen Reflexe nicht verändern, die der halbzahligen Reflexe jedoch periodisch um ihre Normalposition oszillieren. Die Halbwertsbreite der entsprechenden Reflexe zeigt jedoch ein konträres Verhalten. Bei den ganzzahligen Reflexen oszilliert die Halbwertsbreite periodisch von Null auf einen maximalen Wert. Im Gegensatz hierzu bleibt die Halbwertsbreite der halbzahligen Reflexe nahezu konstant. Im Vergleich der (00) und (10) Reflexe ist zudem noch eine Phasenverschiebung der Halbwertsbreiten-Oszillation um π bezogen auf $k_{\perp} \cdot d$ sichtbar. Diese Phasenverschiebung zwischen den geradzahlig und den ungeradzahlig Peaks ist eine typische Eigenschaft für Oberflächen mit ABAB-Stapelung, bei denen eine Stufe einen lateralen Phasensprung verursacht (siehe Abb. 4.5).

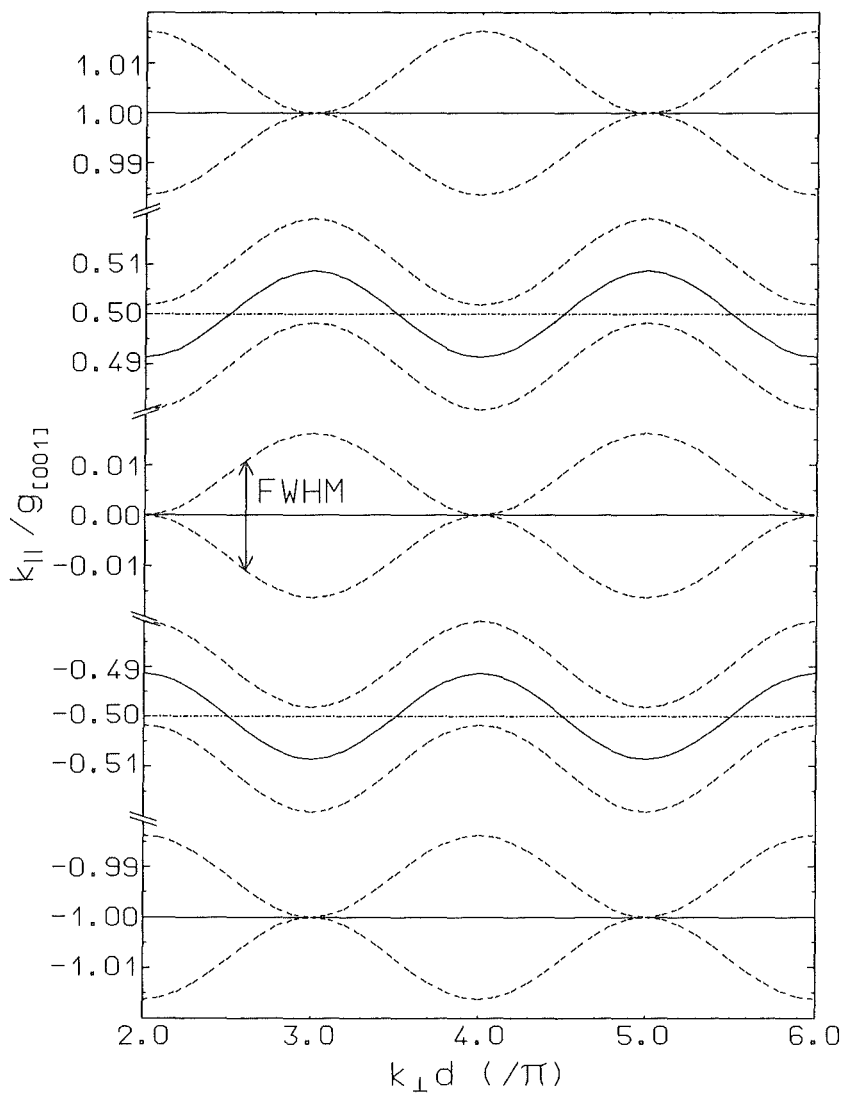


Abb. 4.8: Positionen und Halbwertsbreiten von Beugungs-Reflexen an einer fcc(110)(2x1) Oberfläche mit ausschließlich Einfachstufen als Funktion von $k_{\perp} \cdot d$. Die Parameter für die Berechnung waren $\gamma = 0.1$, $\alpha = 0.5$, $\beta = 0.5$, $\epsilon = 0.01$ und $\delta = 0.5$. Die Peakpositionen sind als durchgezogenen Linien, Halbwertsbreite als Abstand zwischen zwei gestrichelten Linien veranschaulicht. Die strich-punktierten Linien verdeutlichen die 'Normalpositionen' der halbzahligen Reflexe.

Abb. 4.9 zeigt den Einfluß von Einfach- und Zweifachstufen auf die Positionen und Halbwertsbreiten der Reflexe. Die Peakpositionen zeigen das gleiche Verhalten wie bei reinen Einfachstufen, wobei die Amplitude der Positions-Oszillation der halbzahligen Reflexe nur noch halb so groß ist. Die Halbwertsbreite der jeweiligen Reflexe zeigt ein wesentlich komplexeres Verhalten. Neu ist hier, daß auch die Halbwertsbreite der halbzahligen Reflexe nun π -periodisch zwischen zwei Grenzwerten oszilliert, jedoch nie ganz auf Null geht.

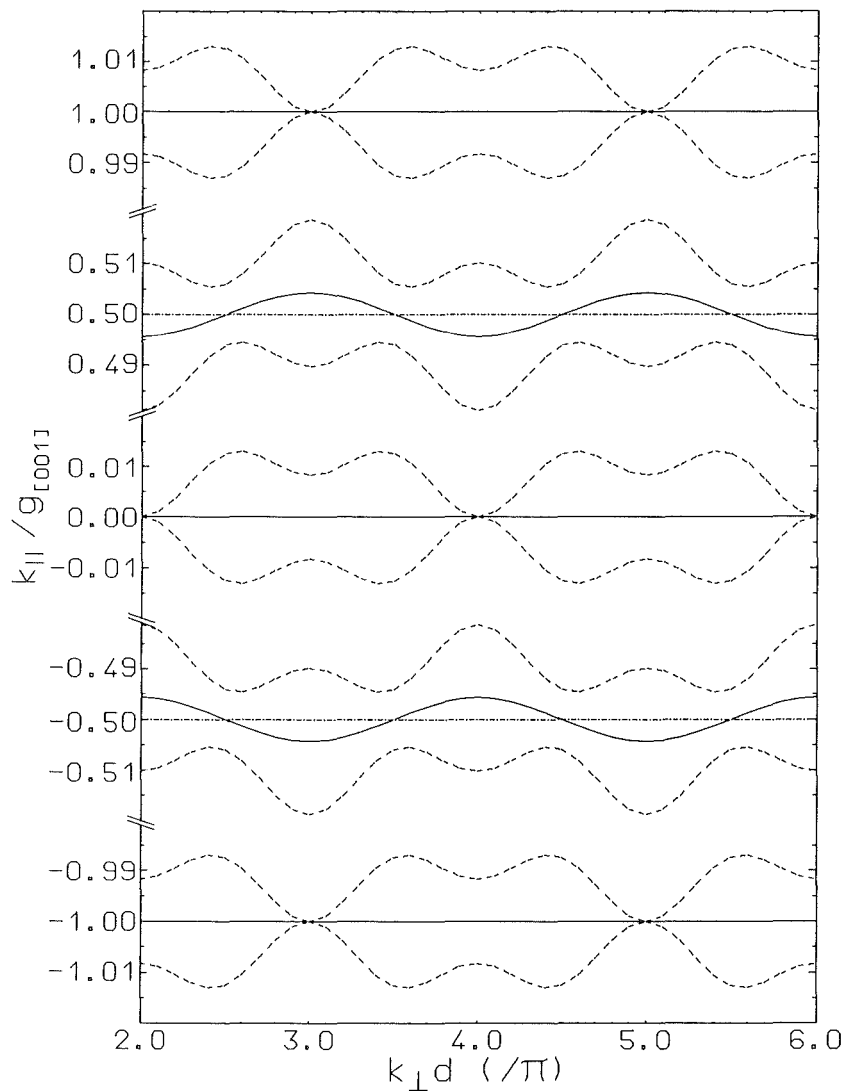


Abb. 4.9: Positionen und Halbwertsbreite von Beugungs-Reflexen von einer fcc(110)(2x1) Oberfläche mit Einfach- und Zweifachstufen als Funktion von $k_{\perp} \cdot d$. Es wurde eine Gleichverteilung der Stufenhöhen angenommen, d.h. $\gamma_1 = \gamma/2$ und $\gamma_2 = \gamma/2$. Die Parameter für die Berechnung waren $\gamma = 0.1$, $\alpha = 0.5$, $\beta = 0.5$, $\epsilon = 0.01$ und $\delta = 0.5$. Die Peakpositionen sind als durchgezogenen Linien, Halbwertsbreite als Abstand zwischen gestrichelten Linien veranschaulicht. Die strich-punktierten Linien verdeutlichen die 'Normalpositionen' der halbzahligen Reflexe.

Abbildung 4.10 verdeutlicht das Verhalten der Reflexe bei Anwesenheit einer Mißorientierung der Kristalloberfläche. In diesem Fall wurden wieder ausschließlich monoatomare Stufen angenommen, mit einem Mißorientierungswinkel von $\Theta = 0.5^\circ$ gegenüber der [001] Richtung. Dies führte zu einer Asymmetrie in den auf-, bzw. abwärts Stufen von $\beta = 0.753$ (siehe Gleichung(4.22)). Im Gegensatz zu den vorherigen Bildern zeigen nun auch die ganzzahligen Reflexe eine deutliche Oszillation ihrer Positionen. Zusätzlich wird eine schwache Oszillation der Halbwertsbreite der halbzahligen Reflexe mit einer Periode von 2π sichtbar. Die Oszillationsperiode der geradzahligen Reflexe ist um π gegenüber den ungeradzahligen verschoben, die der halbzahligen um $\pi/2$ gegenüber den ganzzahligen.

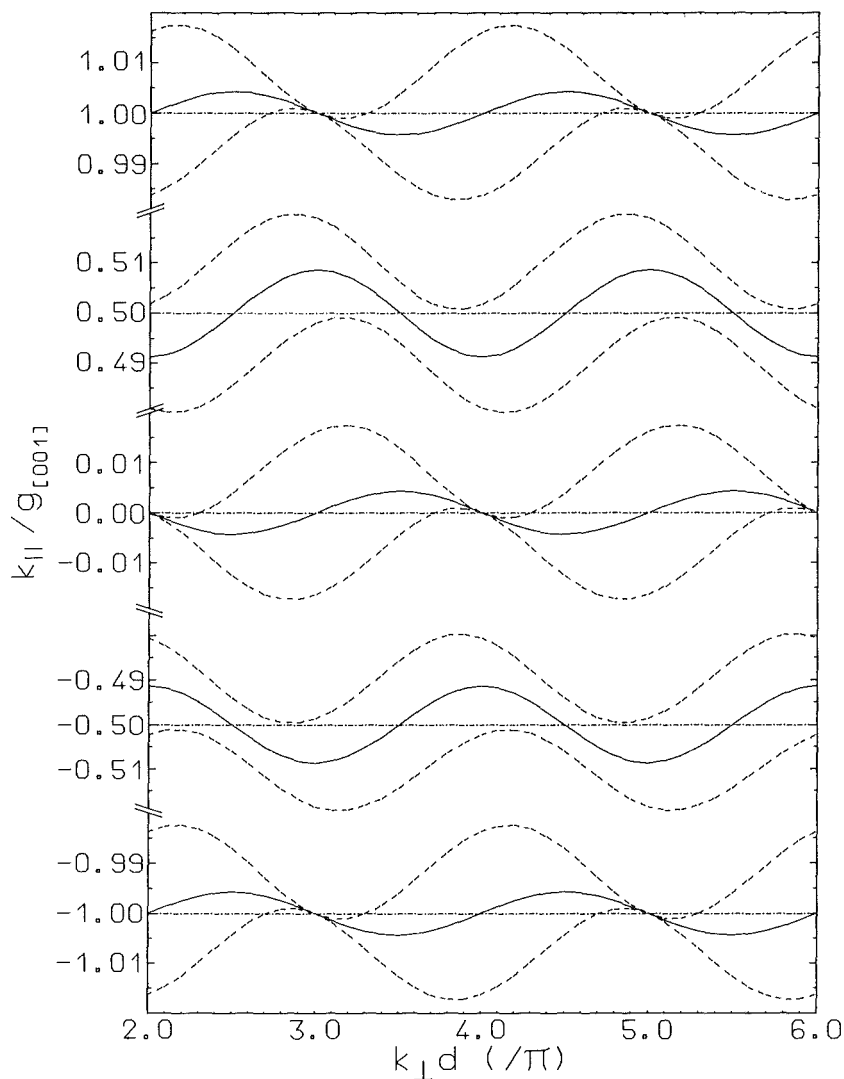


Abb. 4.10: Positionen und Halbwertsbreiten von Beugungs-Reflexen von einer fcc(110)(2x1) Oberfläche mit monoatomaren Stufen als Funktion von $k_{\perp} \cdot d$. Zusätzlich wurde ein Mißorientierungswinkel von $\Theta = 0.5^\circ$ angenommen. Die Parameter für die Berechnung waren $\gamma = 0.1$, $\alpha = 0.5$, $\beta = 0.753$, $\epsilon = 0.01$ und $\delta = 0.5$. Die Peakpositionen sind als durchgezogenen Linien, Halbwertsbreite als Abstand zwischen gestrichelten Linien veranschaulicht. Die strich-punktierten Linien verdeutlichen die 'Normalpositionen' der Reflexe.

Im Folgenden möchte ich nun den Einfluß verschiedener Stufenhöhenverteilungen auf die Oszillationen der Halbwertsbreite (FWHM) des (00) Peaks³ diskutieren. In Abbildung 4.11 ist die Halbwertsbreite des (00) Reflexes als Funktion von $k_{\perp} \cdot d$ für drei verschiedene Stufenhöhen zu sehen. Abb. 4.11a zeigt die Halbwertsbreiten-Oszillation für Einfach-, Abb. 4.11b für Zweifach- und Abb. 4.11c für Dreifachstufen. Hier ist deutlich die Veränderung der Periode erkennbar. Bei Ver- n -fachung der Stufenhöhe wird auch die Periode ver- n -facht, bzw. es entstehen $(n - 1)$ Nebenminima innerhalb der ursprünglichen Periode für Einfachstufen. Dieser Sachverhalt wird später noch, bei einer Methode zur Abschätzung der Stufenhöhenverteilung, ausgenutzt (vergl. auch Anhang A.2).

In Abbildung 4.12 sind die Halbwertsbreiten-Oszillationen für den (00) Reflex einer konstanten Höhenverteilung mit unterschiedlicher maximaler Stufenhöhe sichtbar. Konstante Höhenverteilung bedeutet, daß $\gamma_h = \gamma/H$, mit H als maximale Stufenhöhe. In Abb.4.12a ist $H = 2$, in Abb. 4.12b $H = 3$ und in Abb. 4.12c $H = 10$. Deutlich ist das schmalere werden des Minimums bei den in-phasen Bedingungen sichtbar. In den Oszillationen ist noch deutlich die Periodizität der einzelnen Stufenhöhen anhand der verschiedenen Anzahl von relativen Minima erkennbar. Hier gilt: Für n -fach Stufen gibt es $(n - 1)$ relative Minima innerhalb einer Periode für Einfachstufen.

Die mittlere Stufenhöhe einer geometrischen Stufenhöhenverteilung als Funktion eines Parameters η kann analog zur mittleren Terrassenbreite aus Gleichung (4.3) berechnet werden. In Abbildung 4.13 wurde der Einfluß einer geometrischen Höhenverteilung, definiert durch

$$\gamma_h = \gamma\eta(1 - \eta)^{h-1}, \quad (4.23)$$

für zwei verschiedene mittlere Höhen $\langle H \rangle$ dargestellt. Hier wird die Oszillation zu einer glatten Kurve ohne relative Minima, wobei mit zunehmender mittlerer Stufenhöhe eine Rechteckform angenähert wird. In Teilbild a) wurde eine mittlere Stufenhöhe $\langle H \rangle = 3$ und in b) $\langle H \rangle = 10$ angenommen. Auch hier wird deutlich, daß mit zunehmender mittlerer Stufenhöhe die Minima an den in-phasen Bedingungen immer schmalere werden. Aus der Krümmung der Halbwertsbreiten-Oszillationen, d.h. dem Betrag der zweiten Ableitung nach $(k_{\perp} \cdot d)$ um $(k_{\perp} \cdot d) = n \cdot 2\pi, n = 1, 2, \dots$ kann die mittlere Stufenhöhe abgeschätzt werden.

³Dies gilt für alle ganzzahligen Beugungsordnungen. Bei den ungeradzahligen Beugungsordnungen ist die Oszillationsperiode jedoch um π gegenüber den geradzahligen Beugungsordnungen phasenverschoben.

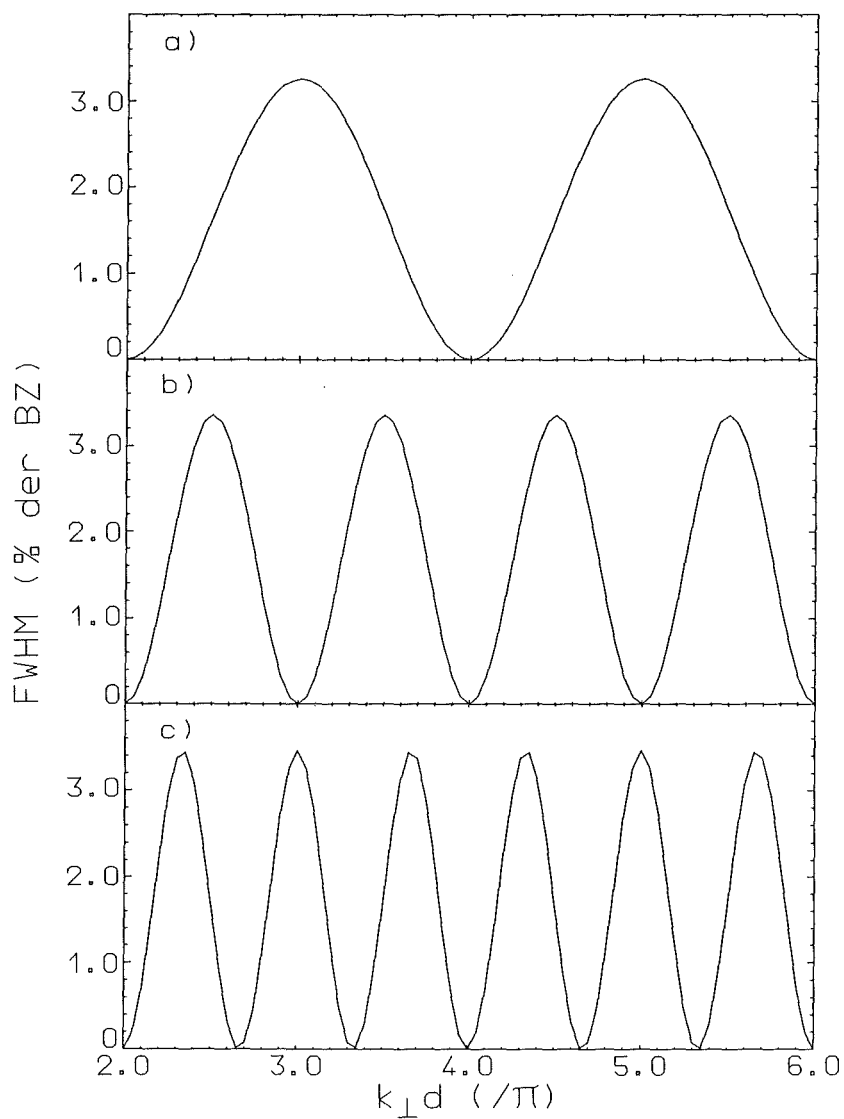


Abb. 4.11: Halbwertsbreiten-Oszillationen des (00) Peaks als Funktion von $k_{\perp} \cdot d$ für drei verschiedene Stufenhöhen. In Bild a) wurden nur Einfachstufen angenommen, in b) nur Zweifachstufen und in c) ausschließlich Dreifachstufen. Die Parameter für die Berechnung waren $\gamma = 0.1$, $\alpha = 0.5$, $\beta = 0.5$, $\epsilon = 0.01$ und $\delta = 0.5$.

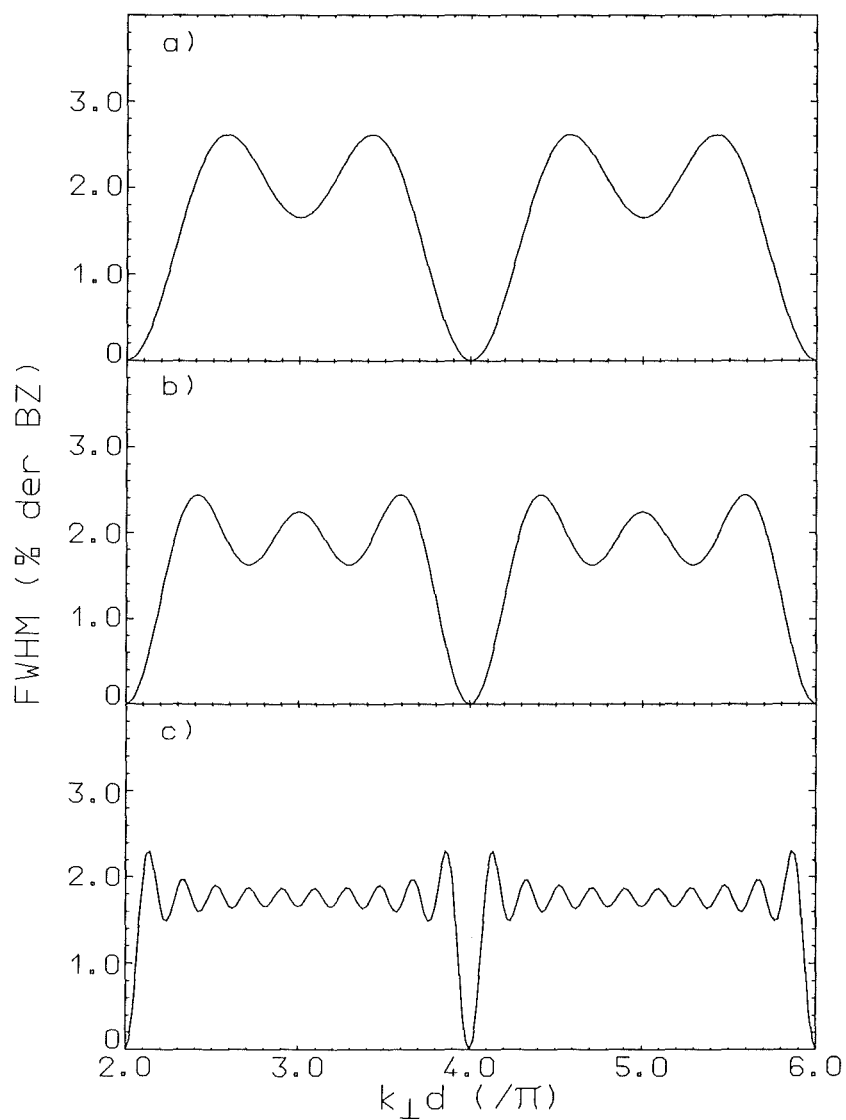


Abb. 4.12: Halbwertsbreiten-Oszillationen des (00) Peaks als Funktion von $k_{\perp} \cdot d$ für konstante Höhenverteilungen mit verschiedenen maximalen Stufenhöhen. Bei allen Berechnungen wurde als Höhenverteilung $\gamma_h = \gamma/H = \text{const.}$ angenommen, mit $H = 2$ bei a), $H = 3$ bei b) sowie $H = 10$ bei c). Die Parameter für die Berechnung waren $\gamma = 0.1$, $\alpha = 0.5$, $\beta = 0.5$, $\epsilon = 0.01$ und $\delta = 0.5$.

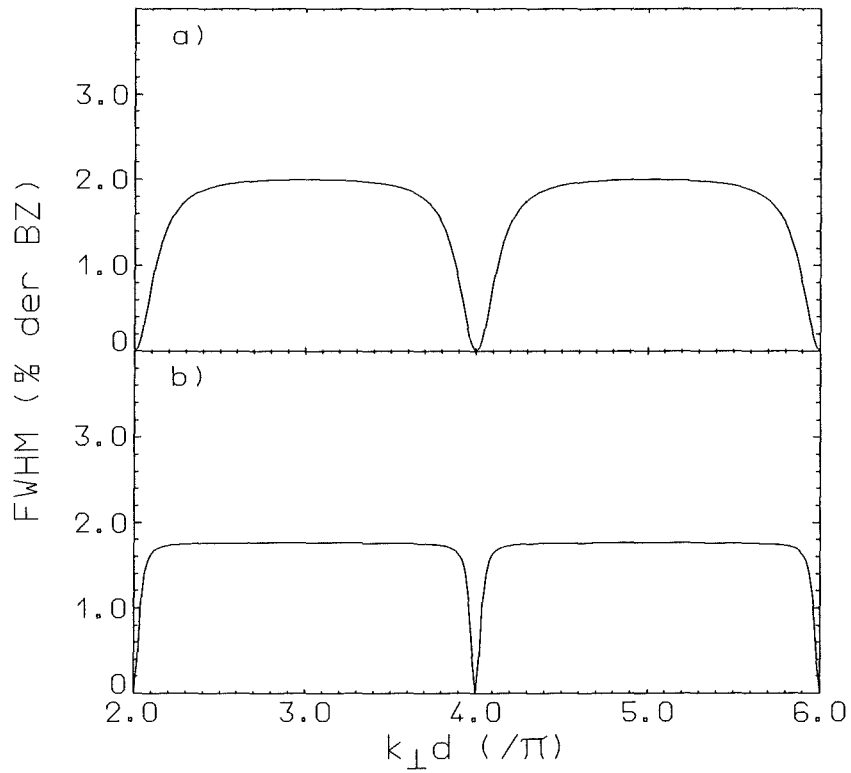


Abb. 4.13: Halbwertsbreiten-Oszillationen des (00) Peaks als Funktion von $k_{\perp} \cdot d$ für eine geometrische Höhenverteilung (Gleichung(4.23)) verschiedener mittlerer Stufenhöhen $\langle H \rangle$. Bei a) war $\eta = 1/3$ ($\langle H \rangle \approx 3$) und bei b) $\eta = 0.1$ ($\langle H \rangle \approx 10$). Die restlichen Parameter für die Berechnung waren $\gamma = 0.1$, $\alpha = 0.5$, $\beta = 0.5$, $\epsilon = 0.01$ sowie $\delta = 0.5$.

In Abbildung 4.14 wurde die Halbwertsbreite des (00) Peaks bei einer anti-phasen Bedingung $k_{\perp} \cdot d = (2n + 1)\pi$ als Funktion der Stufendichte γ für drei verschiedene mittlere Stufenhöhen aufgetragen. Die Stufenhöhen wurden gleichverteilt, d.h. $\gamma_h = \gamma/H$, mit der maximalen Stufenhöhe H . Die oberste Kurve entspricht reinen Einfachstufen, die untere Kurve Einfach- und Zweifachstufen und die mittlere Einfach- bis Fünffachstufen. Im speziellen hängt die Halbwertsbreite an einer anti-phasen Bedingung von der spezifischen Höhenverteilung ab. Da die Halbwertsbreite an der anti-phasen Bedingung ausschließlich für ungeradzahlige Stufenhöhen sensitiv ist (vergleiche Abb. 4.11), wird sie um so größer sein, je größer der relative Anteil an ungeradzahligen Stufenhöhen ist.

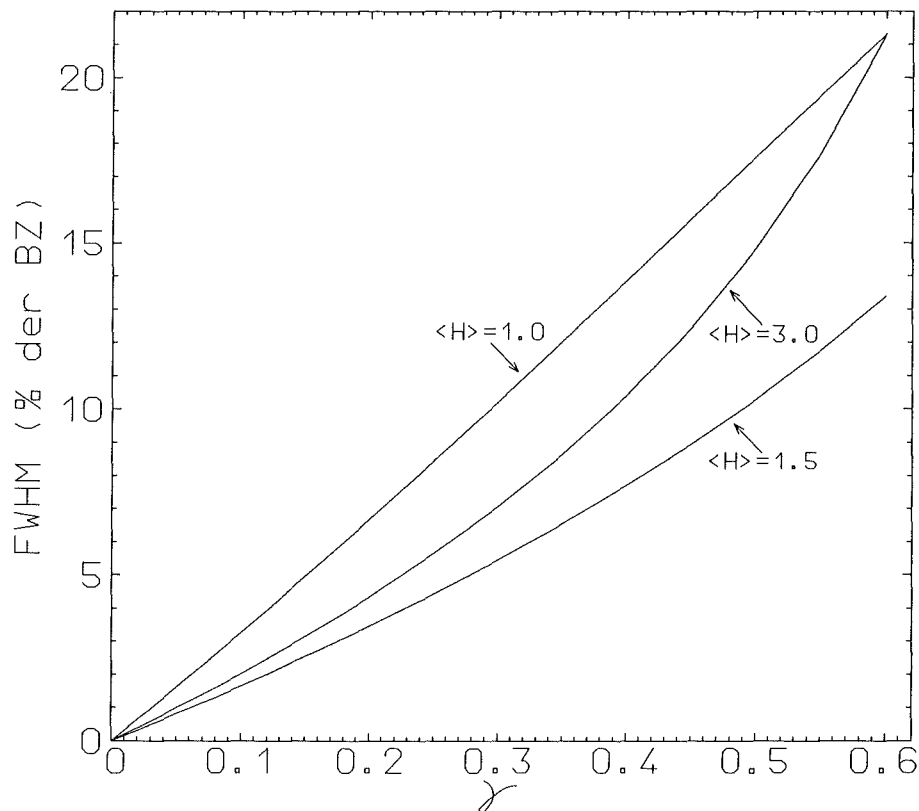


Abb. 4.14: FWHM des (00) Peaks als Funktion von γ für gleichverteilte Stufenhöhen bei $k_{\perp} \cdot d = 3\pi$, mit drei unterschiedlichen maximalen Stufenhöhen H . Für die Kurve mit $\langle H \rangle = 1.0$ war $H = 1$, mit $\langle H \rangle = 1.5$ war $H = 2$ und bei $\langle H \rangle = 3.0$ war $H = 5$. Die restlichen Parameter für die Berechnung waren $\alpha = 0.5$, $\beta = 0.5$, $\epsilon = 0.01$ sowie $\delta = 0.5$.

Im weiteren will ich ein bisher in der Literatur noch nicht beschriebenes Verhalten der halbzahligen Reflexe an fcc(110)(2x1)-Oberflächen beschreiben. Abbildung 4.15 zeigt die Peakposition (links: a)-c) sowie Halbwertsbreite (FWHM) (rechts: d)-f)) des $(\frac{1}{2}0)$ Peaks mit drei verschiedenen maximalen Stufenhöhen $H = 1$ für a) und d), $H = 2$ für b) und e) sowie $H = 3$ für c) und f). Das Verhalten der anderen halbzahligen Reflexe ist unter Berücksichtigung der Symmetrie entsprechend. Bei allen Rechnungen war $\gamma = 0.1$, $\beta = 0.5$, $\alpha = 0.5$, $\epsilon = 0.01$ sowie $\delta = 0.5$. In den oberen Abbildungen (a) und d)) ist das schon diskutierte Verhalten der Oszillation der Peakposition um die Normalposition, sowie eine schwache Oszillation der Halbwertsbreite erkennbar. Bei Auftreten von Zweifachstufen (b) und e)) wird eine deutliche Oszillation der Halbwertsbreite sichtbar, wohingegen sich das Verhalten der Peakposition nicht verändert. Nur die Amplitude der Positions-Oszillation wird kleiner. Dies wird durch das kleiner werden des relativen Anteils an Einfachstufen erklärt. In Teilbild a) beträgt die Stufendichte für Einfachstufen $\gamma_1 = 0.1$, während bei b), durch den Anteil an Zweifachstufen, die Dichte für Einfachstufen auf $\gamma_1 = 0.05$ sinkt. In den unteren Teilbildern sind zusätzlich zu Einfach- und Zweifachstufen noch Dreifachstufen hinzugekommen. Dies wird in einer Änderung der Positions-Oszillation sichtbar, während die Halbwertsbreiten-Oszillation keine wesentliche Änderung zeigt. Auch hier kann die kleinere Amplitude der Halbwertsbreiten-Oszillationen mit einer verringerten Dichte an Zweifachstufen erklärt werden. Aus diesem Verhalten kann geschlossen werden, daß ungeradzahlige Stufenhöhen ausschließlich Auswirkungen auf die Positionen der halbzahligen Peaks haben und die geradzahligen Stufenhöhen nur die Halbwertsbreiten beeinflussen. Dies stellt eine gute Methode dar, bei fcc(110)(2x1)-Oberflächen zwischen dem relativen Anteil von geradzahligen und ungeradzahligen Stufenhöhen zu unterscheiden.

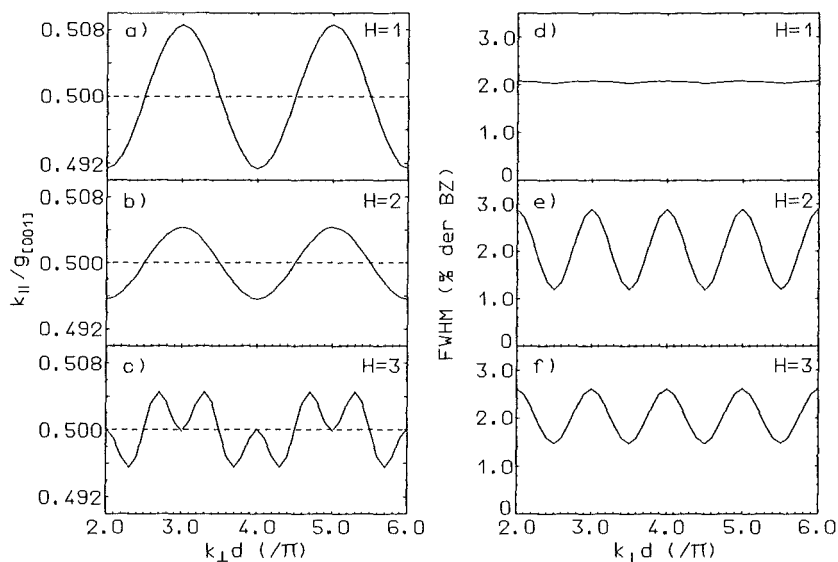


Abb. 4.15: Eigenschaften des $(\frac{1}{2}0)$ Peaks für Einfachstufen (a) und d)), Einfach- und Zweifachstufen (b) und e)) mit $\gamma_1 = \gamma/2$ und $\gamma_2 = \gamma/2$ sowie Einfach-, Zweifach- und Dreifachstufen (c) und f)) mit $\gamma_1 = \gamma/3$, $\gamma_2 = \gamma/3$ und $\gamma_3 = \gamma/3$. Die übrigen Parameter der Rechnung waren $\gamma = 0.1$, $\beta = 0.5$, $\alpha = 0.5$, $\epsilon = 0.01$ und $\delta = 0.5$. Die Normalposition des halbzahligen Peaks wurde durch eine gestrichelte Linie (a) - c)) verdeutlicht.

Zum Schluß möchte ich noch die Auswirkungen der *Ising-Defekte* auf die Halbwertsbreite der halbzahligen Reflexe diskutieren. In Abbildung 4.16 ist die Halbwertsbreite des $(\frac{1}{2}0)$ Peaks als Funktion der Ising-Defekt-Dichte ϵ für zwei verschiedene Werte der Stufendichte γ aufgetragen. Zuerst ist eine starke Abhängigkeit der Halbwertsbreite von ϵ erkennbar. Um den Einfluß der Stufendichte auf die Halbwertsbreite zu sehen, wurde einmal für $\gamma = 0.01$ und für $\gamma = 0.1$ gerechnet. Die Dichte ϵ der Ising-Defekte beeinflusst jedoch ausschließlich die Halbwertsbreite der halbzahligen Reflexe, während die Peakposition, sowie Position und Halbwertsbreite der ganzzahligen Reflexe davon unberührt bleiben. Dies läßt den Schluß zu, daß die Verbreiterung der halbzahligen Peaks ausschließlich durch den lateralen Phasensprung einer Stufe oder einem Ising-Defekt hervorgerufen wird, wohingegen die anderen Größen nur durch einen senkrechten Phasensprung beeinflusst werden.

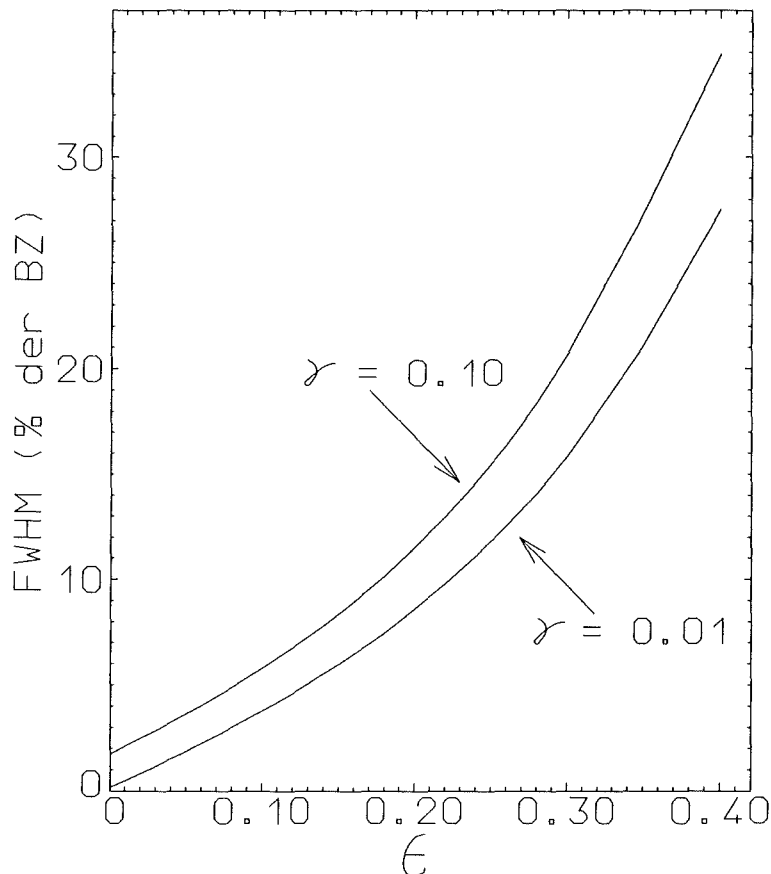


Abb. 4.16: FWHM des $(\frac{1}{2}0)$ Peaks für $k_{\perp} \cdot d = 3\pi$ bei Vorhandensein von monoatomaren Stufen als Funktion der Ising-Defekt-Dichte ϵ . Die restlichen Parameter für die Berechnung waren $\gamma = 0.01$ (untere Kurve) und $\gamma = 0.10$ (obere Kurve), sowie $\beta = 0.5$, $\alpha = 0.5$ und $\delta = 0.5$.

Kapitel 5

Experimentelle Ergebnisse

In diesem Kapitel werden die experimentellen Ergebnisse dargestellt und im Rahmen des vorgestellten theoretischen Hintergrundes diskutiert. Im ersten Abschnitt dieses Kapitels werden die LEED-Ergebnisse diskutiert. Der zweite Teil zeigt die Ergebnisse der SPA-LEED Untersuchung wobei diese mit Rechnungen der in Kapitel 4 vorgestellten theoretischen Beschreibung von Beugungsprofilen verglichen werden. Im dritten Teil dieses Kapitels werden dann die vorgestellten Ergebnisse ausführlich anhand eines einfachen Modells für die Oberflächenstruktur diskutiert.

5.1 LEED-Ergebnisse

LEED hat, wie in Kapitel 2.1 schon dargelegt, zwar gegenüber dem SPA-LEED den entscheidenden Nachteil einer begrenzten Auflösung (Kapitel 2.1.3), vorteilhaft ist jedoch ohne übermäßigen experimentellen Aufwand schnell Messungen durchführen zu können. Gegenüber SPA-LEED besitzt das herkömmliche LEED noch den Vorteil, ohne aufwendige Kalibrierung Intensitätsmessungen ($I(E)$) durchführen zu können. Durch die Meßmethode des verwendeten Video-LEED-Systems (Kapitel 2.1.2) kann so relativ schnell ein Überblick über die Struktur der Oberfläche gewonnen werden.

5.1.1 Reversibilität des *Dekonstruktionsüberganges*

In temperaturabhängigen Untersuchungen der Struktur der Au(110)-Oberfläche früherer Arbeiten [24, 49] und einer kürzlich veröffentlichten Arbeit [118] wurde angegeben, daß der $(2 \times 1) \leftrightarrow (1 \times 1)$ Übergang reversibel sei. In der ersten ausführlichen Arbeit [24] waren jedoch schon Anzeichen für eine Irreversibilität des *Dekonstruktionsüberganges* gesehen worden, indem nach längerem Tempern auf $T=770\text{K}$ bei Raumtemperatur Zusatzreflexe beobachtet wurden. Die Autoren vermuteten jedoch, daß dieser Effekt auf eine unvollständige Präparation der Oberfläche zurückzuführen sei. McRae *et al.* [70] untersuchten die *Dekonstruktion* in Abhängigkeit von der Verunreinigung mit Sn an der Oberfläche. Hierbei wurden für nachweisbare Sn Konzentrationen Intensitätsmessungen eines Überstruktureflexes bei aufsteigenden und fallenden Temperaturen durchgeführt. In dieser Analyse wurde eine deutliche Hysterese des Intensitätsverlaufes festgestellt. Für Sn Konzentrationen unterhalb der Nachweisgrenze wurden in dieser Arbeit jedoch

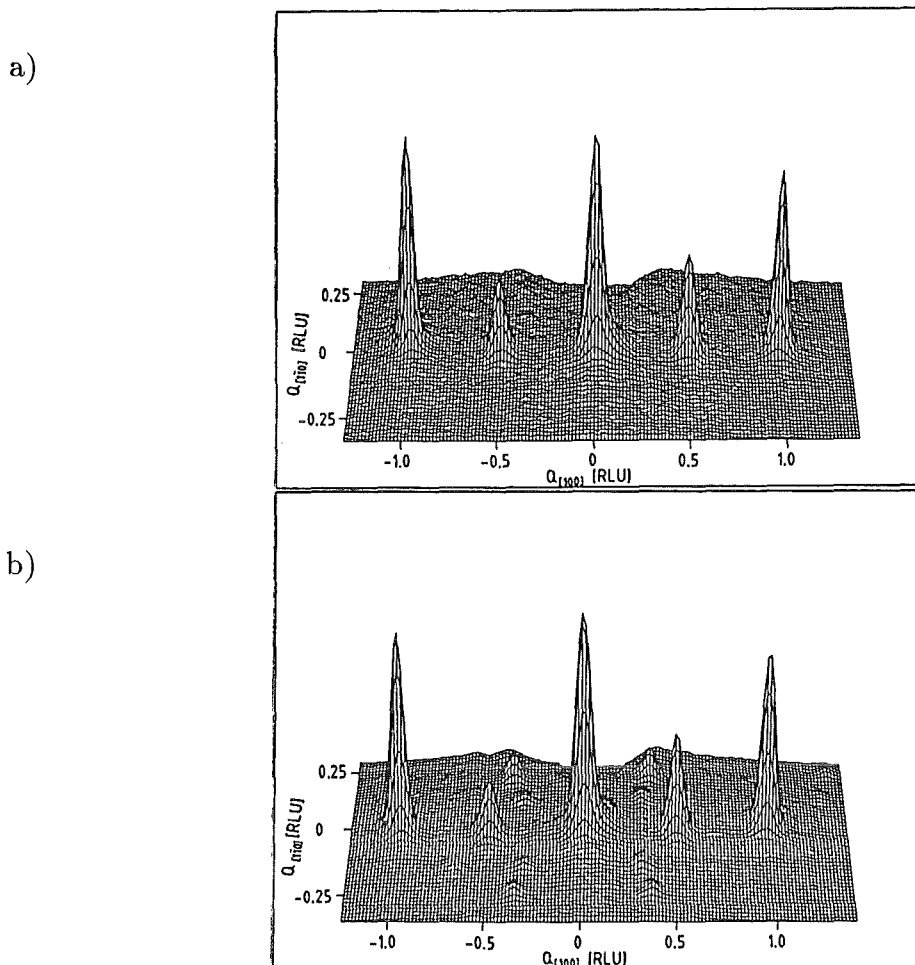


Abb. 5.1: Typische LEED Beugungsbilder von der Au(110)(2x1)-Oberfläche bei $E=45\text{eV}$ und $\Theta_i = 15^\circ$. a) wurde nach kurzem Sputtern und Tempern auf $T=523\text{K}$ bei einer Temperatur von $T=300\text{K}$ aufgenommen. Die scharfen Überstrukturreflexe entsprechen einer geordneten (2x1) Struktur. In b) wurde die Probe auf $T > T_c$ hochgeheizt und anschließend langsam auf Raumtemperatur abgekühlt. Die laterale Dimension in [001] Richtung eines Gitters beträgt 0.018 reziproke Gittereinheiten (RLU) mit $1\text{RLU} = 2\pi/a$, $a = 4.08\text{\AA}$.

keine Messungen für fallende Temperaturen beschrieben. Aus der beobachteten Hysterese kann indirekt auf eine Irreversibilität des $(2 \times 1) \rightarrow (1 \times 1)$ Übergangs geschlossen werden.

An dem für diese Arbeit verwendeten Au Kristall konnte zum ersten mal die Irreversibilität des Phasenübergangs beobachtet werden [112, 116]. Abbildung 5.1a zeigt in einer 3D Darstellung einen Ausschnitt aus einem digitalisierten LEED-Bild. In diesem Bild sind fünf Reflexe zu sehen: $(\bar{1}0)$, $(\frac{1}{2}0)$, (00) , $(\frac{1}{2}0)$ und (10) . Die Daten wurden bei einer Temperatur von 300K aufgenommen. In Abb. 5.1b sind dieselben Reflexe wiederum bei $T=300\text{K}$ zu sehen. Diese Messung wurde durchgeführt, nachdem die Probe für ca. 30min auf $T=730\text{K}$ ($>T_c$) gehalten und anschließend innerhalb von 60min wieder auf Raumtemperatur abgekühlt worden ist. Zusätzlich zu den 'erwarteten' Reflexen

sind weitere Nebenpeaks zu sehen. Diese Zusatzstruktur ist ohne äußeren Einfluß auf die Probe vollständig stabil. Auch während die Probe in diesem Zustand auf $T=45\text{K}$ abgekühlt wurde, konnte keine Veränderung der Struktur beobachtet werden.

Die Bildung von Zusatzreflexen nach dem Abkühlen von $T>T_c$ konnte während der gesamten Dauer der Experimente (ca. 2 Jahre!) beobachtet werden. Die geordnete (2×1) Struktur ohne Zusatzreflexe wurde erst nach kurzem sputtern (ca. 5-10sec) mit 500eV Ar^+ Ionen bei $T=523\text{K}$ wieder erzielt. Diese extrem kurze Sputterzeit läßt den Schluß zu, daß die Zusatzstruktur nur durch eine Störung der obersten Atomlagen verursacht wird. Eine mögliche Interpretation dieses Sachverhalts wäre, daß durch den Beschuß der Oberflächenatome mit den Ionen diese aktiviert werden, so daß die Oberfläche in die energetisch günstigste (2×1) Struktur rekonstruieren kann. Anfangs ist die Oberflächenstruktur im Gleichgewicht. Nach dem Hochheizen auf $T>T_c$ bildet sich eine (1×1) Struktur aus, die gegenüber der (2×1) Struktur eine doppelt so hohe Belegungsichte Θ besitzt. Beim Abkühlen will die Oberfläche, aus energetischen Gründen, wieder eine (2×1) Struktur bilden. Hierbei müssen jedoch die Atome jeder zweiten dichtgepackten Reihe in $[1\bar{1}0]$ Orientierung 'entfernt' werden, um die *missing row* Struktur zu bilden. Durch das Abkühlen wird jedoch die thermische Energie des Systems kleiner, so daß Diffusionsprozesse wesentlich langsamer ablaufen können. Dies bewirkt, daß sich die Oberflächenatome in eine Struktur umorientieren, deren freie Energie ein relatives Minimum besitzt, dessen energetische Lage in der Nähe des absoluten energetischen Minimums der stabilen (2×1) Struktur liegt. Bei Raumtemperatur besitzen die Atome zu wenig thermische Energie, um eine vollständig geordnete (2×1) Struktur bilden zu können. Durch sehr kurze Aktivierung mit Beschuß von 500eV Ar^+ Ionen, kann die Oberfläche in eine vollständig geordnete (2×1) Struktur rekonstruieren. Eine weitere Möglichkeit eine geordnete (2×1) Struktur nach dem Hochheizen auf $T>T_c$ zu erzeugen, könnte darin bestehen, die Probe so langsam abkühlen zu lassen, um genügend Zeit für eine vollständige Umordnung zu geben. Dies wurde bis zu einer minimalen Abkühlrate von ca. 0.3K/min getestet. Hierbei konnte jedoch in keinem Fall eine geordnete (2×1) Struktur erzielt werden. Eine noch kleinere Abkühlrate wurde nicht getestet, da kein Hinweis auf eine Zeitabhängigkeit der Intensität der Zusatzreflexe gefunden wurde.

5.1.2 Messung bei tiefen Temperaturen

Um die Au(110)-Oberfläche in einem großen Temperaturbereich zu untersuchen, wurden bei einer Elektronenenergie von $E=45\text{eV}$ unter einem Einfallswinkel von $\Theta_i = 0^\circ$ relativ zur Oberflächennormale Peakprofile des (10) und $(\frac{3}{2}0)$ Reflexes bei Temperaturen zwischen $T=45\text{K}$ und $T=772\text{K}$ aufgenommen. Aus dieser Messung wurde in $[001]$ Richtung die Halbwertsbreite (FWHM) und die integrale Intensität beider Peaks bestimmt.

Die Ergebnisse dieser Auswertung sind in den Abbildungen 5.2 und 5.3 dargestellt. Diese Messung wurde vorbereitet, indem die Oberfläche vorher ca. 2min lang mit 1kV Ar^+ bei $T=523\text{K}$ gesputtert wurde. Anschließend blieb die Probe 12h lang bei dieser Temperatur, um Gitterfehler auszuheilen. Die erste Messung fand bei einer Temperatur

von $T=523\text{K}$ statt. Nach Abkühlen auf $T=300\text{K}$ wurde eine Messung bei dieser Temperatur durchgeführt. Die weiteren Messungen fanden nach dem Abkühlen auf $T=45\text{K}$ mit aufsteigender Temperatur statt. Bei tiefen Temperaturen wurde vor jeder Messung ca. 10min gewartet, bis die Temperaturregelung stabil war. Bei Temperaturen größer 523K erhöhte sich die Wartezeit auf ca. 30min, um die Probe ins thermische Gleichgewicht kommen zu lassen. Nach dieser Meßreihe wurde die Oberfläche mit AES auf eine eventuelle Kontamination durch Ca oder anderen Verunreinigungen überprüft. Im Rahmen der Nachweisgrenze konnten hierbei keine Verunreinigungen festgestellt werden (siehe Kapitel 2.3). Auch bei der tiefsten Temperatur wurde nach dem Abkühlen zu Beginn der Meßreihe eine Überprüfung der Oberfläche mit AES durchgeführt, um eventuell adsorbiertes Restgas feststellen zu können. Auch hier wurde keine Belegung mit Adsorbaten gefunden.

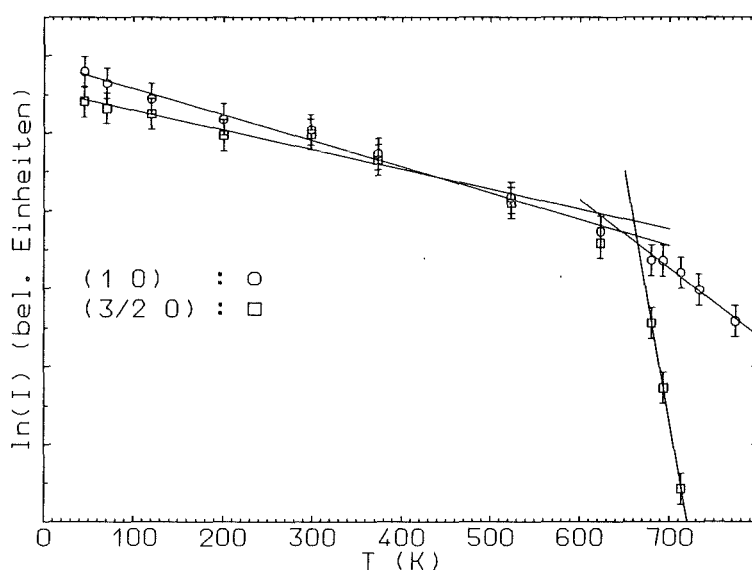


Abb. 5.2: Natürlicher Logarithmus der integralen Peakintensität der (10) und $(\frac{3}{2}0)$ Reflexe als Funktion der Temperatur. Die eingezeichneten Geraden sind Fits an die Datenpunkte. Für Temperaturen $< 500\text{K}$ kann aus der Steigung der Geraden die effektive Debye Temperatur abgeschätzt werden.

In Abb. 5.2 ist der natürliche Logarithmus der integralen Intensität als Funktion der Temperatur beider untersuchten Reflexe aufgetragen. Für Temperaturen kleiner $T=650\text{K}$ ist bei beiden Reflexen eine lineare Abhängigkeit von der Temperatur zu sehen. Oberhalb dieses Temperaturbereiches nimmt die Intensität stärker ab, im Falle des $(\frac{3}{2}0)$ Reflexes sogar noch wesentlich stärker als beim (10) Reflex. Dies ist auf den *Dekonstruktionsübergang* zurückzuführen. Die Intensitätsabnahme des $(\frac{3}{2}0)$ Reflexes wird noch im folgenden ausführlicher diskutiert werden.

An die Intensitäten für tiefere Temperaturen wurden Geraden angefiten (Siehe Abb. 5.2). Aus den Steigungen beider Geraden kann die effektive Debye-Temperatur und somit die mittlere Schwingungsamplitude bestimmt werden. Bei den hier untersuchten Beugungsordnungen wird das *Debye-Waller* Verhalten nicht nur von der senkrechten Komponente der mittleren Schwingungsamplitude, sondern wegen einer endlichen Komponente des parallelen Impulsübertrages, auch noch von der parallelen Komponente in

[001] Richtung beeinflusst. Die Temperaturabhängigkeit der Intensität I kann wie folgt beschrieben werden:

$$I = I_0 e^{-2M} \quad (5.1)$$

Der Exponential-Faktor ist der *Debye-Waller Faktor* mit

$$2M = |\vec{q}|^2 \langle \vec{u}^2 \rangle \quad (5.2)$$

$$= \frac{3\hbar^2 |\vec{q}|^2 T}{m_{Au} k_B \Theta_{D,eff}^2} \quad (5.3)$$

wobei \vec{q} der gesamte Impulsübertrag und $\langle \vec{u}^2 \rangle$ die mittlere quadratische Schwingungsamplitude sind. $\Theta_{D,eff}$ ist die über die Eindringtiefe der Elektronen gemittelte effektive Debye-Temperatur. Diese Formeln gelten in dieser Form nur, falls eine isotrope Verteilung der mittleren Schwingungsamplitude bezüglich der Kristallrichtungen vorliegt. Mit Berücksichtigung des parallelen Impulsübertrages und den folgenden Beziehungen [58, S.46]

$$\vec{q} = k_{\perp} + k_{\parallel}, \quad (5.4)$$

$$2M = |k_{\perp}|^2 \langle u_{\perp}^2 \rangle + |k_{\parallel}|^2 \langle u_{\parallel}^2 \rangle, \quad (5.5)$$

$$|k_{\perp}| = |\vec{k}_0| (1 + \cos \vartheta_{hk}) \quad (5.6)$$

$$|k_{\parallel}| = |\vec{g}_{hk}| \quad \text{und} \quad (5.7)$$

$$E = \frac{\hbar^2 k_0^2}{2m_e} \quad (5.8)$$

kann der Exponent $2M$ im Debye-Waller Faktor wie folgt geschrieben werden:

$$2M = \frac{6m_e T}{m_{Au} k_B} (E + V_0) \left(\frac{(1 - \cos \vartheta_{hk})^2}{(\Theta_{D_{\perp}}^{eff})^2} + \frac{\sin^2 \vartheta_{hk}}{(\Theta_{D_{\parallel}}^{eff})^2} \right). \quad (5.9)$$

Die Größe V_0 ist das innere Potential, das auf ein Elektron im inneren des Kristallgitter wirkt, d.h. die Elektronenenergie wird um diesen Wert erhöht. Der Winkel ϑ_{hk} ist der Beugungswinkel zwischen Oberflächennormale und untersuchtem Reflex. Da für diese Messung der Einfallswinkel $\Theta_i = 0$ war, ist ϑ_{hk} also der Beugungswinkel zwischen den (00) und (hk) Reflexen. Dieser Wert kann aus der Geometrie der Versuchsanordnung ermittelt werden (für die hier untersuchten Reflexe waren die Beugungswinkel $\vartheta_{10} \approx 23^\circ$ und $\vartheta_{\frac{3}{2}0} \approx 35.5^\circ$ bei $E = 45\text{eV}$ und $V_0 = 15\text{eV}$, der Wert für V_0 wurde aus [121] übernommen.). Wird für die Berechnung der effektiven Debye-Temperatur keine Aufspaltung in parallel und senkrechte Komponente ($\Theta_{D_{\perp}}^{eff} = \Theta_{D_{\parallel}}^{eff} = \Theta_{D,eff}$) gemacht, so ergeben sich für die effektiven Debye Temperaturen folgende Werte:

$$\Theta_{D,eff}^{(10)} = 115K \pm 5K$$

$$\Theta_{D,eff}^{(\frac{3}{2}0)} = 129K \pm 13K$$

Diese Werte sind jedoch nach Gl. (5.3) und Gl. (5.9) aus $\Theta_{D_{\perp}}^{eff}$ und $\Theta_{D_{\parallel}}^{eff}$ zusammengesetzt.

Aus einer Messung durch Nold [121] für den (00) Reflex ergab sich für $\Theta_{D_{\perp}}^{eff} = 93K$. Im Vergleich hierzu ist die Debye Temperatur für das Kristallvolumen $\Theta_D = 174K$ [73]. Aufgrund der deutlichen Erhöhung der Debye-Temperaturen für (10) und $(\frac{3}{2}0)$ Reflexe im Vergleich zum (00) Reflex ist zu erwarten, daß die parallele Komponente in [001] Richtung größer ist, als die senkrechte Komponente. Wenn jedoch versucht wird mit Gl. (5.9) $\Theta_{D_{\parallel}}^{eff}$ auszurechnen, so ergibt sich nach der Umstellung von Gl. (5.9) ein negativer Wert für $(\Theta_{D_{\parallel}}^{eff})^2$. Als hauptsächliche Fehlerursache wird die Unsicherheit bei den Intensitätsmessungen angenommen. Bei der Berechnung von $\Theta_{D_{\parallel}}^{eff}$ nach Gl. (5.9) führen schon kleinste Abweichungen in den Intensitätsmessungen für den (00) Reflex und die (10), bzw. $(\frac{3}{2}0)$ Reflexe durch Differenzbildung zu großen Fehlern. Die Intensitäten für die (10), bzw. $(\frac{3}{2}0)$ Reflexe wurden bei konstanter Energie aufgenommen. Da sich aufgrund der thermischen Ausdehnung des Kristalls jedoch die Gitterkonstante verändert, wird sich die Intensität wegen der veränderten Beugungsbedingung ebenfalls ändern.

Aus den Ergebnissen für $\Theta_{D_{eff}}^{(10)}$ und $\Theta_{D_{eff}}^{(\frac{3}{2}0)}$ kann zusammen mit Gl. (5.9) und dem Wert von $\Theta_{D_{eff}}^{(00)}$ abgeschätzt werden, daß die parallele Komponente der mittleren quadratischen Schwingungsamplitude $\langle u_{\parallel}^2 \rangle$ an der Oberfläche in der Größenordnung des Bulk-Wertes sein sollte. Durch die größere Komponente des parallelen Impulsübertrages für den $(\frac{3}{2}0)$ Reflex gegenüber dem (10) Reflex, ist der Beitrag der parallelen Komponente $\Theta_{D_{\parallel}}^{eff}$ zur gesamten effektiven Debye-Temperatur beim $(\frac{3}{2}0)$ Reflex größer als beim (10) Reflex. Demzufolge müßte nach Gl. (5.9) der Wert für $\Theta_{D_{eff}}^{(\frac{3}{2}0)}$ größer sein als $\Theta_{D_{eff}}^{(10)}$. Diese Erwartung ist konsistent mit den experimentellen Ergebnissen. Gegenüber der parallelen Komponente der mittleren quadratischen Schwingungsamplituden ist die senkrechte Komponente $\langle u_{\perp}^2 \rangle$ an der Oberfläche gegenüber dem Wert im Kristallvolumen um einen Faktor 3 erhöht [116, 121], was aufgrund der erhöhten Anharmonizität senkrecht zur Oberfläche zu erwarten ist.

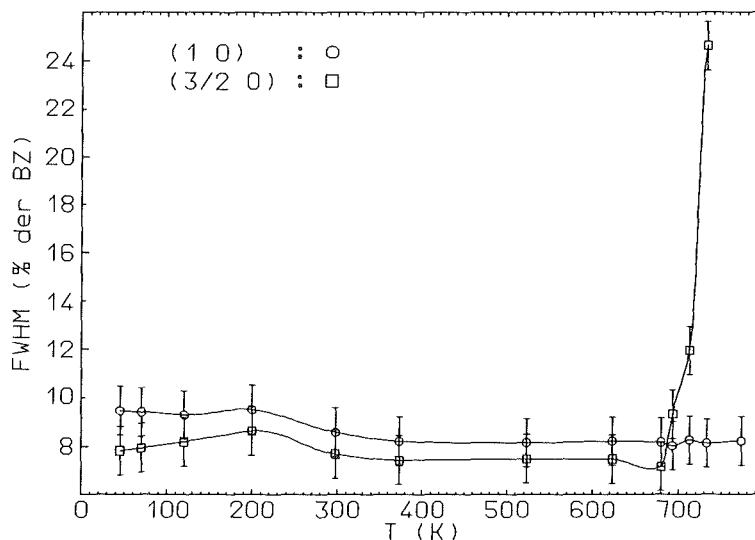


Abb. 5.3: Halbwertsbreite des (10) und des $(\frac{3}{2}0)$ Reflexes als Funktion der Temperatur von einer tiefsten Temperatur $T=45K$ bis $T=772K$. Die eingezeichneten Linien sind Spline Fits als Führung für das Auge.

In Abbildung 5.3 sind die Halbwertsbreiten der (10) und ($\frac{3}{2}$ 0) Reflexe als Funktion der Temperatur aufgetragen. Die Halbwertsbreite wurde in relativen Einheiten der Größe der Brillouin-Zone (BZ) in [001] Richtung aufgetragen mit $BZ = 2\pi/a$. In diesem Schaubild möchte ich drei unterschiedliche Bereiche diskutieren. Im ersten Bereich unterhalb $T=300\text{K}$ ist zu erkennen, daß die Halbwertsbreite des (10) Peaks bis $T=120\text{K}$ leicht abfällt, während die des ($\frac{3}{2}$ 0) Peaks ansteigt. Für dieses Verhalten konnte keine plausible Erklärungsmöglichkeit gefunden werden. Den Halbwertsbreiten beider Reflexe ist jedoch gemeinsam, daß die Halbwertsbreiten bei $T=200\text{K}$ ein relatives Maximum besitzen. Wie schon erwähnt, kann der Einfluß von aufgefrorenen Adsorbaten ausgeschossen werden. Da in einer theoretischen Arbeit von Garofalo *et al.* [65] eine Strukturveränderung bei einer Temperatur von $T\approx 230\text{K}$ vorausgesagt wurde, lag es nahe, diese für die Meßergebnisse verantwortlich zu machen. Diese Strukturveränderung sollte sich in einer Verschiebung der obersten Atome in $[1\bar{1}0]$ Richtung bei niedrigen Temperaturen unterhalb 230K bemerkbar machen. Als Folge dessen müßte sich die gesamte Multilagenrelaxation geringfügig ändern. In der Arbeit von Nold [121] konnte durch MEIS-Experimente bei tiefen Temperaturen diese Strukturänderung nahezu vollständig ausgeschlossen werden. Es ist jedoch nicht auszuschließen, daß eine andere Strukturänderung vorliegt. Bei Temperaturen oberhalb 300K bleibt die Halbwertsbreite beider Reflexe im wesentlichen bis auf $T=620\text{K}$ konstant. Ab 620K zeigt der ($\frac{3}{2}$ 0) Reflex eine Verringerung der Peakbreite, um sich dann anschließend stark zu verbreitern. Die Veränderung der Halbwertsbreite bei und oberhalb T_c ist ein Maß für die Änderung der inversen Korrelationslänge beim $(2\times 1)\rightarrow(1\times 1)$ Übergang (siehe Kap. 3.2.2, Gl. (3.11) auf Seite 21). Der (10) Reflex zeigt jedoch bis 772K keine deutliche Veränderung der Halbwertsbreite, d.h. die Halbwertsbreite entspricht der instrumentellen Auflösung.

5.1.3 Auswirkungen der kritischen Fluktuationen auf die Überstruktur-Reflexe

Wie in Kapitel 3.2.3 schon diskutiert, wird in verschiedenen Arbeiten [49, 110] angenommen, daß der $(2\times 1)\rightarrow(1\times 1)$ Übergang an der Au(110)-Oberfläche gut mit dem 2D-Ising Modell beschrieben werden kann. Da der $(2\times 1)\rightarrow(1\times 1)$ Übergang ein Phasenübergang 2-ter Ordnung ist, sind schon weit unterhalb T_c ungeordnete Bereiche vorhanden. Dies führt zu statistischen Fluktuationen in der Ordnung der Überstruktur. Bei Beugungsexperimenten sollten diese Fluktuationen einen Lorentzförmigen Beitrag zum Beugungspeak geben [75, S.132]. Dieser Sachverhalt ist in Abbildung 5.4 für vier verschiedene Temperaturen skizziert. Der diffuse Lorentzförmige Beitrag unter dem als senkrechte Linie gezeichneten Bragg-Reflex (Abb. 5.4 oben und zweiter Peak von oben), verursacht durch Fluktuationen die mit dem $(2\times 1)\rightarrow(1\times 1)$ Phasenübergang zusammenhängen, ist jedoch nur beobachtbar, falls die Kohärenzlänge der Beugungsmethode größer ist, als die Größe der geordneten Bereiche der (2×1) Überstruktur, oder falls die (2×1) Struktur nicht vollständig geordnet vorliegt, und so die mittlere Größe der Domänen innerhalb der apparativen Kohärenzlänge liegt.

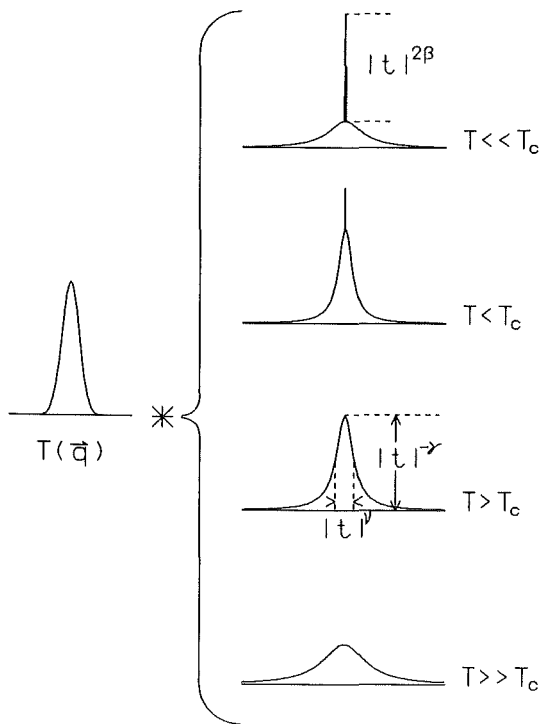


Abb. 5.4: Schematische Darstellung des Profils eines Überstruktur-Reflexes (Bragg- und Diffuse-Intensität). Bei niedrigen Temperaturen $T \ll T_c$ überwiegt die langreichweitige Ordnung (δ -Peak). Bei $T < T_c$ ist ein deutlich erhöhter Anteil an diffuser Streuung zu erkennen, während bei $T > T_c$ der langreichweitige Anteil (δ -Peak) verschwunden ist. Bei $T \gg T_c$ zeigt die diffuse Streuung eine sehr breite Verteilung, entsprechend einer kleineren Korrelationslänge ξ oberhalb des Phasenüberganges. Der linke Peak im Bild stellt die Transferfunktion $T(\vec{q})$ dar, mit der die rechten Peaks noch gefaltet werden müssen (Symbol '*'). Die Exponenten β , ν und γ , sowie die reduzierte Temperatur t sind in Kapitel 3.2.2 definiert. Die Abbildung wurde aus [75, S.133] übernommen.

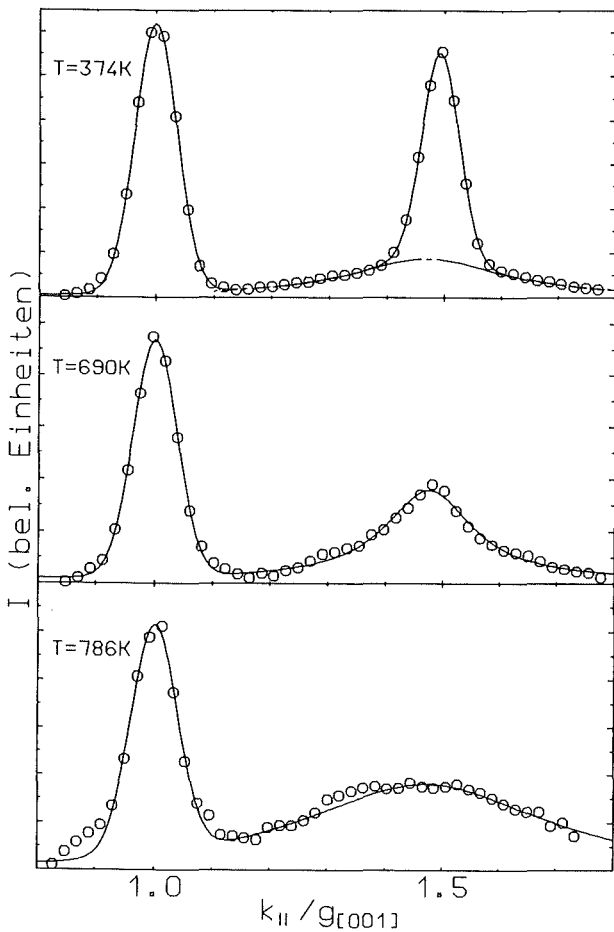


Abb. 5.5: Gemessene Beugungsprofile des (10) (links) und des $(\frac{3}{2}0)$ Reflexes (rechts) bei drei unterschiedlichen Temperaturen, $T \ll T_c$ (374K), $T \approx T_c$ (690K) und $T \gg T_c$ (786K). Die Elektronenenergie war $E=55\text{eV}$. Die eingezeichneten Linien stellen Gauß-, bzw. Lorentzfits an die Daten dar. Nur bei den Überstruktur-Reflexen ist ein temperaturabhängiger Sockel beobachtbar, der mit den kritischen Fluktuationen zusammenhängt (s. Text).

In Abbildung 5.5 sind Beugungsprofile bei drei verschiedenen Temperaturen an einer unvollständig geordneten (2×1) Struktur dargestellt. Gezeigt sind die gemessenen Peakprofile von (10) und ($\frac{3}{2}0$) Reflexen bei drei verschiedenen Temperaturen, $T < T_c$, $T \approx T_c$ und $T > T_c$. Deutlich ist bei $T = 374\text{K}$ der breite Lorentzförmige Sockel zu sehen, auf dem der eigentliche Peak sitzt. Dieser Fall entspricht dem obersten Peak in Abb. 5.4. Bei $T = 690\text{K}$, in der Nähe des Phasenüberganges, ist deutlich der stärkere Anteil des diffusen Peaks zu erkennen, während der Gaußförmige Peak (Auflösungsfunktion) nicht mehr separierbar ist (entspricht in Abb. 5.4 dem zweiten oder dritten Peak von oben). Bei der höchsten Temperatur von $T = 786\text{K}$ ist eine starke Verbreiterung des diffusen Peaks zu erkennen, entsprechend dem unteren Bild in Abb. 5.4. Diese Verbreiterung wird durch eine Verkleinerung der Korrelationslänge ξ verursacht (vergl. Kap. 3.2.2 Gl. (3.11) auf Seite 21).

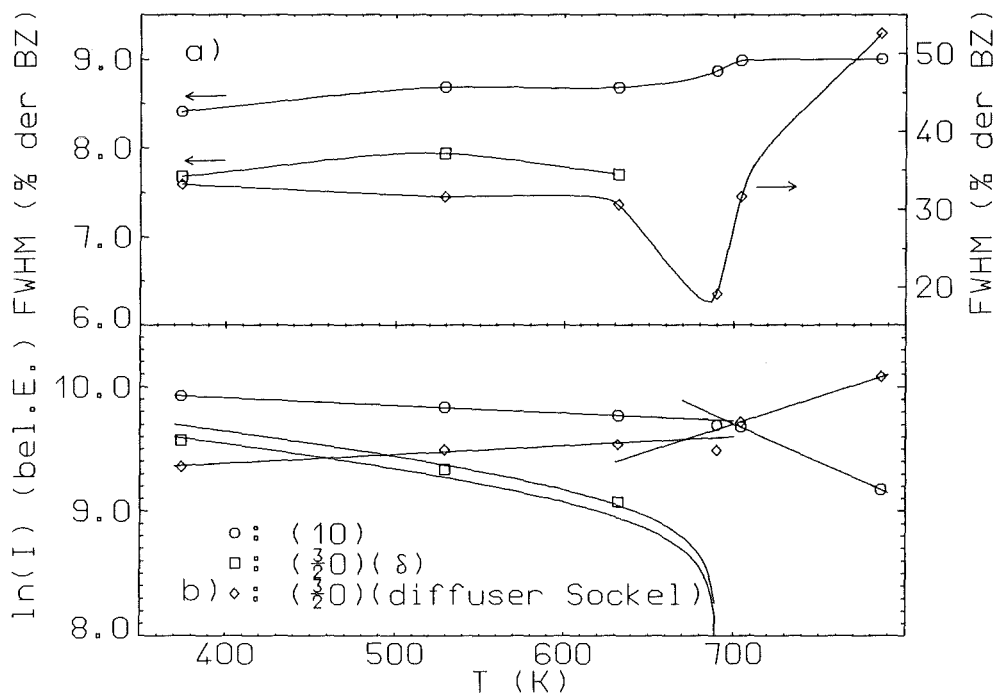


Abb. 5.6: Temperaturabhängige Halbwertsbreite (FWHM) und Intensitäten der (10) und ($\frac{3}{2}0$) Reflexe bei $E = 55\text{eV}$ und senkrechtem Einfall der Elektronen ($\Theta = 0^\circ$). In a) ist die Halbwertsbreite in Einheiten der Brillouin-Zone (BZ) in [001] Richtung angegeben. Die eingezeichneten Linien sind Spline-Fits als Führung für das Auge. Abb. b) zeigt den Logarithmus der unterschiedlichen Peakintensitäten. Die eingezeichneten Geraden sind Fits als Führung für das Auge. Die beiden Kurven über der Bragg-Intensität (\square) sind Beispielrechnungen nach Gl. (5.10) für die erwartete exponentielle Abnahme der langreichweitigen Peakintensität unterhalb T_c . Als Parameter wurden $T_c = 690\text{K}$ und $\bar{M} = (1.78 \times 10^{-3})\text{K}^{-1}$ genommen. Die obere Kurve wurde mit $\beta = 0.125$ und die untere Kurve mit $\beta = 0.1$ berechnet. In beiden Abbildungen repräsentieren (\circ) (10) Peak, (\square) ($\frac{3}{2}0$) Bragg-Peak und (\diamond) den diffusen Sockel unter dem ($\frac{3}{2}0$) Peak.

In Abbildung 5.6 ist die Auswertung der Halbwertsbreiten sowie der Peakintensitäten dieser Messung aufgetragen. In Abb. 5.6a ist die Halbwertsbreite (FWHM) in Einheiten der Größe der Brillouin-Zone (BZ) dargestellt und in Abb. 5.6b die entsprechenden Peak-Intensitäten. Über die Intensitätsdaten des halbzahligen, von der langreichweitigen Ordnung erzeugten Reflexes (Quadrate), wurde zum Vergleich das erwartete expo-

nentielle Abfallen der Intensität (siehe Gl. (3.13) Seite 22) mit zwei unterschiedlichen Exponenten eingetragen. Bei der Berechnung wurde das Debye-Waller Verhalten mit berücksichtigt. Die obere Kurve wurde mit $\beta = 0.1$ und die untere mit $\beta = 0.125$ (Ising-Exponent) berechnet. Dieses Verhalten wird im folgenden Abschnitt noch ausführlicher diskutiert. Bei den Intensitäten der anderen Peaks ist beim (10) Peak das schon in Abb. 5.2 gezeigte Debye-Waller Verhalten zu erkennen. Beim diffusen Anteil (Rauten) steigt die logarithmische Intensität nahezu linear an, um oberhalb T_c etwas stärker anzusteigen. Es wird jedoch erwartet [75], daß die diffuse Intensität bei noch höheren Temperaturen wieder abfällt. Dieser Bereich wurde bei dieser Messung nicht mehr erfaßt. Dieses Verhalten kann mit theoretischen Betrachtungen des Phasenüberganges [75] erklärt werden. In der oberen Teilabbildung 5.6a ist für die Halbwertsbreite des diffusen Peaks (Rauten) eine deutliche Abnahme zu erkennen. Die inverse Halbwertsbreite dieses Peaks ist ein Maß für die Korrelationslänge ξ (Gl. 3.11)). Aus theoretischen Betrachtungen [75] wird erwartet, daß die Korrelationslänge ξ bei T_c gegen ∞ geht (vergl. Gl.(3.11)), d.h. die Halbwertsbreite geht gegen Null. Die Halbwertsbreiten des langreichweitigen Anteils (Quadrate) sowie des ganzzahligen Peaks (Kreise) bleiben, im Rahmen der Meßgenauigkeit, nahezu konstant. Lediglich ein leichtes Ansteigen der Halbwertsbreite des (10)-Peaks oberhalb T_c ist zu erkennen, was auf eine leicht erhöhte Stufendichte schließen läßt (vergleiche Kapitel 4.2.4).

Der diffuse Sockel unter dem ($\frac{3}{2}0$) Reflex konnte nur in der in Abb. 5.6 gezeigten Deutlichkeit beobachtet werden, da die (2x1) Struktur wegen nicht ausreichendem Tempern nur unvollständig geordnet war. Trotzdem ist in Abb. 5.6 erkennbar, daß das Temperaturverhalten der unvollständig geordneten (2x1) Struktur auch recht gut im Rahmen eines 2D-Ising Modells beschrieben werden kann.

5.1.4 Analyse der Temperaturabhängigkeit des $(\frac{3}{2}0)$ Reflexes

Um die Temperaturabhängigkeit der Intensität des $(\frac{3}{2}0)$ Peaks quantitativ diskutieren zu können, wurden Daten von Zimmerman [116] benutzt, die in wesentlich kleineren Temperaturschritten gemessen wurden, als die in Abb. 5.6 dargestellten Daten. Im Gegensatz zum vorherigen Kapitel, lag bei der Messung die zu diesen Daten führte, eine vollständig geordnete (2×1) Struktur vor. Dies ließ sich dadurch feststellen, daß bei Raumtemperatur kein deutlicher diffuser Sockel beobachtbar war.

In Kapitel 3.2.2 wurde diskutiert, daß die Intensität eines Überstruktur Reflexes ein Maß für das Quadrat des Ordnungsparameters Ψ ist. Aus diesem Grund wurde an die Intensitäten des $(\frac{3}{2}0)$ Peaks als Funktion der Temperatur eine Potenzfunktion, entsprechend Gl. (3.13) angepaßt. Als Fitfunktion wurde jedoch das Quadrat von Gl. (3.13), multipliziert mit dem Debye-Waller-Faktor, benutzt.

$$I(T) = I_0 \left| 1 - \frac{T}{T_c} \right|^{2\beta} e^{-2\overline{M}T} \quad (5.10)$$

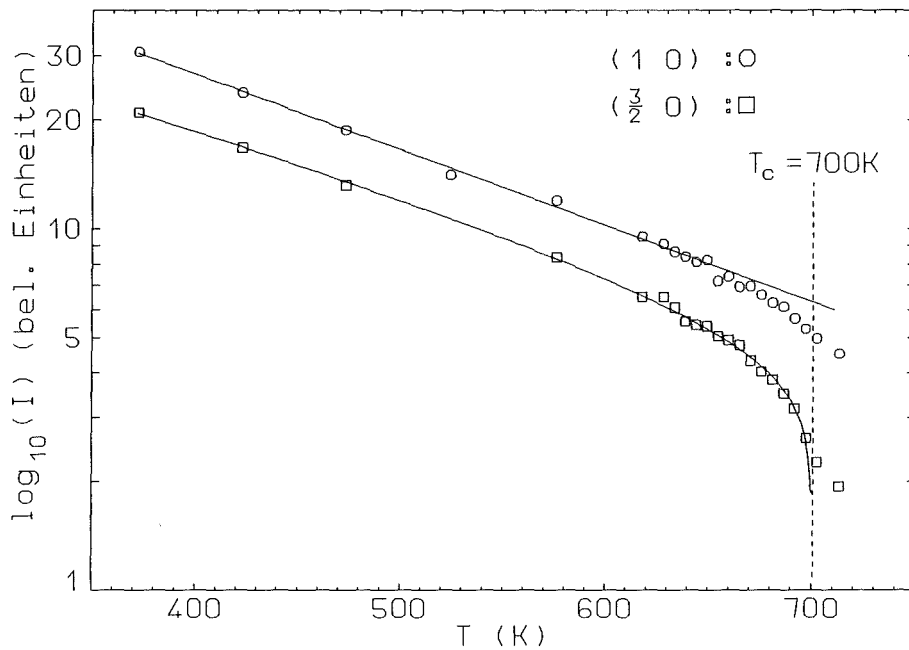


Abb. 5.7: Logarithmierte Intensitäten des (10) und $(\frac{3}{2}0)$ Peaks als Funktion der Temperatur bei $E=55\text{eV}$ und einem Einfallswinkel von $\Theta = 0^\circ$. Die Gerade stellt ein Fit an die Daten des (10) Peaks dar, die Kurve ein exponentieller Fit mit Debye-Waller Faktor (siehe Text) an die Daten des $(\frac{3}{2}0)$ Peaks. Die Daten stammen von [116].

Beim Fit wurden die folgenden Parameter variiert: I_0 , T_c , β und \overline{M} . Das Ergebnis des besten Fits ist in Abbildung 5.7 als Kurve eingezeichnet, die gut auf den Datenpunkten [116] liegt. Hierbei ist noch zu bemerken, daß ein bester Fit (minimales χ^2) erzielt werden konnte, nach dem die beiden letzten Intensitätswerte nicht berücksichtigt

wurden. Es wird erwartet, daß diese beiden Intensitätswerte schon dem diffusen Lorentzförmigen Beitrag zuzuordnen sind. Die Intensität des diffusen Beitrages kann mit der dynamischen Suzeptibilität χ des Systems identifiziert werden. Aus Gl. (3.15) folgt, daß die Intensität unterhalb T_c anzusteigen beginnt und oberhalb T_c wieder abfällt [49, 75]. Deshalb wird schon in den Intensitätswerten unterhalb von T_c ein kleiner Beitrag des Lorentzförmigen Peaks (Diffuse Intensität) enthalten sein. An den Peakprofilen die zu den in Abb. 5.7 gezeigten Daten führten, konnte keine Separation zwischen Intensität von langreichweitiger Ordnung (Gauß-Peak) und diffuser Intensität (Lorentz-Peak) gemacht werden, da der Untergrund in dieser Messung schlecht bestimmt werden konnte.

Die Parameter des besten Fits waren:

$$\begin{aligned} T_c &= 700.7K \pm 1K \\ \beta &= 0.102 \pm 0.008 \\ \overline{M} &= 1.78 \times 10^{-3}K^{-1} \pm 0.05 \times 10^{-3}K^{-1} \end{aligned}$$

Aus der Steigung des Geradenfits für den (10) Peak und dem Parameter \overline{M} können die effektiven Debye-Temperaturen für die einzelnen Beugungsreflexe berechnet werden (vergl. hierzu Kapitel 5.1.2 auf Seite 65):

$$\begin{aligned} \Theta_{D_{eff}}^{(10)} &= 106K \pm 1K \\ \Theta_{D_{eff}}^{(\frac{3}{2}0)} &= 118K \pm 2K \end{aligned}$$

Werden diese Ergebnisse für die effektiven Debye-Temperaturen mit denen der tief-temperatur Messung (Seite 65) verglichen, so sind die Werte dieser Analyse um ca. 8% kleiner. Die Verhältnisse zwischen $\Theta_{D_{eff}}^{(10)}$ und $\Theta_{D_{eff}}^{(\frac{3}{2}0)}$ ($\Theta_{D_{eff}}^{(10)} < \Theta_{D_{eff}}^{(\frac{3}{2}0)}$) sind jedoch im wesentlichen erhalten geblieben. Bei der Bestimmung der effektiven Debye-Temperaturen wird über den gesamten Temperaturbereich der Messung gemittelt. Die Abnahme der effektiven Debye-Temperaturen läßt sich durch eine stärkere Anharmonizität ab einer Temperatur von ca. 300K erklären. Hierdurch wird die effektive Debye-Temperatur $\Theta_{D_{eff}}$ an der Oberfläche mit steigender Temperatur kleiner werden.

Als weitere Ergebnisse dieser Analyse wurde ein Wert für T_c sowie für den kritischen Exponenten β ermittelt. Der Wert für T_c ist größer als bei einer Analyse der temperaturabhängigen Halbwertsbreiten des $(\frac{3}{2}0)$ Peaks [116], die einen Wert von $T_c \approx 680K$ liefert.

Wird der ermittelte kritische Exponent β mit Werten aus der Literatur verglichen, so wurde in dieser Analyse der bisher kleinste beobachtete Wert ermittelt. In einer Arbeit von Mc Rae *et al.* [70], in der der $(2 \times 1) \rightarrow (1 \times 1)$ Übergang als Funktion der Konzentration von Sn Verunreinigungen untersucht wurde, ergab sich, daß mit steigender Sn Konzentration β anstieg. Der von Mc Rae ermittelte größte Wert war $\beta = 0.5$. In einer kürzlich veröffentlichten Arbeit [110] wurde der Fit noch mit einer Gaußverteilung der Übergangstemperaturen gefaltet. Mit dieser Analyse wurde ein Wert von $\beta = 0.114$ gefunden. Der in dieser Arbeit gefundene Wert für β ist nur unwesentlich unterhalb des für einen 2D-Ising Übergang vorausgesagten theoretischen Wert von $\beta = \frac{1}{8}$ (vergl. Tab. 3.1

auf Seite 22). Dieser Unterschied zur Theorie kann auf die fehlende Trennung zwischen diffuser- und Bragg-Intensität zurückgeführt werden. Ein kleinerer Wert bedeutet, daß unterhalb T_c mehr Intensität vorhanden ist, als theoretisch erwartet wird, wohingegen in der Nähe von T_c die Intensität schneller abfallen sollte. Wie oben schon erwähnt, wird erwartet, daß die Intensität in der Nähe von T_c durch einen Beitrag von diffuser Intensität erhöht wird.

5.1.5 Stufenanalyse

Wie in Kapitel 4.2.4, Abb. 4.8 auf Seite 51 anhand von Modellrechnungen für eine gestufte Oberfläche gezeigt wurde, verändert sich die Peaklage der halbzahligen Reflexe periodisch mit senkrechtem Impulsübertrag k_{\perp} . Die Verschiebung der Peaklage wurde zum ersten Mal in einer früheren Arbeit von Robinson *et al.* [38, 40] durch Beugungsexperimente an einer Au(110)(2x1)-Oberfläche mit Synchrotron-Strahlung bei Raumtemperatur nachgewiesen. Aus diesem Grund wurde versucht eine erste Messung mit LEED durchzuführen, um die durch Stufen hervorgerufene Peakshift der halbzahligen Reflexe nachzuweisen. Hierzu wurden Profile der (10) und $(\frac{3}{2}0)$ Peaks bei unterschiedlichen Elektronenenergien und einer Proben temperatur von $T=660\text{K}$ aufgenommen und die Peakpositionen aus der Geometrie der Versuchsanordnung in die entsprechenden Beugungswinkel umgerechnet. Aus diesen Daten wurde durch Vergleich des $(\frac{3}{2}0)$ -Beugungswinkels $\vartheta_{\frac{3}{2}0}$ mit dem (10)-Beugungswinkel ϑ_{10} unter Ausnutzung der Bragg-Bedingung

$$\sin \vartheta_{n0} = \frac{n\pi}{k_{\parallel} a_{[001]}}, \quad \text{mit } n = \pm \frac{1}{2}, \pm 1, \pm \frac{3}{2}, \pm 2, \dots,$$

die Peakposition des $(\frac{3}{2}0)$ Peaks in absoluten Einheiten $k_{\parallel}/g_{[001]}$ bestimmt. Das Ergebnis ist in Abbildung 5.8 dargestellt. Es ist deutlich eine Oszillation der Position zu erkennen. Die eingezeichnete Linie zeigt eine Beispielrechnung nach Gleichungen (4.12) und (4.21). Als Parameter wurden $\alpha = 0.5$, $\beta = 0.5$, $\gamma = 0.11$, $H = 1$, $\epsilon = 0.01$ und $\delta = 0.5$ eingesetzt. Nach Gl. (4.4) wurde für diese Parameter eine mittlere Terrassenbreite von ca. 66\AA abgeschätzt. Dies stellt das erste Experiment dar, in dem mit LEED die für eine gestufte Oberfläche erwartete Verschiebung der Peaklage eines halbzahligen Reflexes nachgewiesen werden konnte [99].

Außerdem wurde versucht, durch erste Messungen mit LEED den erwarteten *Rougheningübergang* an der Au(110)-Oberfläche [77, 87, 95, 96, 97] nachzuweisen. Wie in Kapitel 4.2.4 Abb. 4.14 gezeigt wurde, kann eine Erhöhung der Stufendichte und somit der Rauigkeit durch eine Verbreiterung der Halbwertsbreite der ganzzahligen Beugungsreflexe bei bestimmten außer-phasen Bedingungen festgestellt werden. Dies wurde in einer Messung von Zimmermann [116] am (00) Reflex bei $E=23\text{eV}$ durchgeführt. Bei ersten Messungen wurde jedoch eine starke Zeitabhängigkeit der Verbreiterung festgestellt. Aus diesem Grund wurden Messungen für verschiedenen Wartezeiten zwischen der Datenaufnahme bei verschiedenen Temperaturen durchgeführt. In Abbildung 5.9 ist das Ergebnis der Messungen aus [116] für zwei verschiedene Wartezeiten aufgetragen.

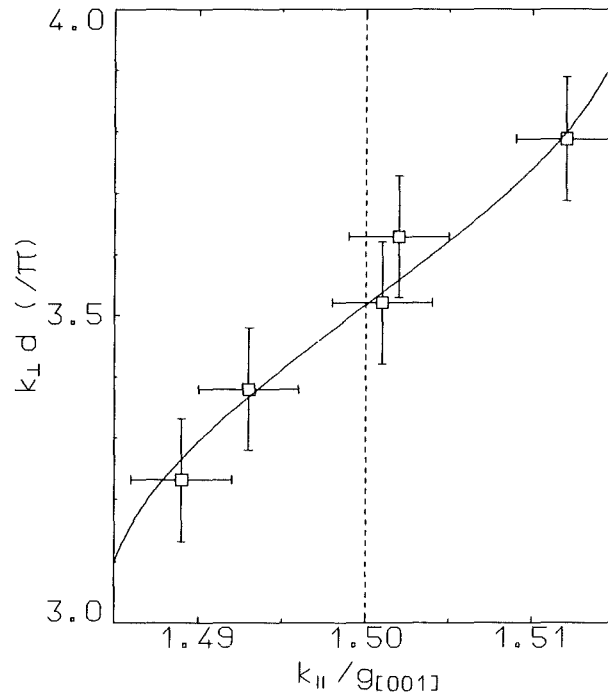


Abb. 5.8: Peakposition des $(\frac{3}{2}0)$ Peaks bei verschiedenen Werten des senkrechten Impulsübertrages $k_{\perp} \cdot d$ bei einer Probertemperatur von $T=660\text{K}$. Die eingezeichnete Linie stellt eine Modellrechnung nach Gl. (4.12) und (4.21) dar und entspricht im wesentlichen Abb. 4.8. Die Werte für senkrechten und parallelen Impulsübertrag sind in relativen Einheiten angegeben.

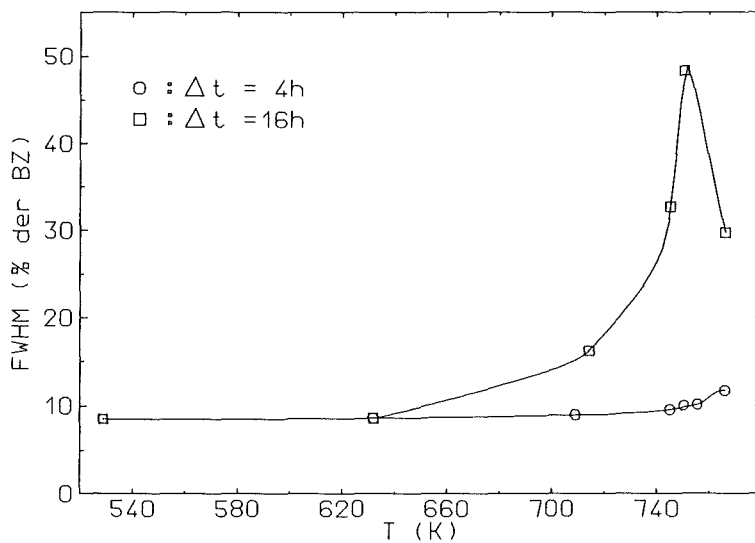


Abb. 5.9: Halbwertsbreite (FWHM) des (00) Beugungsreflexes bei $E=23\text{eV}$ und $\Theta = 13^\circ$ für zwei unterschiedliche Wartezeiten zwischen der Datenaufnahme: (o) $\Delta t=4\text{h}$ und (□) $\Delta t=16\text{h}$ [116]. Die eingezeichneten Kurven sind Spline Fits als Führung für das Auge.

Für beide Wartezeiten ist oberhalb einer Temperatur von $T_R \approx 700\text{K}$ eine Verbreiterung des Peaks zu erkennen. Dies kann auf eine Erhöhung der Stufendichte zurückgeführt werden, da die Beugungsbedingung für $E=23\text{eV}$ und $\Theta = 13^\circ$ bei einer außerphasen Bedingung von $k_{\perp} \cdot d \approx 2.2\pi$ liegt und somit für Stufen empfindlich ist. Wie

in [112], bzw. [116] gezeigt wurde, ist parallel hierzu eine deutliche Veränderung des Peakprofils von Gaußförmig in Lorentzförmig erkennbar.

Im Vergleich der Halbwertsbreiten für unterschiedliche Wartezeiten, ist ein drastischer Unterschied zu erkennen. Für längere Wartezeiten zwischen den Datenaufnahmen ist eine starke Erhöhung der Halbwertsbreiten sichtbar. Die Halbwertsbreite zeigt bei einer Temperatur von 750K ein Maximum von ca. 50% der BZ. Diese extreme Verbreiterung kann wahrscheinlich nicht mehr alleine mit einer Erhöhung der Stufendichte erklärt werden, sondern durch einen zusätzlichen Beitrag von inkohärenter Streuung an Fehlstellen, der in [42] im Rahmen einer kinematischen Theorie berechnet wurde. Wie in einer Modellrechnung für das *Roughening* gezeigt wurde [29] (siehe Abb. 3.3, Seite 30), bilden sich oberhalb T_R an Stufen zusätzliche Ecken und Fehlstellen, die sich bei der Beugung in einem diffusen, inkohärenten Untergrund, der jedoch noch im k -Raum strukturiert ist, bemerkbar machen. Es kann daher angenommen werden, daß die starke Verbreiterung des Peaks bei $T=750K$ durch einen inkohärenten Beitrag, der in den Profilen nicht vom kohärenten Beitrag getrennt werden konnte, verursacht wurde. Bemerkenswert ist jedoch noch die Verschmälerung des Peaks bei weiterer Erhöhung der Temperatur. Die beobachtete Verringerung der Halbwertsbreite oberhalb 750K könnte durch ein Einsetzen eines Diffusionsprozesses hervorgerufen werden, der die Rauigkeit, bzw. die Fehlstellenkonzentration, verringert. Untermauert wird diese Hypothese noch durch den erst kürzlich nachgewiesenen *Premelting* Effekt an dieser Oberfläche [119, 120], der bei einer Temperatur von $T^* = 770K$ einsetzen soll, verbunden mit der Bildung einer quasi-flüssigen Oberflächenschicht durch erhöhte laterale Diffusion. Ein vergleichbarer Effekt konnte an einer Pb(111) Oberfläche [83] durch LEED gefunden werden.

Aufgrund des Ergebnisses der zeitabhängigen Untersuchungen [116] wird angenommen, daß eine Wartezeit von mindesten 8h erforderlich ist, um die Oberfläche in ein thermisches Gleichgewicht zu bringen.

5.2 SPA-LEED Ergebnisse

Um detailliertere Angaben über die Rauigkeit an der Au(110)-Oberfläche machen zu können, mußte eine Methode verwendet werden, die eine wesentlich bessere parallele Impulsauflösung bietet, als herkömmliches LEED. SPA-LEED bietet nun eine um einen Faktor 20 bessere Auflösung als herkömmliches LEED. Wie in Kapitel 2.2 schon angegeben, beträgt die Transferbreite ca. 1500\AA [53, 78, 80, 113]. Dies stellt eine Impulsauflösung von $\Delta k_{\parallel} = 3.7 \times 10^{-3}\text{\AA}^{-1}$ dar. In diesem Experiment wurde jedoch eine maximale Auflösung von $\Delta k_{\parallel} = 2 \times 10^{-2}\text{\AA}^{-1}$ bei der in-phasen Energie von 72eV gefunden. Diese große Diskrepanz in der Auflösung von einem Faktor 5 kann mit der Qualität des Au-Kristalls erklärt werden. Die Bestimmung der maximalen Auflösung wurde an Halbleiteroberflächen durchgeführt. Diese Einkristalle haben in der Regel extrem kleine Mosaikwinkel ($\ll 1^\circ$) sowie sehr große Körner ($\approx 0.1\text{mm}$). Der hier verwendete Au-Kristall hatte, nach Angaben des Herstellers, eine Mosaikbreite von 10° über die gesamte Oberfläche. Zusätzlich findet man an Metalleinkristallen wesentlich kleinere Körner (200\AA – 5000\AA) im Vergleich zu Halbleitern. Diese Kristallfehler machen sich in der verschlechterten Auflösung bei den in-phasen Energien bemerkbar. Hierdurch wird der Auflösungsgewinn von SPA-LEED gegenüber LEED auf einen Faktor 4 verringert.

5.2.1 Experimentvorbereitung

Um alle Messungen bei unterschiedlichen Temperaturen im thermischen Gleichgewicht durchzuführen, wurde zwischen zwei Temperaturen jedesmal mindestens 8–12h gewartet. Diese Maßnahme begründete sich auf den Ergebnissen der zeitabhängigen Studie des FWHM des (00) Reflexes [116] (siehe vorheriges Kapitel).

Um den Au-Kristall durch den Transfer an Luft nach Tübingen nicht zu beschädigen, wurde er auf dem Mo-Probenräger belassen. Nach Montage des Probenrägers und ausheizen der Kammer, konnte schon nach 5–10 Sputterzyklen bei 500eV Ar^+ und einem Ionenstrom von ca. $5\mu\text{A}$, gemessen über die gesamte Probe, im SPA-LEED eine geordnete (110)(2x1) Struktur beobachtet werden. Der Kristall wurde vor Beginn der Messungen bei 523K ca. 24h getempert, um Gitterfehler auszuheilen, die durch Sputtern verursacht wurden. Vor den Messungen wurde die Probe derart ausgerichtet, daß die Elektronen des (00) Reflexes ohne angelegte Oktopolspannung in das Channeltron trafen; die Probe hatte also einen Winkel von 3.75° gegenüber der optischen Achse des SPA-LEED's. Anschließend wurde die Elektronenoptik und die elektrostatische Linse derart justiert, so daß sich für die in-phasen Energien bei $E=18.2\text{eV}$ und $E=72\text{eV}$ für den (00) Peak in [001] und $[1\bar{1}0]$ Richtung Profile mit gleicher Halbwertsbreite ergaben. In einer Flächendarstellung, ähnlich dem Beugungsbild einer herkömmlichen LEED-Optik, wurde zusätzlich kontrolliert, ob die Peakprofile nahezu kreisförmig waren. Diese Justierung ist gerechtfertigt, unter der Annahme, daß das Peakprofil bei den in-phasen

Energien nur von Kristallgitterfehler beeinflusst wird und diese eine isotrope Verteilung aufweisen.

5.2.2 Kalibrierung des parallelen Impulsübertrages

Alle Angaben des Impulsübertrages (k_{\parallel} und k_{\perp}) in dieser Arbeit sind in absoluten Einheiten angegeben. Um die experimentellen Ergebnisse mit denen der Modellrechnungen vergleichen zu können, mußten sie in den selben Einheiten angegeben werden.

Beim SPA-LEED werden die Elektronen durch Einwirkung eines elektrostatischen Feldes in Oktopolanordnung derart abgelenkt, so daß Elektronen mit entsprechendem parallelen Impuls in das Channeltron treffen. Die Elektronen beschreiben innerhalb des Feldes Parabelbahnen (siehe Abb. 2.4 auf Seite 11). Der Winkel unter dem die Elektronen auf die Probe auftreffen ist:

$$\sin \Theta \sim \frac{eU}{E}$$

(U = Ablenkspannung für Oktopolfeld, E = Elektronenenergie, e = Elementarladung)
Wird nun eine bestimmte Beugungsordnung (Bragg-Reflex) in das Channeltron gelenkt, so verlassen die Elektronen die Probenoberfläche unter dem Winkel:

$$\sin \Theta_n \sim n \cdot \frac{b}{\sqrt{E}}; \quad (\text{Bragg-Bedingung})$$

(n = Beugungsordnung, b = Konstante)

Um die Abhängigkeit der Ablenkspannung von der Elektronenenergie zu finden, die notwendig ist, um eine bestimmte Beugungsordnung n in das Channeltron zu lenken, müssen nur beide Formeln gleichgesetzt werden. Dies liefert:

$$U = c \cdot \sqrt{E} \quad (5.11)$$

(c = apparative Konstante)

In einem SPA-LEED Experiment wird ein Peakprofil aufgenommen, indem die Ablenkspannung am Oktopolfeld von einem minimalen bis zu einem maximalen Wert in diskreten Schritten verändert wird. Zwischen zwei Schritten werden für eine feste, vorwählbare Zeit im Channeltron die Elektronen gezählt. Durch diese Meßmethode wird also die Intensität als Funktion des parallelen Impulsübertrages aufgenommen, wobei die jeweilige Ablenkspannung ein Maß für den entsprechenden parallelen Impulsübertrag ist. Bei Temperaturen bis 663K wurden solche Profile zwischen $E=16\text{eV}$ und $E=164\text{eV}$ und oberhalb zwischen $E=16\text{eV}$ und $E=72\text{eV}$ in $[001]$ und $[1\bar{1}0]$ Richtung aufgenommen. Hierbei wurde, wo es aufgrund der experimentellen Gegebenheiten möglich war, Profile zwischen $(\bar{1}0)$ und (10) Reflex aufgenommen – das Profil beinhaltete also $(\bar{1}0)$, $(\frac{1}{2}0)$, (00) , $(\frac{1}{2}0)$ und (10) Peak. Ein typisches Profil ist in Abbildung 5.10 für $E=41\text{eV}$ bei $T=298\text{K}$ gezeigt.

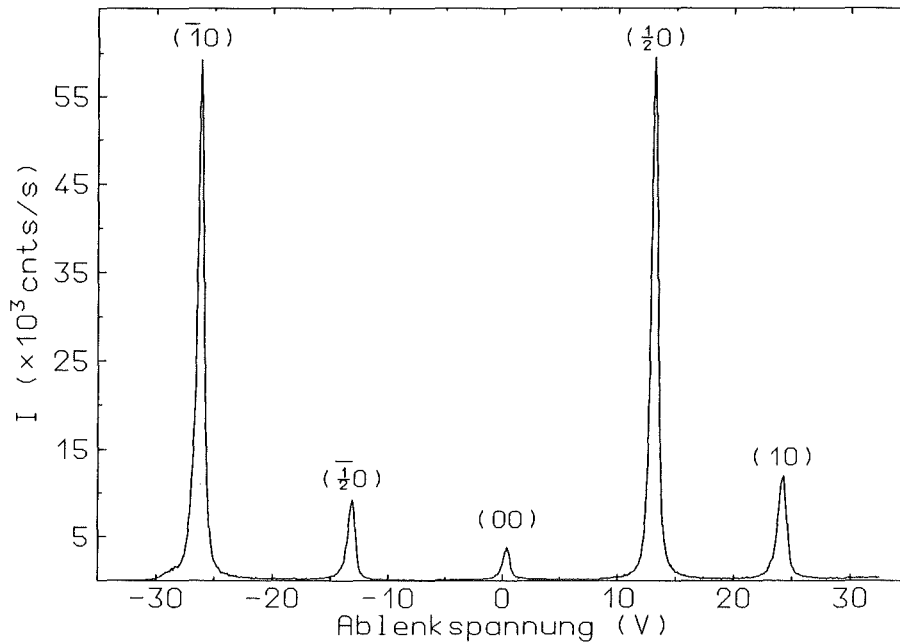


Abb. 5.10: Typisches SPA-LEED Beugungsprofil für $E=41\text{eV}$ (anti-phases Energie) bei $T=298\text{K}$ (vergl. Abb. 4.7). Auf der Ordinate wurde die Ablenkspannung aufgetragen. Die Meßzeit pro Punkt betrug 200ms . Die Zählrate im Maximum entspricht einem Elektronenstrom von $\approx 10^{-14}\text{A}$ bei einer Nachweiswahrscheinlichkeit im Channeltron von 100% .

In dieser Arbeit wurde die Konvention getroffen, Reflexe die einer negativen Ablenkspannung zugeordnet sind, einen negativen Index zu geben. In dieser Abbildung ist für Ablenkspannungen kleiner als -30V ein Abfall der Intensität unterhalb das Untergrundniveau zu beobachten. Dies ist die Transmissionsgrenze des elektrostatischen Linsensystems. Peakprofile, die durch eine derart große Ablenkspannung aufgenommen wurden, sollten daher eine Verzerrung durch Linsenfehler zeigen, da die entsprechenden Elektronen durch den Rand der Linse geflogen sind. Dies kann auch an Profilen des $(\frac{1}{2}0)$ Reflexes bei kleinen Energien ($<30\text{eV}$) anhand einer Anomalie in der Halbwertsbreite beobachtet werden. Die Transmissionsgrenze für positive Ablenkspannung liegt bei $\approx 40\text{V}$. Zusätzlich ist noch eine 'W'-förmige Strukturierung des Untergrundes der Beugungsprofile vorhanden (Dies ist in dieser Abbildung nicht erkennbar, da der Untergrund nicht gut genug aufgelöst wird), die von einem Gitter vor der Channeltron-Öffnung verursacht wird. Dieses Gitter dient zur Herausfilterung inelastisch gebeugter Elektronen innerhalb eines Energiebereichs von $\Delta E=0.1\text{eV}$. Die Strukturierung des Untergrundes der Beugungsprofile macht es nahezu unmöglich, den Anteil an diffuser Streuung an der Intensität zwischen den Reflexen zu separieren (siehe Kapitel 5.1.3).

Um die Ablenkspannung U in einen absoluten parallelen Impulsübertrag $k_{\parallel}/g_{[001]}$ (Größe der Brillouin-Zone (BZ) $= g_{[001]} = 2\pi/a$) kalibrieren zu können, muß die Größe der BZ in Einheiten von U als Funktion der Elektronenenergie bestimmt werden. Hierzu muß der relative Abstand zwischen z.B. Maxima der (00) und (10) Reflexe in Einheiten der Ablenkspannung U abgelesen werden. Der so ermittelte Wert für U als Funktion der Elektronenenergie stellt die Ablenkspannung dar, die der Größe der BZ als Funktion

der Elektronenenergie entspricht. Da jedoch die Peakposition aufgrund einer möglichen Mißorientierung des Kristalls und durch Stufen als Funktion der Energie variieren kann (siehe Abb. 4.10 in Kapitel 4.2.4), muß diese Fehlermöglichkeit bei der Größenbestimmung der BZ ausgeschlossen werden. Dazu werden die relativen Abstände aller Peaks zum (00) Reflex als Funktion der Energie aufgetragen. Bei niedrigen Temperaturen wurde zwischen drei in-phasen Energien gemessen. Da die Änderung der Peakpositionen periodisch ist, sollte sich die Abweichung in der Spannungsdifferenz, hervorgerufen durch eine vorhandene Mißorientierung, bei einem Fit herausmitteln. Ein Ergebnis einer solchen Auswertung ist in Abbildung 5.11 dargestellt. Hierin sind die Peakabstände aller aufgenommenen Reflexe zum Spekularreflex als Funktion der Elektronenenergie aufgetragen. An die Daten wurde eine Wurzelfunktion angepaßt (Gl. (5.11)).

Um eine eventuelle Temperaturabhängigkeit der Spannungsdifferenz zwischen zwei Peaks auszuschließen, wurde an die ermittelten Spannungsdifferenzen für alle Temperaturen und alle Beugungsordnungen eine Wurzelfunktion angepaßt. Dazu wurden die Abstände für die halbzahligen Reflexe mit zwei multipliziert. Als Ergebnis des Fits findet man folgende Beziehung:

$$U = (4.113 \pm 0.020) [V] \cdot \sqrt{E[eV]} - (0.718 \pm 0.150) [V] \quad (5.12)$$

Diese Beziehung wurde zur Kalibrierung bei allen Temperaturen benutzt.

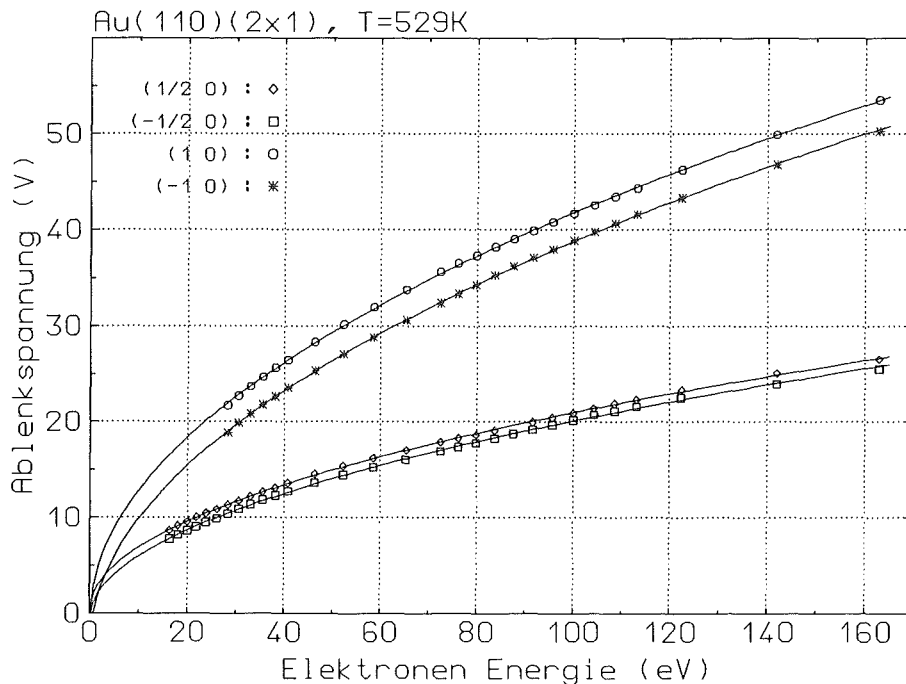


Abb. 5.11: Relative Abstände der Peakpositionen zum (00) Peak als Funktion der Elektronenenergie für T=529K. Die eingezeichneten Kurven sind Wurzelfits an die Daten.

Durch die obige Beziehung (Gl. (5.12)) wird die Größe der BZ in Einheiten der Ablenkspannung U als Funktion der Elektronenenergie definiert. Zur Kalibrierung der

Ablenkspannung bei den gemessenen Beugungsprofile, wie z.B. in Abb 5.10, in Einheiten des absoluten parallelen Impulsübertrages, muß nur für die entsprechende Elektronenenergie die Ablenkspannung durch den Wert aus Gl. (5.12) dividiert werden.

Zusätzlich zur Kalibrierung des parallelen Impulsübertrages mußte noch eine Bestimmung des senkrechten Impulsübertrages vorgenommen werden. Unter Ausnutzung der Beziehung $|\vec{q}| = |\vec{k}_0 - \vec{k}_i| = 4\pi \cos(3.75^\circ) \sqrt{E[eV]/150.4eV}$ folgt:

$$k_{\perp} = \begin{cases} |\vec{q}| & \text{für den } (00) \text{ Reflex} \\ [|\vec{q}|^2 - (\pi/a)^2]^{1/2} & \text{für den } (\frac{1}{2}0) \text{ und } (\bar{1}0) \text{ Reflex} \\ [|\vec{q}|^2 - (2\pi/a)^2]^{1/2} & \text{für den } (10) \text{ und } (\bar{1}0) \text{ Reflex} \end{cases} \quad (5.13)$$

5.2.3 Analyse der Peakpositionen

In einem vorher durchgeführten LEED Experiment (Kapitel 5.1.5) konnte gezeigt werden, daß an der Au(110)(2x1)-Oberfläche unter vorhandensein von Stufen eine energieabhängige Verschiebung der Peakpositionen der halbzahligen Reflexe beobachtbar ist. Bei der Analyse der SPA-LEED Daten wurde die Oszillation der Peakpositionen mit hoher Auflösung temperaturabhängig bestimmt. Das Ergebnis dieser Analyse ist für eine Temperatur (T=663K) für den $(\frac{1}{2}0)$ Reflex beispielhaft in Abbildung 5.12 dargestellt. In dieser Abbildung sind die Rohdaten der Profile der $(\frac{1}{2}0)$ Reflexe für unterschiedliche Werte des senkrechten Impulsübertrags $k_{\perp} \cdot d$ gezeigt. Es ist eine deutliche Oszillation der Peakmaxima als Funktion von $k_{\perp} \cdot d$ zu erkennen.

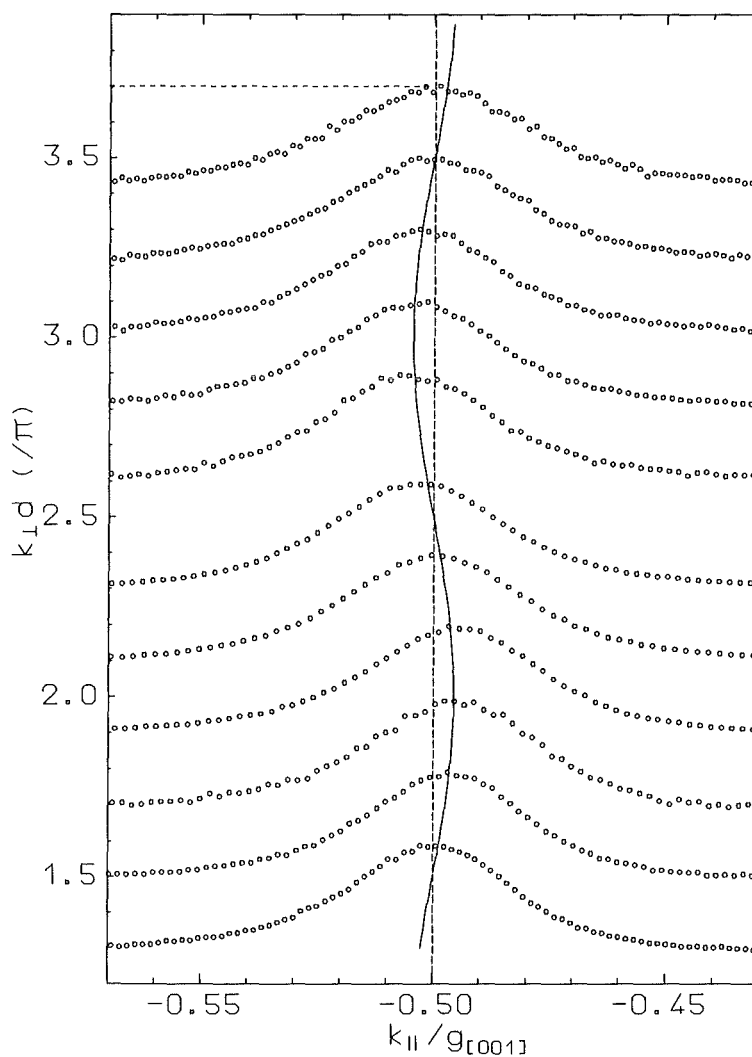


Abb. 5.12: Peakpositionen des $(\frac{1}{2}0)$ Reflexes als Funktion von $k_{\perp} \cdot d$ bei $T=663\text{K}$. Die Peaks wurden auf gleiche Höhe normiert. Das Maximum eines jeden Reflexes liegt auf dem entsprechenden Wert von $k_{\perp} \cdot d$. Die eingezeichnete Kurve ist eine Beispielrechnung nach Gl. (4.12) und (4.21) mit den Parametern $\gamma = 0.043$, $\alpha = 0.5$, $\beta = 0.314$ ($\Theta = -0.17^{\circ}$), $\epsilon = 0.01$ und $\delta = 0.5$.

Eine ausführlichere Analyse aller Peakpositionen, außer der des (00) Reflex, ist bei drei verschiedenen Temperaturen ($T=298\text{K}$, $T=642\text{K}$ und $T=684\text{K}$) in den Abbildungen 5.13, 5.14 und 5.15 zusammen mit Modellrechnungen (durchgezogenen Linien) für eine Oberfläche mit monoatomaren Stufen und einer mittleren Mißorientierung von $\Theta = -0.17^\circ$ gezeigt. Deutlich ist die Oszillation der Peakpositionen um die mittlere Position zu erkennen (vergleiche auch mit Abb. 4.10 auf Seite 53). Die Oszillationen der Peakpositionen des $(\bar{1}0)$ und (10) Reflexes können bis zur höchsten Temperatur von $T=786\text{K}$ beobachtet werden.

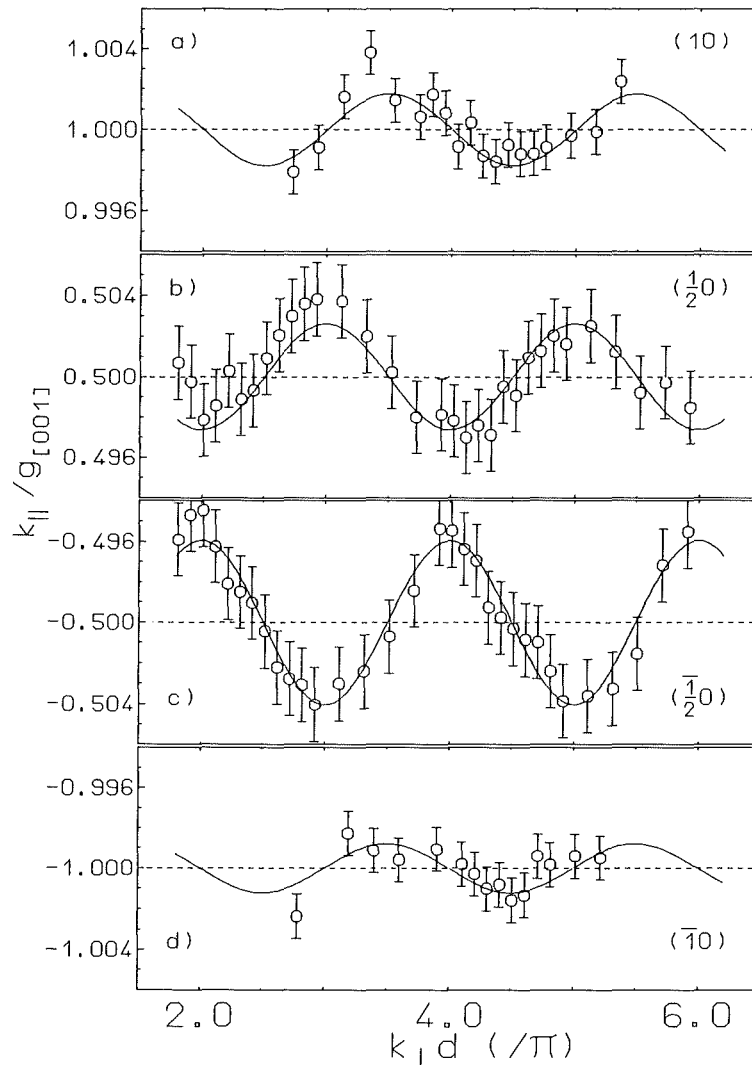


Abb. 5.13: Peakpositionen als Funktion von $k_{\perp} \cdot d$ bei $T=298\text{K}$: a) (10) Peak, b) $(\frac{1}{2}0)$ Peak, c) $(\frac{1}{2}0)$ Peak und d) $(\bar{1}0)$ Peak. Die Fehlerbalken geben eine Abschätzung des Größtfehlers aus der Asymmetrie der $(\bar{n}0)$ und $(n0)$ peaks an. Die durchgezogenen Kurven sind Anpassungen der Modellrechnung mit folgenden Parametern: $\gamma = 0.030$, $\beta = 0.209$ für die $(n0)$ Peaks, $\gamma = 0.047$, $\beta = 0.320$ für die $(\bar{n}0)$ Peaks. Die restlichen Parameter waren $\alpha = 0.5$, $\epsilon = 0.01$ und $\delta = 0.5$ bei allen Beugungsordnungen. Die Werte für β ergeben einen mittleren Mißorientierungswinkel von $\Theta = -0.17^\circ$.

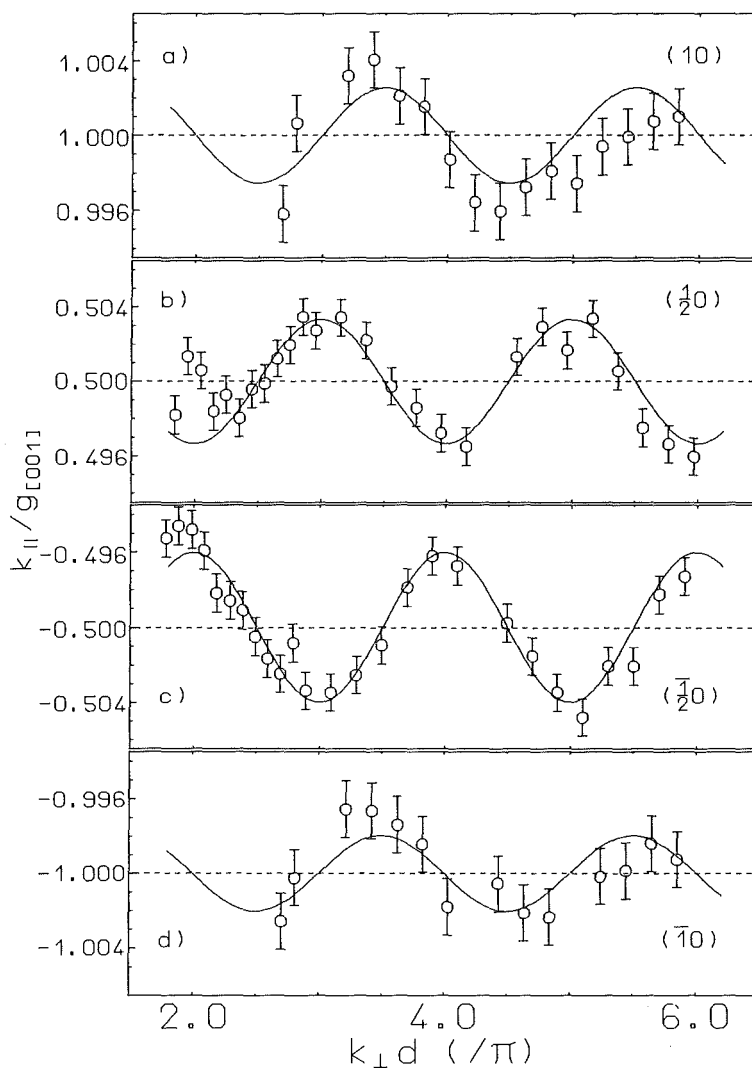


Abb. 5.14: Peakpositionen als Funktion von $k_{\perp} \cdot d$ bei $T=642\text{K}$: a) (10) Peak, b) $(\frac{1}{2}0)$ Peak, c) $(\frac{1}{2}\bar{0})$ Peak und d) $(\bar{1}0)$ Peak. Die Fehlerbalken geben eine Abschätzung des Größtfehlers aus der Asymmetrie der $(\bar{n}0)$ und $(n0)$ peaks an. Die durchgezogenen Kurven sind Anpassungen der Modellrechnung mit folgenden Parametern: $\gamma = 0.041$, $\beta = 0.269$ für die $(n0)$ Peaks, $\gamma = 0.048$, $\beta = 0.302$ für die $(\bar{n}0)$ Peaks. Die restlichen Parameter waren $\alpha = 0.5$, $\epsilon = 0.01$ und $\delta = 0.5$ bei allen Beugungsordnungen. Die Werte für β ergeben einen mittleren Mißorientierungswinkel von $\Theta = -0.19^{\circ}$.

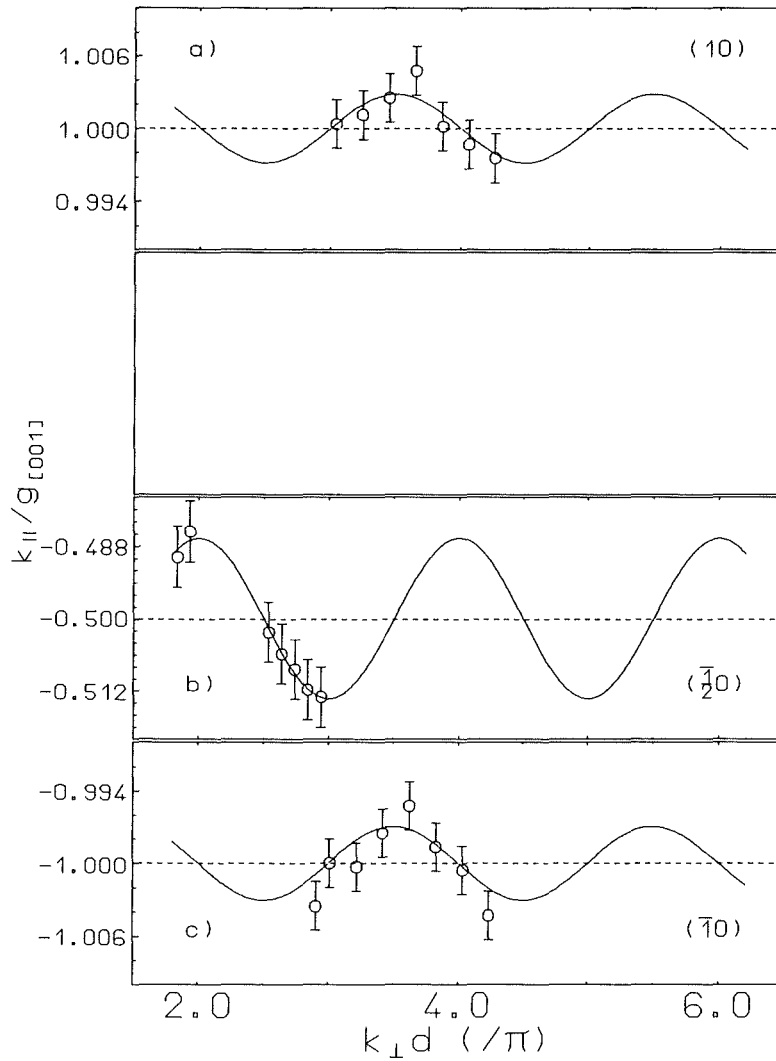


Abb. 5.15: Peakpositionen als Funktion von $k_{\perp} \cdot d$ bei $T=684\text{K}$: a) (10) Peak, b) $(\bar{1}/2 0)$ Peak und c) $(\bar{1}0)$ Peak. Die Fehlerbalken geben eine Abschätzung des Größtfehlers aus der Asymmetrie der $(\bar{n}0)$ und $(n0)$ peaks an. Die durchgezogenen Kurven sind Anpassungen der Modellrechnung mit folgenden Parametern: $\gamma = 0.144$, $\beta = 0.440$, $\alpha = 0.5$, $\epsilon = 0.01$ und $\delta = 0.5$ bei allen Beugungsordnungen. Der Wert für β ergibt einen mittleren Mißorientierungswinkel von $\Theta = -0.17^{\circ}$.

Diese Ergebnisse zeigt deutlich, daß schon bei Raumtemperatur eine endliche Konzentration an Einfachstufen vorhanden ist. Der deutliche Unterschied in den Oszillationsamplituden zwischen ($n0$) und ($\bar{n}0$) Reflexe hat wahrscheinlich seine Ursache in einer Asymmetrie der Abbildungseigenschaften des elektrostatischen Linsensystems.

Aus der Bestimmung der Oszillationsamplitude im Vergleich mit Modellrechnungen nach Gl. (4.12) und (4.21) als Funktion der Temperatur kann die Stufendichte bestimmt werden. Aus der über beide Peaks ($(\frac{\bar{1}}{2}0)$ und $(\frac{1}{2}0)$) gemittelten Stufendichte kann mit Gl. (4.4) die mittlere temperaturabhängige Terrassenbreite bestimmt werden. Die Ergebnisse dieser Analyse werden im Zusammenhang mit der Analyse der Halbwertsbreite des (00) Peaks bei einer anti-phasen Energie im nächsten Kapitel diskutiert (Abb. 5.20).

Mit Elektronenbeugung konnte somit zum ersten Male die Oszillationsamplitude als Funktion der Temperatur bestimmt werden. Bisher existierte nur eine temperaturabhängige Studie der Oszillationsamplitude an der Pt(110)(2x1)-Oberfläche, durchgeführt mit Röntgenbeugung am Synchrotron unter streifendem Einfall, sowie eine SPA-LEED Untersuchung der Oszillationsamplitude an einer Pt(110)(2x1)-Oberfläche bei Raumtemperatur [115], die während der Durchführung dieser Arbeit publiziert wurde.

5.2.4 FWHM-Analyse des (00) Reflexes

Um die Stufenentwicklung an der Au(110)-Oberfläche temperaturabhängig untersuchen zu können, wurde die Halbwertsbreite des (00) Reflexes in [001] sowie in $[1\bar{1}0]$ Richtung bestimmt. Diese Analyse kann, im Gegensatz zur Analyse der halbzahligten Reflexe, über den (2x1)→(1x1) Übergang hinaus durchgeführt werden. In diesem Fall muß bei der Analyse durch Modellrechnungen mit Gl. (4.12) und Gl. (4.21) nur die Änderung der Größe der lateralen Gitterkonstanten um einen Faktor zwei in [001] Richtung berücksichtigt werden (siehe Kapitel 4.2.3).

Wie in Kapitel 4.2.4 gezeigt werden konnte, kann durch eine Analyse der Halbwertsbreite als Funktion des senkrechten Impulsübertrages $k_{\perp} \cdot d$ auf die Stufenhöhenverteilung geschlossen werden. Aus der Amplitude der FWHM-Oszillationen bei einer anti-phasen Bedingung $k_{\perp} \cdot d = (2n + 1)\pi$, mit $n = 1, 2, 3, \dots$ kann außerdem auf die mittlere Stufendichte der ungeradzahligten Stufen geschlossen werden (vergleiche Abb. 4.14 auf Seite 58). Bei der FWHM Analyse konnte bei den in-phasen Energien $E=18.2\text{eV}$, $E=72.8\text{eV}$ und $E=163.8\text{eV}$ eine unterschiedliche Halbwertsbreite des (00) Peaks festgestellt werden. Dies deutet auf eine Energieabhängigkeit der Auflösungsfunktion des SPA-LEED's hin. Aus diesem Grund konnten die Peakprofile nicht mit einer konstanten Auflösungsfunktion entfaltet werden.

Bestimmung der Auflösungsfunktion

Die energieabhängige Auflösungsfunktion des SPA-LEED wurde mit einem multiparameter Fit bestimmt. Hierbei wurde die Annahme gemacht, daß die Auflösung der Elektronenkanone, sowie die Verbreiterung durch die Mosaikbreite in hinreichender Genauigkeit durch eine Gaußverteilung beschrieben werden kann. Die Peakverbreiterung, hervorgerufen durch Stufen, bei außer-phasen Bedingungen sollte sich jedoch in sehr guter Näherung durch Lorentz-Peaks beschreiben lassen. Aus diesem Grund wurde ein Programm entwickelt, das an die gemessenen Profile des (00) Reflexes einen Lorentz-Peak gefaltet mit einem Gauß-Peak anpaßt. Als freie Fitparameter wurden hierbei die Breite, Höhe und Position der Lorentz-Kurve, sowie zusätzlich die Breite des Gauß-Peaks zugelassen. Aus numerischen Gründen mußte bei der Fitprozedur folgendermaßen vorgegangen werden:

Als Startparameter wurden Schätzungen der Halbwertsbreite des gesamten Peaks, der Höhe sowie der Peakposition vorgegeben. Nun wurde versucht an das Profil einen reinen Lorentz-Peak anzufitten. Anschließend wurde, schrittweise in 7 Intervallen, die Halbwertsbreite des Gauß-Peaks erhöht, und einen Lorentz-Peak, gefaltet mit diesem Gauß-Peak angefitet. Zum Schluß wurde nun noch ein reiner Gauß-Peak an die Daten angepaßt. Für jeden Fit wurde ein bestimmter Werte von χ^2 für die Güte des Fits ermittelt. Nach diesen Fits wurde an die χ^2 als Funktion der Gauß-Halbwertsbreite ein Polynom vierten Grades angefitet, um die Gauß-Breite zu finden, für die χ^2 ein Minimum ergibt. Als letzter Schritt wurde nochmals an die Daten ein Lorentz-Peak, gefaltet mit einem Gauß-Peak mit der Halbwertsbreite für minimales χ^2 , angepaßt, um die Güte des Fits zu überprüfen. Dieser Fit wurde für die Daten bei jeder Energie und für alle Temperaturen durchgeführt. So konnte für jede Temperatur eine energieabhängige Auflösungsfunktion ermittelt werden. Da die gefundenen Gauß-Breiten jedoch stark schwankten, wurde vor der Entfaltung an die Gauß-Breiten als Funktion der Elektronenenergie eine glättende Kurve (gebrochen rationaler Spline) angefitet. Ein repräsentatives Ergebnis der Auflösungsfunktion ist in Abbildung 5.16 für eine Temperatur von $T=529\text{K}$ gezeigt. Die durchgezogene Kurve stellt den Spline-Fit dar, der später zur Entfaltung der Halbwertsbreiten für diese Temperatur verwendet wurde.

Eine deutliche Temperaturabhängigkeit der Auflösungsfunktion konnte nicht festgestellt werden. Im wesentlichen hatten die Auflösungsfunktionen bei allen Temperaturen die in Abb. 5.16 gezeigte Form. Lediglich der Wert von $k_{\perp} \cdot d$, bei dem die Auflösung im wesentlichen konstant wird, ändert geringfügig seinen Wert. Eine Ausnahme bildet die Messung bei $T=298\text{K}$. In diesem Fall zeigt die Auflösungsfunktion oberhalb 4.5π einen leichten, fast linearen Anstieg. Da dies die erste Messung darstellte, führe ich diesen Effekt auf eine ungenügende Justierung der Elektronenoptik zurück, die jedoch ab $T=529\text{K}$ korrigiert wurde.

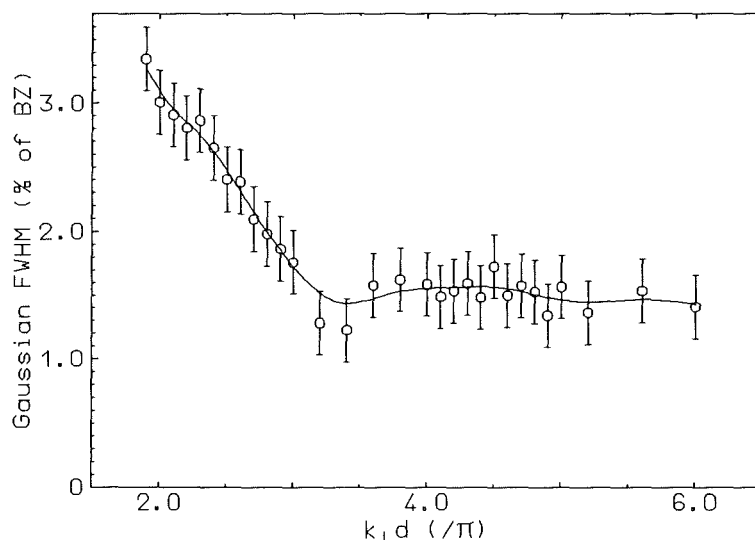


Abb. 5.16: Auflösung (Gauß-Breite) als Funktion des senkrechten Impulsübertrages bei $T=529\text{K}$. Die eingezeichneten Punkte stellen das Ergebnis des Fits dar. Die Fehlerbalken repräsentieren die Schrittweite der Gauß-Peak Halbwertsbreite. Die Kurve stellt einen glättenden Spline-Fit dar, dessen Werte zur Entfaltung benutzt wurden.

Bestimmung der Peak-Halbwertsbreiten durch Entfaltung der Meßdaten

Da die Gaußförmige Auflösung einen Anteil von über 50% zur gesamten gemessenen Peakbreite hatte, mußte die gemessene Halbwertsbreite von der Auflösung entfaltet werden. Da jedoch kein geschlossener Ausdruck für eine analytische Faltung von Lorentz mit Gauß-Peak existiert, mußte eine numerische Analyse der Faltung durchgeführt werden. Hierzu wurde das vorher angesprochene Fit-Programm abgeändert. Es wurde ein Lorentz-Peak mit Gauß-Auflösungen unterschiedlicher Halbwertsbreite gefaltet, so daß sich immer ein Peak der Breite '1' ergab. Dies wurde für 50 verschiedene Gaußbreiten durchgeführt. Anschließend wurde die Breite der Gauß-Kurve über der der Lorentz-Kurve aufgetragen. Es konnte mit ausgezeichneter Genauigkeit eine Wurzelfunktion angefitet werden. Hieraus ließ sich eine empirische Regel zu Entfaltung eines Lorentz gefaltet mit einem Gauß ableiten:

$$l = x - \frac{g^2}{x} \quad (5.14)$$

Hierbei steht x für die Breite des gefalteten Peaks, g für die Breite der Gaußförmigen Auflösung und l für die Breite des Lorentz-Peaks. Diese Regel wurde in der numerischen Analyse mit einem relativen Fehler der Größenordnung 10^{-7} bestätigt (siehe Anhang A.1).

Stufenhöhenanalyse anhand der Halbwertsbreite des (00) Peaks als Funktion von k_{\perp}

Mit der gerade vorgestellten Regel (Gl. (5.14)) wurden nun alle gemessenen Halbwertsbreiten entfaltet, um den Lorentzförmigen Anteil an der Peakbreite als Funktion des

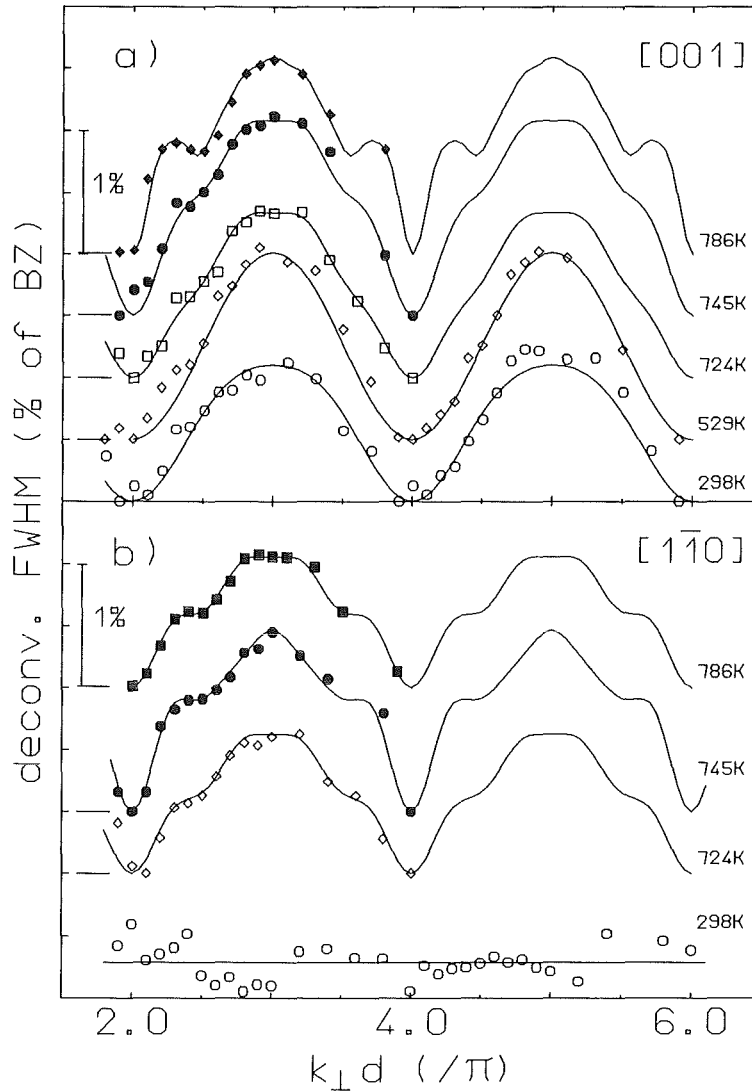


Abb. 5.17: Temperaturabhängige Halbwertsbreiten-Oszillationen des (00) Peaks in [001] a) und $[1\bar{1}0]$ b) Richtung. Zur klareren Darstellung wurden die Oszillationen für verschiedene Temperaturen bezüglich der Abszisse verschoben. Die Nulllinien sind am linken Rand als kurze Striche vermerkt. Die eingezeichneten Kurven stellen Ergebnisse von Modellrechnungen nach der kinematischen Theorie dar (siehe Tabelle 5.1). Die Gerade bei $T=298\text{K}$ für die $[1\bar{1}0]$ Richtung ist ein Fit an die Daten.

senkrechten Impulsübertrages $k_{\perp} \cdot d$ zu bestimmen. Das Ergebnis ist in Abbildung 5.17 für verschiedene Temperaturen in [001] und $[1\bar{1}0]$ Richtung dargestellt. Zur besseren Darstellung wurden nur Daten gezeigt, bei denen eine substantielle Veränderung gegenüber der vorherigen Temperatur auftrat.

Zuerst möchte ich die Ergebnisse für die [001] Richtung diskutieren. Bei Raumtemperatur (298K) und für $T=529\text{K}$ sind Oszillationen zu sehen, wie sie für Einfachstufen erwartet werden (vergleiche Abb. 4.11a)). Für Temperaturen bis $T=704\text{K}$ ist keine Veränderung zu erkennen. Ab $T=724\text{K}$ ändert sich die Form der Oszillation jedoch deutlich. Es werden 'Eindellungen' und eine Abflachung des Maximums sichtbar. Dies kann durch eine ausführliche Analyse, im Vergleich mit Modellrechnungen nach der

kinematischen Theorie, über das Auftreten von Mehrfachstufen erklärt werden.

Für die $[1\bar{1}0]$ Richtung ergibt sich bei Temperaturen unterhalb 724K ein anderes Bild. Für Temperaturen von 298K bis 684K kann keine signifikante Oszillation der Halbwertsbreiten festgestellt werden. Für $T=298\text{K}$ ist im Schaubild ein Geradenfit eingezeichnet, der die statistische Natur der Schwankungen verdeutlichen soll. Die relativ großen Schwankungen der entfalteten Halbwertsbreiten kann auf die Entfaltungsprozedur zurückgeführt werden. In diesem Fall werden die gemessenen Peaks fast ausschließlich durch ein Gaußprofil mit einem kleinen Lorentz-Anteil beschrieben. Die Analyse der χ^2 als Funktion der Gauß-Breite liefert kein eindeutiges Minimum (siehe oben). Deshalb wurde hier der diskrete Wert der Gauß-Breite genommen, der ein minimales χ^2 lieferte. Die Schwankungen stellen in diesem Fall die Schrittweite der Gauß-Breite in der Fitprozedur dar. Erst bei einer Temperatur von $T=704\text{K}$ konnte ein Anzeichen für eine schwache Oszillation gefunden werden.

Im Hochtemperaturbereich in der $[1\bar{1}0]$ Richtung ist eine drastische Änderung der Oszillationen sichtbar. Deutlich ist die Ähnlichkeit zur $[001]$ Richtung erkennbar. Auch hier kann die Form der Oszillationen, im Vergleich mit Modellrechnungen, Mehrfachstufen zugeordnet werden.

Im Vergleich mit den ermittelten Oszillationen der Halbwertsbreite des (00) Reflexes wurden Modellrechnungen durchgeführt, um eine quantitative Aussage über die Stufendichte und Stufenhöhenverteilungen machen zu können. Hierbei wurde in allen Fällen eine geometrische Terrassenbreitenverteilung (Gl. (4.2)) angenommen. Für Temperaturen, bei denen fast ausschließlich Einfachstufen erkennbar sind, wurde aus der Oszillationsamplitude mit Abb. 4.14 eine Abschätzung von γ durchgeführt. Anschließend wurden für mehrere Werte von γ Oszillationen berechnet und über einen χ^2 -Test mit den experimentellen Ergebnissen verglichen. Die eingezeichneten Kurven stellen die besten Fits dar. Bei Auftreten von Mehrfachstufen wurde etwas anders vorgegangen. Wie mit Abb. 4.12 leicht einzusehen ist, lassen sich die Halbwertsbreiten-Oszillationen bei Mehrfachstufen als Superposition von Oszillationen mit unterschiedlichen Stufenhöhen darstellen. Die Oszillation hervorgerufen von Einfachstufen läßt sich, in sehr guter Näherung, als (\sin^2) beschreiben. Dies legt eine Analyse über eine Fourier-Zerlegung nahe (siehe Anhang A.2). Aus einer solchen Fourier-Analyse wurden erste Schätzwerte für eine Stufenhöhenverteilung bestimmt. Anschließend wurden über mehrere Modellrechnungen mit χ^2 -Test ein bester Fit an die Daten bestimmt. Die Ergebnisse der Modellrechnungen mit bestem χ^2 sind für alle Temperaturen in Tabelle 5.1 dargestellt.

Aus der Tabelle ist ersichtlich, daß in $[001]$ Richtung bei $T=298\text{K}$ ein geringer Anteil an Zweifachstufen vorhanden ist, der jedoch für höhere Temperaturen unterhalb die Nachweisgrenze fällt. Dies kann dadurch erklärt werden, daß die Probe nach dem letzten Sputtern nicht lang genug getempert wurde. Wie schon beschrieben, wurde die Probe nach dem Sputtern ca. 24h getempert um sie dann auf 298K abzukühlen. Nach der Messung bei 298K wurde der Kristall für die nächste Messung auf 529K geheizt und dort ca. 48h belassen. Aus diesem Grund wird angenommen, daß wesentlich längeres Tempern als 48h bei 529K notwendig ist, um Zweifachstufen auszuheilen. Des weiteren

T (K)	γ	$h = 1$	$h = 2$	$h = 3$	$h = 4$	$h = 5$	$\langle H \rangle$
[001] Richtung							
298	0.039	90%	10%	—	—	—	1.1
529	0.047	100%	—	—	—	—	1.0
580	0.047	100%	—	—	—	—	1.0
642	0.050	100%	—	—	—	—	1.0
663	0.064	100%	—	—	—	—	1.0
684	0.040	100%	—	—	—	—	1.0
704	0.014	100%	—	—	—	—	1.0
725	0.024	83%	7%	4%	6%	—	1.3
745	0.031	70%	13%	9%	8%	—	1.6
786	0.031	58%	—	15%	18%	9%	2.2
[1 $\bar{1}$ 0] Richtung							
298	<0.004	—	—	—	—	—	—
⋮	⋮	⋮	⋮	⋮	⋮	⋮	⋮
684	<0.005	—	—	—	—	—	—
704	0.008	100%	—	—	—	—	1.0
725	0.021	72%	6%	11%	11%	—	1.6
745	0.028	57%	10%	20%	9%	4%	1.9
786	0.020	68%	7%	13%	12%	—	1.7

Tabelle 5.1: Stufenhöhenverteilungen für unterschiedliche Temperaturen in [001] und [1 $\bar{1}$ 0] Richtung aus Ergebnissen von angepaßten Modellrechnungen. Die horizontale Linie zwischen 684K und 704K deutet das vollständige Verschwinden der (2x1) Überstruktur an. Die Spalten mit $h = 1, \dots$ geben den Anteil der jeweiligen Stufenhöhe an. Die Spalte mit $\langle H \rangle$ ist die nach Gl. (4.4) berechnete mittlere Stufenhöhe. Die restlichen Parameter für alle Berechnungen waren $\alpha = 0.5$, $\epsilon = 0.01$, $\delta = 0.5$ und ein Mißorientierungswinkel von $\Theta = -0.17^\circ$. Die Werte für γ bei $T < 704\text{K}$ in [1 $\bar{1}$ 0] Richtung stellen abgeschätzte obere Grenzen dar. Sie wurden aus dem 'Rauschen' der Halbwertsbreiten ermittelt und können als Größtfehler für die übrigen Werte von γ genommen werden.

ist für die [001] Richtung bis 663K ein ansteigen der Dichte von Einfachstufen sichtbar. Das Ansteigen ist mit der *Dekonstruktion* gekoppelt. Diese thermisch aktivierte Stufenbildung findet jedoch mit einer starken Anisotropie bezüglich der Kristallorientierung statt, da in [1 $\bar{1}$ 0] Richtung keinerlei Stufenbildung in diesem Temperaturbereich sichtbar ist. Oberhalb der *Dekonstruktion* ist eine Verringerung der Stufendichte sichtbar, mit einem Minimum bei $T=704\text{K}$. Für Temperaturen größer als 704K steigt die Stufendichte wieder an. Im Unterschied zum *Dekonstruktionsübergang* ist die Stufenbildung ab dieser Temperatur jedoch für beide Kristallrichtungen zu beobachten. Zusätzlich zur Erhöhung der Stufendichte wird die Bildung von Mehrfachstufen festgestellt, was einer Erhöhung der mittleren Stufenhöhe $\langle H \rangle$ gleichkommt. Aus diesem Sachverhalt läßt sich folgern, daß für Temperaturen $T > 704\text{K}$ ein *Rougheningübergang* stattfindet.

Das gerade beschriebene Temperaturverhalten spiegelt sich auch in der Halbwertsbreite des (00) Reflexes bei $k_{\perp} \cdot d = 3\pi$ wieder. Dies ist in Abbildung 5.18b dargestellt. Zusätzlich wurde noch die Halbwertsbreite des (10) Peaks bei der außer-phasen Bedin-

gung von $k_{\perp} \cdot d = 3.94\pi^1$ eingetragen. Dabei ist ein identisches Verhalten im Vergleich zum (00) Peak erkennbar. In Abb. 5.18c ist die Halbwertsbreite des (00) Peaks in $[1\bar{1}0]$ Richtung aufgetragen. Wie in Kapitel 4.2.4 durch Abb. 4.14 verdeutlicht wurde, kann aus der Halbwertsbreite bei einer außer-phasen Bedingung, zumindest annähernd auf die Stufendichte geschlossen werden. Mit den Ergebnissen aus dem Anstieg der Stufendichte und dem Auftreten von Mehrfachstufen wird eine Abschätzung für die *Roughening*-Temperatur von

$$T_R = 700K \pm 10K$$

gegeben.

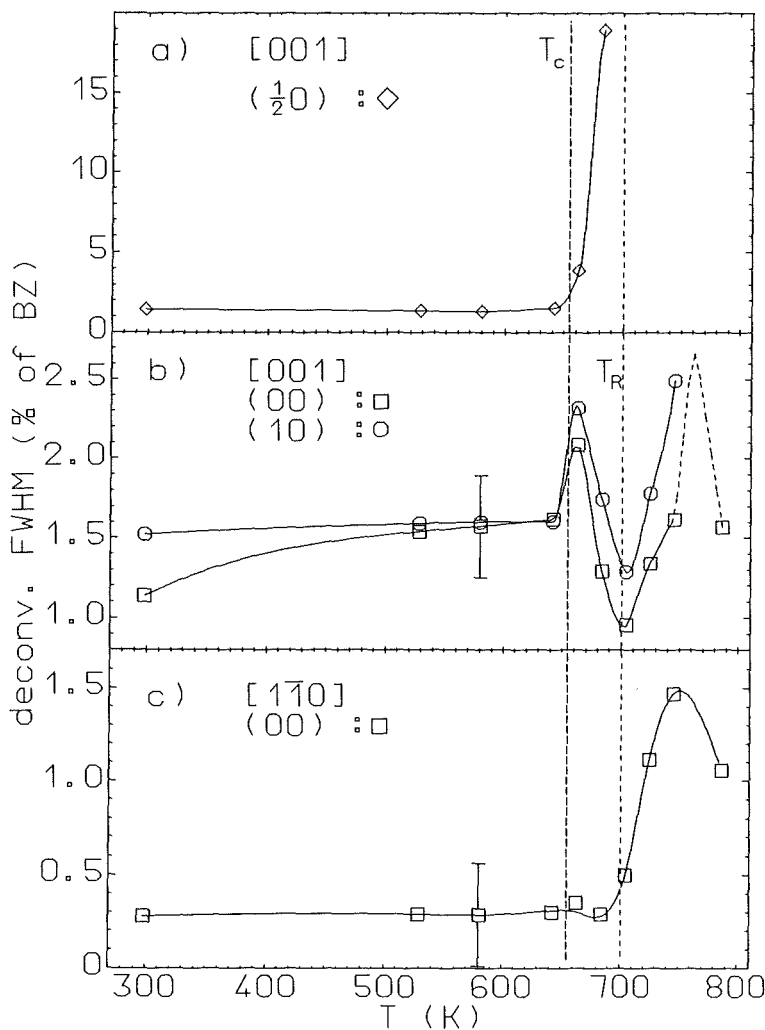


Abb. 5.18: Entfaltete Halbwertsbreite des (00) Peaks in [001] (b) und $[1\bar{1}0]$ (c) Richtungs, sowie des $(\frac{1}{2}0)$ Peaks (a) als Funktion der Temperatur. Zusätzlich wurde in b) noch die Halbwertsbreite des (10) Peaks (o) bei einer außer-phasen Bedingung eingetragen. Die eingezeichneten Kurven sind Spline Fits an die Daten zur Führung des Auges. Die gestrichelten Linien deuten die *Dekonstruktions*-Temperatur T_c sowie die *Roughening*-Temperatur T_R an. Die gestrichelte Kurve für den (00) Peak in [001] Richtung zwischen 745K und 786K deutet den Verlauf der Halbwertsbreite an, wie sie in LEED-Experimenten beobachtet wurde (siehe Abb. 5.9).

¹Für den (10) Peak ist zu beachten, daß $k_{\perp} \cdot d = 4\pi$ eine anti-phasen Bedingung ist.

Zusätzlich zur Halbwertsbreite des (00) Peaks wurde in Abb. 5.18a noch die entfaltete Halbwertsbreite des ($\frac{1}{2}$ 0) Reflexes aufgetragen. Anhand dieser Daten konnte aus der Verbreiterung des ($\frac{1}{2}$ 0) Reflexes die Übergangstemperatur T_c der (1x1)→(2x1) *Dekonstruktion* abgeschätzt werden. Da oberhalb T_c jedoch nur zwei Meßwerte vorhanden waren, konnte nur eine Abschätzung (vergl. Gl. (3.11)) von T_c durchgeführt werden. Aus einem 'Fit' an die Daten wurde eine *Dekonstruktions-Temperatur* von

$$T_c = 654K \pm 10K$$

bestimmt. Der kritische Exponent ν für die Temperaturabhängigkeit der Reflexbreite (Gl. (3.11)) ergab einen Wert von $\nu \approx 1$. Dieser Wert steht in guter Übereinstimmung mit dem theoretischen Wert des 2D-Ising Modells (siehe Tab. 3.1) und mit bisherigen experimentellen Werten [49, 110, 116]. Dieser Analyse sollte jedoch, in Anbetracht der 'kleinen' Datenmenge, keine zu große Bedeutung beigemessen werden. Der einzige Grund für diese Analyse war, die *Dekonstruktions-Temperatur* T_c abzuschätzen. Im Vergleich mit den Werten der LEED-Experimente, ist dieser Wert ca. 5% kleiner, liegt jedoch in der selben Größenordnung eines He-Beugungs-Experimentes von Sprösser *et al.* [118].

Bei den in dieser Arbeit gemessenen Peakprofile des (00) Reflexes konnte keine Änderung der Peakform, wie sie für einen Kosterlitz-Thouless-*Rougheningübergang* erwartet wird, gefunden werden (vergl. Kap. 3.3.2, Gl. (3.25)). In Abbildung 5.19 sind für drei verschiedene Temperaturen die Beugungsprofile des (00) Peaks in [001] und [$1\bar{1}0$] Richtung gezeigt. Die durchgezogenen Kurven stellen berechnete Peaks mit den in Tabelle 5.1 präsentierten Parametern dar, gefaltet mit der entsprechenden Auflösung. Die Profile wurden bei einer Energie von $E=41\text{eV}$ ($k_{\perp} \cdot d = 3\pi$) aufgenommen. Den berechneten Peaks wurde noch nach der Faltung ein aus den Meßdaten ermittelter linearer Untergrund hinzuaddiert. In allen Fällen (für $T < T_R$ und $T > T_R$) läßt sich die Peakform in guter Näherung durch eine Lorentz-Form beschreiben, während eine Anpassung durch eine Exponentialfunktion (Gl. (3.25)) gefaltet mit der Gaußförmigen Auflösung schlechtere Ergebnisse lieferte.

Diese Diskrepanz kann auf zwei unterschiedliche Arten erklärt werden:

1. Der hier festgestellte *Rougheningübergang* kann nicht im Rahmen eines Kosterlitz-Thouless-Überganges (KT-Übergang) beschrieben werden. In einem Artikel von van Beijeren und Nolden [64] wird diskutiert, daß eine Anwesenheit von Verunreinigung auf der Oberfläche den *Rougheningübergang* beeinflussen könnte, so daß dieser nicht mehr im Rahmen einer KT-Theorie beschrieben werden kann.
2. Die exponentielle Peakform gefaltet mit einer Gaußförmigen Auflösung ergibt eine Kummer-Funktion [104]. Ist die Breite der Auflösung wesentlich größer als die Breite des exponentiellen Peaks, so kann die Kummer-Funktion fast nicht mehr von einer Lorentz-Kurve gefaltet mit einer Gauß-Kurve unterschieden werden. Da die hier festgestellte mittlere Stufenhöhe relativ gering ist, wird erwartet, daß die Breite des exponentiellen Peaks gering ist und daher nicht mehr von einer Lorentzfunktion unterscheidbar ist.

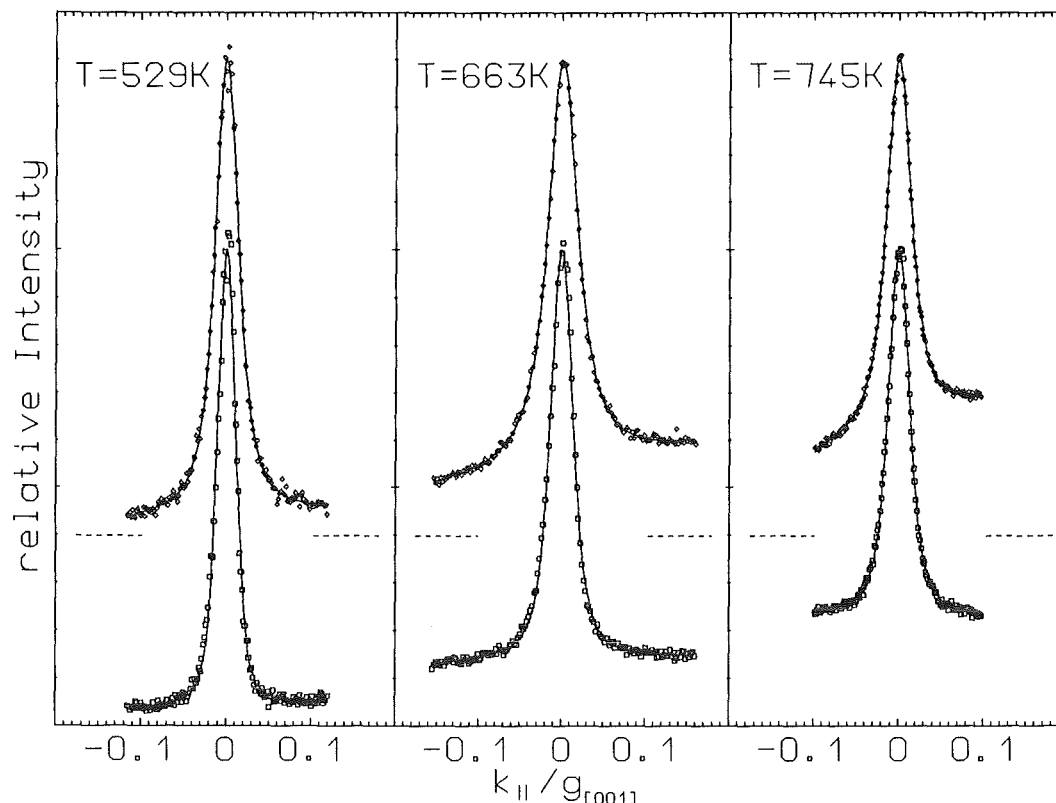


Abb. 5.19: Peakprofile des (00) Reflexes bei drei Temperaturen in [001] (oben) und $[1\bar{1}0]$ (unten) Richtung. Die Profile für die [001] Richtung wurden zur besseren Darstellung nach oben geschoben. Die Nulllinien sind als gestichelte Linien angedeutet. Alle Peaks wurden auf eine einheitliche Höhe normiert. Die eingezeichneten Kurven sind nach Gl. (4.12) und Gl. (4.21) mit den entsprechenden Parametern aus Tabelle 5.1 berechnete Peaks. Diese wurden noch mit der entsprechenden Auflösungsfunktion gefaltet. Nach der Faltung wurde ein, aus den Daten ermittelter linearer Untergrund hinzuaddiert.

In diesem Fall wird die zweite Möglichkeit als wahrscheinlich angesehen, da innerhalb der Nachweisgrenze von AES, auch nach längeren Experimenten mit einer Dauer von mehr als einer Woche bei Temperaturen oberhalb T_R keine Verunreinigungen festgestellt werden konnten. Trotzdem kann nicht endgültig ausgeschlossen werden, daß kleinste Spuren von Verunreinigungen den *Rougheningübergang* beeinflussen. Dies wurde in einer theoretischen Arbeit von Huse *et al.* [50] untersucht. Dieser Sachverhalt könnte durch Experimente mit einer Nachweismöglichkeit von Verunreinigungen im ppm-Bereich geklärt werden.

Mittlere Terrassenbreite

Aus den Werten der Stufendichte γ (siehe Tab. 5.1) kann mit Gl. (4.4) die mittlere Terrassenbreite $\langle W \rangle a$ in [001] und $[1\bar{1}0]$ Richtung als Funktion der Temperatur bestimmt werden. Zusätzlich kann durch Vergleich von Modellrechnungen und Positionszitterungen der halbzahligen Reflexe (Kap. 5.2.3) die mittlere Terrassenbreite in [001] Richtung ermittelt werden. Die so durch verschiedene Methoden berechneten mittleren

Terrassenbreiten in $[001]$ Richtung können verglichen werden und sollten Werte gleicher Größenordnung liefern. Das Ergebnis ist in Abbildung 5.20 dargestellt. Zusätzlich wurde noch die über beide halbzahlige Reflexe gemittelte Oszillationsamplitude der Reflexpositionen angegeben (Abb. 5.20a)). Deutlich spiegelt sich die Rauigkeit an der Oberfläche in der Terrassenbreite wieder, die oben anhand der Halbwertsbreite des (00) Reflex diskutiert wurde. Während unterhalb T_c die Terrassenbreite leicht abnimmt, ist um T_c eine stärkere Abnahme sichtbar. Im Bereich zwischen T_c und T_R ist eine starke Vergrößerung der Terrassenbreite in $[001]$ Richtung sichtbar. Oberhalb T_R wird das für einen *Roughening* erwartete Abnehmen der mittleren Terrassenbreite deutlich. Parallel zur $[001]$ Richtung ist auch in $[1\bar{1}0]$ Richtung eine Verringerung der Terrassenbreite erkennbar. Es sei aber angemerkt, daß die ermittelte mittlere Terrassenbreite für Temperaturen oberhalb T_R einen erstaunlich großen Wert annimmt. Dies kann nicht dadurch erklärt werden, daß eine andere, als die geometrische Verteilungsfunktion, für die Terrassenbreite angenommen wird. Es wird angenommen, daß parallel zur spontanen Erzeugung von Stufen oberhalb T_R eine erhöhte laterale Diffusion an der Oberfläche der Stufenbildung entgegen wirkt und die Oberfläche schließlich wieder flacher wird.

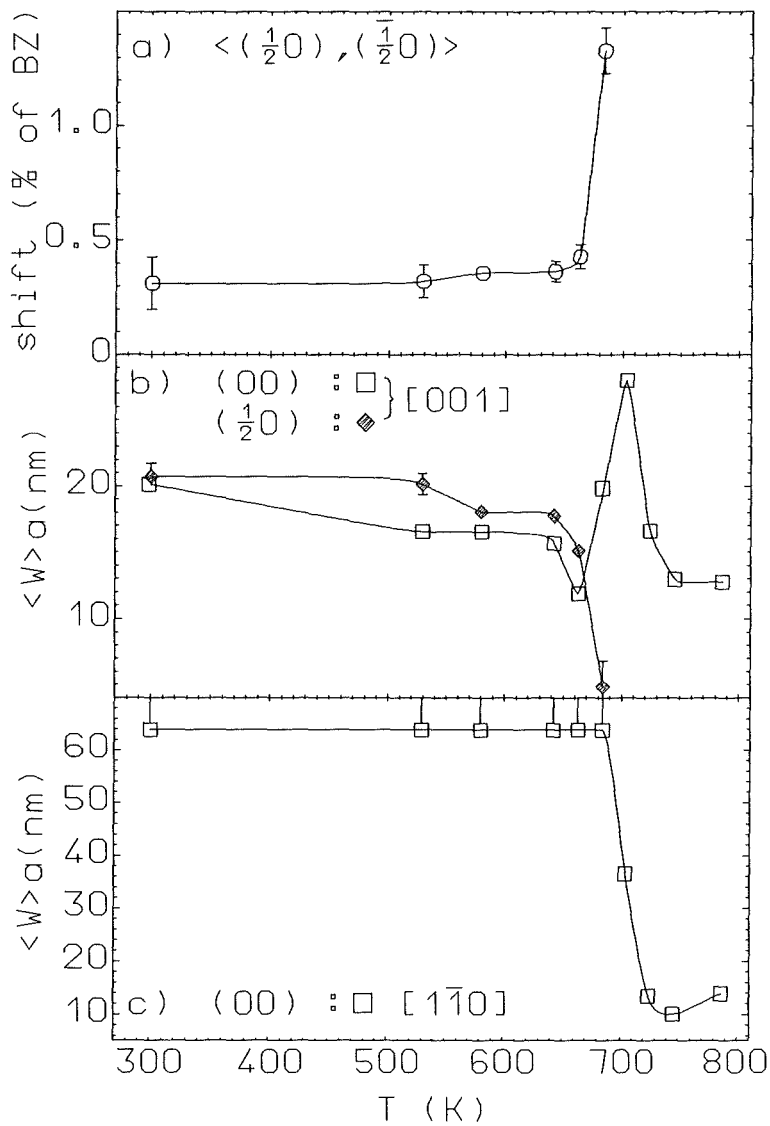


Abb. 5.20: Mittlere Terrassenbreite aus der Peakshift (b) und FWHM des (00) Reflexes (b und c) als Funktion der Temperatur. Die mittl. Terrassenbreite in $[1\bar{1}0]$ Richtung unterhalb 704K stellt eine untere Grenze dar, begrenzt durch die Auflösung des SPA-LEED's. Dies wird durch die horizontalen Striche oberhalb der Datenpunkte angedeutet. Zusätzlich ist in a) noch die für $(\frac{1}{2}0)$ und $(\frac{1}{2}0)$ Reflexe gemittelte Peakshift eingezeichnet. Alle sonstigen Kurven sind Spline Fits zur Führung des Auges.

5.2.5 Einfluß der apparativen Auflösung auf die Bestimmung der *Dekonstruktions-Temperatur*

Im Vergleich der *Dekonstruktions-Temperatur* T_c , bestimmt durch LEED-Ergebnisse und SPA-LEED, ist ein deutlicher Unterschied von $\Delta T \approx 30\text{K} - 50\text{K}$ sichtbar. Bei einem Beugungsexperiment mit He-Strahlen zur Bestimmung des *Rougheningüberganges* [118] wurde für T_c ein ähnlicher Wert gefunden, wie in dem hier vorgestellten SPA-LEED Experiment abgeschätzt. In einem Experiment mit Synchrotron-Strahlung [110] wurde ein noch höherer Wert für T_c ermittelt. Ich möchte versuchen diese Diskrepanz durch ein Plausibilitätsargument zu erklären.

Die erwähnten Methoden besitzen alle unterschiedliche Transferbreiten: LEED die geringste (75\AA), He-Beugung (ca. 1000\AA) und SPA-LEED (ca. 1500\AA) in der gleichen Größenordnung und Synchrotron-Strahlung die größte Transferbreite (ca. 66000\AA !). Für die verschiedenen Werte für T_c lassen sich nun zwei unterschiedliche Ursachen verantwortlich machen, die im wesentlichen entgegengesetzte Auswirkungen haben: 1. die apparative Auflösung und 2. die mittlere Größe der Domänen (Terrassenbreite).

Beim *Dekonstruktionsübergang* werden sich schon weit unterhalb T_c durch Fluktuationen ungeordnete Bereiche mit lokaler (1x1) Struktur bilden. Bei der Bestimmung der Übergangstemperatur durch Beugungsexperimente wird die diffuse Streuung an diesen Fluktuationen und das Verschwinden der langreichweitigen Ordnung der (2x1) *Dekonstruktion* ausgenutzt. Das letztere Verhalten macht sich in einer Verringerung der Intensität der halbzahligen Reflexe bemerkbar. Besitzt nun, in der Nähe des Überganges, die mittlere Größe dieser ungeordneten Bereiche die Größenordnung der Transferbreite, so können diese durch das Beugungsexperiment aufgelöst werden. Methoden mit kleinerer Transferbreite werden die beginnende Umordnung also bei höheren Temperaturen sehen, als Methoden mit größerer Transferbreite. Aus diesem Grund ist es verständlich, daß der durch LEED bestimmte Wert für T_c größer ist, als der durch SPA-LEED oder He-Beugung ermittelte. Dadurch können die Unterschiede zwischen LEED und SPA-LEED, bzw. He-Beugung erklärt werden. Wie verhält es sich jedoch im Falle des Synchrotron-Experimentes? Hier war die Auflösung nochmals größer im Vergleich zu SPA-LEED, die Übergangstemperatur jedoch auch größer und nicht kleiner, wie nach der gerade durchgeführten Argumentation erwartet. In diesem Falle wird erwartet, daß der Einfluß der Domänengröße den Auflösungseffekt überdeckt. Wie aus theoretischen Betrachtungen erwartet wird [57], sollte ein Phasenübergang 2.Ordnung in einem kleineren System bei niederen Temperaturen stattfinden, als in einem größeren (*finite size scaling*). Da angenommen wird, daß die Domänengröße der Kristalle dieser und der Arbeit von Sprösser *et al.* mit He-Beugung [122], wie auch die Auflösung, die gleiche Größenordnung hatten, wird eine ähnliche Übergangstemperatur erwartet. Für das Synchrotron Experiment wurde jedoch eine wesentlich größere Domänengröße von ca. 550\AA bei Raumtemperatur berichtet [110]. Diesem Umstand wird zugeschrieben, daß im Synchrotron Experiment eine ca. 80K höhere Übergangstemperatur bestimmt wurde, verglichen mit diesem und dem He-Beugungsexperiment.

Beim Vergleich aller bisher veröffentlichten Experimente ist jedoch noch erwähnenswert, daß der Unterschied zwischen T_c und T_R in allen Fällen dieselbe Größenordnung, nämlich $T_R - T_c \approx 50\text{--}60\text{K}$, zeigt. Dieser Unterschied scheint deshalb, unabhängig von apparativer Auflösung und *finite size* Effekt, universell zu sein. In einer Arbeit von Jug *et al.* [95] wurde aus Modellrechnungen mit einem anisotropen SOS-Modell ein Phasendiagramm der Au(110)-Oberflächenstruktur, als Funktion eines Anisotropieparameters κ gegeben. Dazu folgende Vorstellung: Während die absoluten Werte der Übergangstemperaturen vom absoluten Wert der Wechselwirkungs-Konstanten J im SOS-Modell abhängt (eventuell beeinflußt durch Verunreinigungen und/oder Domänengröße), wird die Anisotropie κ zwischen NN- und NNN-Wechselwirkung hiervon nur unwesentlich beeinflußt. Dies wäre eine plausible Erklärung für die Übereinstimmung der Temperaturdifferenzen, während die absoluten Werte einen Unterschied zeigen.

5.3 Diskussion der Ergebnisse

5.3.1 Modell für die Temperaturabhängigkeit der Oberflächenstruktur

Im folgenden will ich ein einfaches Modell vorstellen, mit dem die vorgestellten experimentellen Ergebnisse qualitativ beschrieben werden können. In diesem Modell werden fünf Temperaturbereiche definiert, in denen die Au(110)-Oberfläche fünf verschiedene strukturelle Zustände einnimmt:

1. Die rekonstruierte Tieftemperatur-Phase ($T \ll T_c$).
2. Die gemischte $(2 \times 1) \leftrightarrow (1 \times 1)$ Phase (Bereich der *Dekonstruktion*).
3. Die 'glatte' (1×1) Phase oberhalb T_c ($T_c < T < T_R$).
4. Die rauhe Phase oberhalb T_R ($T_R < T < T^*$, *Roughening*).
5. Die glatte, lateral ungeordnete Phase ($T > T^*$, *Premelting*).

1. Die rekonstruierte Tieftemperatur-Phase ($T \ll T_c$)

Im Bereich zwischen Raumtemperatur und dem *Dekonstruktionsübergang* konnte in [001] Richtung keine vollständig flache Oberfläche gefunden werden. Es ergab sich eine mittlere Breite der Terrassen von $\approx 200\text{\AA}$. In [110] Richtung konnten, begrenzt durch die Auflösung, keine Stufen mit einer Terrassenbreite von kleiner 640\AA gefunden werden. Anhand der Zweifachstufen bei Raumtemperatur, die auf ungenügendes Tempern bei 529K zurückgeführt werden, wird geschlossen, daß die Au(110)-Oberfläche länger als 72h

bei $T=529\text{K}$ getempert werden muß, um Zweifachstufen in $[001]$ Richtung zu entfernen. Dieses Ergebnis gibt Anlaß zu der Annahme, daß die $\text{Au}(110)$ -Oberfläche schon bei Raumtemperatur in der von den Nijs [94], allerdings nur für unrekonstruierte $\text{fcc}(110)$ -Oberflächen, vorgeschlagenen *Preroughening*-Phase mit Einfachstufen in $[001]$ Richtung vorliegt. In einer theoretischen Arbeit von Roelofs *et al.* [93] wurde die rekonstruierte $\text{Au}(110)(2\times 1)$ -Oberfläche mit einer erweiterten Embedded-Atom-Methode untersucht. Durch Berechnung der Wechselwirkungsenergien zwischen den einzelnen Oberflächentomen, bis zur vierten Nachbar-Wechselwirkung, wurde mit energetischen Argumenten diskutiert, daß die Bildung von Stufen in $[001]$ Richtung wesentlich wahrscheinlicher ist, als in $[1\bar{1}0]$ Richtung und gegenüber der Bildung von *Ising-Defekten* nicht wie in [77] gefolgert unterdrückt ist. Die Anregungsenergien von Stufen und *Ising-Defekten* liegen nur ca. 2meV auseinander. Roelofs *et al.* folgern, daß Stufen an der Oberfläche gleichermaßen wichtig sind für die Bildung einer geordneten (2×1) Struktur, wie auch für den Mechanismus des *Dekonstruktionsüberganges* (vergl. auch Punkt 3 der folgenden Diskussion). Es wird vorhergesagt, daß es mit keiner experimentellen Technik möglich sein wird, eine stufenfreie $\text{Au}(110)(2\times 1)$ -Oberfläche zu erzeugen.

2. Die gemischte $(2\times 1)\leftrightarrow(1\times 1)$ Phase (Bereich der *Dekonstruktion*).

Wie im vorherigen Kapitel angedeutet, wurde die *Dekonstruktions*-Temperatur $T_c = 654\text{K} \pm 10\text{K}$ aus der Verbreiterung der halbzahligen Reflexe abgeschätzt (siehe Abb. 5.18). Im Bereich zwischen $T_c - 10\text{K}$ und $T_c + 10\text{K}$ ist eine deutliche Erhöhung der Dichte von Einfachstufen erkennbar. Dieser Effekt wird unabhängig voneinander durch die Analyse der Halbwertsbreite des (00) Peaks und der Untersuchung der Amplitude der Positionssoszillation der halbzahligen Reflexe reproduziert (vergl. Abb. 5.20b)). Im Gegensatz hierzu kann in $[1\bar{1}0]$ Richtung keine Erhöhung der Stufendichte festgestellt werden. Dieser Befund liefert die Annahme, daß die Bildung von Einfachstufen eng mit dem *Dekonstruktionsübergang* verknüpft ist.

Wird die mittlere Terrassenbreite – abgeleitet aus der Positionssoszillation, verglichen mit der Terrassenbreite – berechnet aus der Halbwertsbreite des (00) Peaks, so ergibt sich bei der Temperatur von 684K eine deutliche Diskrepanz. Während die Positionssoszillation eine Terrassenbreite von ca. 50Å liefert, ergibt die Analyse der Halbwertsbreite eine Terrassenbreite von ca. 200Å . Um diesen großen Unterschied zu erklären, möchte ich ein einfaches Modell vorstellen:

Bei einem Phasenübergang 2.Ordnung liegen exakt bei T_c beide Phasen gleichberechtigt vor. Oberhalb T_c existiert jedoch immer noch ein kleinerer Teil von (2×1) geordneten Bereichen. An der Halbwertsbreite des (00) Peaks kann jedoch an einer außer-phasen Bedingung nicht zwischen (1×1) und (2×1) Bereichen unterschieden werden. Es werden nun zwei (2×1) Bereiche mit Breiten W_1 und W_2 betrachtet, die durch eine (1×1) Region mit größerer räumlicher Ausdehnung D voneinander getrennt sind. Befinden sich die beiden (2×1) Bereiche nun auf unterschiedlichen Höhenniveaus, mit einem Höhenunterschied d einer Einfachstufe, so wird durch die beiden (2×1) Bereiche eine

große Amplitude der Positionszosillation hervorgerufen, falls beide (2×1) Bereiche noch innerhalb der apparativen Auflösung liegen. Dieser Sachverhalt ist in Abbildung 5.21a beispielhaft dargestellt. Da die halbzahligen Reflexe nur von Bereichen mit geordneter (2×1) Struktur erzeugt werden, 'sehen' diese eine Terrassenbreite von $(W_1 + W_2)/2$. Der (00) Reflex jedoch spiegelt die 'wahre' Terrassenbreite von $(W_1 + D + W_2)/2$ wieder. Falls nun $D \gg W_1 + W_2$ ist, so ist die Terrassenbreite, die sich in der Halbwertsbreite des (00) Reflex widerspiegelt, größer als die, die durch die Positionszosillation der halbzahligen Reflexe repräsentiert wird. Durch den (00) Reflex wird somit eine glattere Oberfläche 'gesehen' als durch die halbzahligen Reflexe.

Es soll noch erwähnt werden, daß für die Berechnung der mittleren Terrassenbreite aus der Halbwertsbreite des (00) Reflexes eine Oberfläche mit ausschließlicher (2×1) Struktur angenommen wurde. Dies ist jedoch, wie gerade diskutiert, nicht korrekt. Wird im Vergleich mit Modellrechnungen jedoch eine (1×1) Struktur angenommen, führt dies nur zu einer Änderung der Stufendichte γ um einen Faktor zwei. Dies wird durch eine Änderung der Gitterkonstante a um einen Faktor einhalb kompensiert. Für kleines γ wird die resultierende mittlere Terrassenbreite in diesem Fall nahezu unverändert gegenüber einem Modell für eine (2×1) Struktur sein (vergl. Gl. (4.4)).

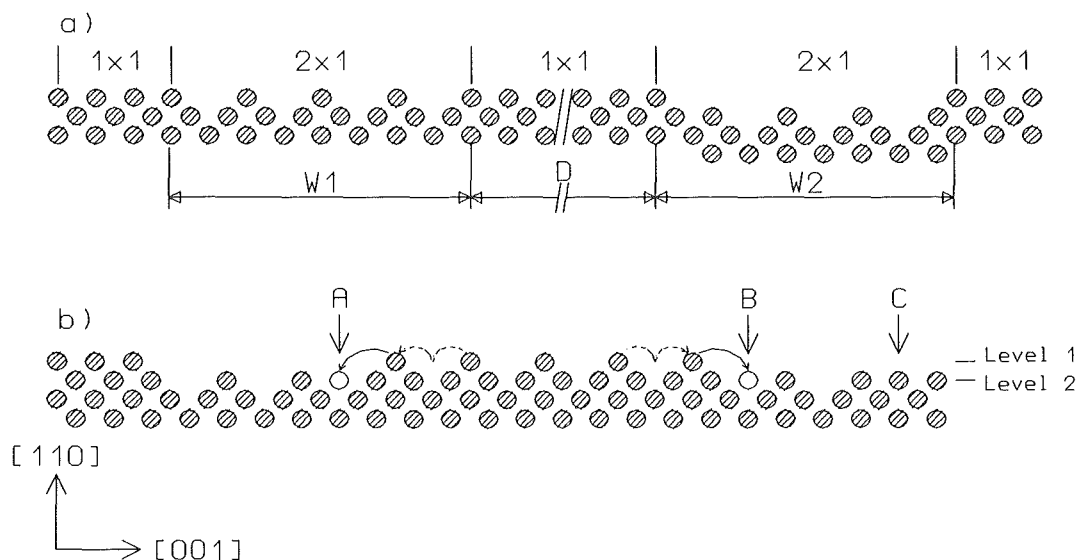


Abb. 5.21: Schematisches Modell einer Au(110)-Oberfläche bei $T_c < T \ll T_R$. a) gemischte Phase mit Stufen, b) gestufte Oberfläche mit (2×1) und (1×1) Bereichen, die den Glättungsmechanismus oberhalb T_c illustrieren soll (siehe Diskussion im Text).

3. Die 'glatte' (1x1) Phase oberhalb T_c ($T_c < T < T_R$).

Bei einer Temperatur von 704K wird die *Dekonstruktion* abgeschlossen sein, d.h. es werden keine geordneten (2x1) Bereich mehr vorhanden sein. Bei dieser Temperatur sind auf der Oberfläche in [001] Richtung jedoch weniger Stufen vorhanden, als bei Raumtemperatur (vergl. Abb. 5.18 und Abb. 5.20). Eine mögliche Ursache für diese Glättung liegt im *Dekonstruktionübergang*.

Abbildung 5.21b) soll helfen den im folgenden vorgeschlagenen Mechanismus der Glättung zu diskutieren. Oberflächenatome, die sich in einem (1x1) Bereich befinden (Position C), haben eine höhere Koordinierung, verglichen mit Atomen einer (2x1) Struktur, und werden deshalb eine größere Bindungsenergie als die der (2x1) Struktur haben. Durch Stufen an der Oberfläche ist der Level 1 (oberste Atomlage) nicht komplett aufgefüllt ($\Theta < 0.5$). Bei höheren Temperaturen werden nun die Atome in Level 1, bedingt durch die erhöhte Mobilität, bestrebt sein, sich gleichmäßig über die Oberfläche zu verteilen (Konzentrationsgradient). In Level 2 kann jedoch keine wesentliche Verringerung der Belegungsdichte durch einen Diffusionsprozess stattfinden, da die Stufenkanten zu Level 1 als Barriere wirken. Aus diesem Grund ist es wahrscheinlich, daß Atome, die an einer Stufenkante in Level 1 sitzen, bei ihrer Diffusionsbewegung auf höher koordinierte Positionen (A und B) von Level 2 treffen und dort verbleiben. Dieser Mechanismus wirkt somit als Senke für Atome aus Level 1 und wird die Mobilität in Level 1 noch erhöhen, da dort immer weniger Atome vorhanden sind.

Wird nun eine längere Zeit abgewartet, so daß die Oberfläche in ein thermodynamisches Gleichgewicht kommen kann (aus Erfahrungen während dieser Arbeit, wird als untere Schranke der Relaxationszeit ca. 8h abgeschätzt), so wird sich eine flachere Oberfläche einstellen, verglichen mit derjenigen bei niedrigen Temperaturen.

Aufgrund dieses Modells wird der Stufenbildung eine wesentliche Rolle beim Mechanismus des *Dekonstruktionsüberganges* zugeschrieben. Diese Annahme wird noch unterstützt, durch die Beobachtung, daß die Glättung ausschließlich in [001] Richtung sichtbar ist, während in $[1\bar{1}0]$ Richtung eine leichte Erhöhung der Rauigkeit stattfindet (vergl. Abb. 5.18). Die Struktur der Oberfläche wird isotroper.

Das gerade vorgestellte Modell zur Bildung einer geordneten (1x1) Struktur im Temperaturbereich von $T_c < T < T_R$ bestätigt in wesentlichen Punkten die theoretischen Arbeiten von Roelofs *et al.* [93, 111]: 1. Die Wichtigkeit von Stufen für die *Dekonstruktion* und 2. den hier vorgeschlagenen Diffusionsmechanismus.

4. Die rauhe Phase oberhalb T_R ($T_R < T < T^*$, *Roughening*).

Ab einer Temperatur T_R ist an der Au(110)(1x1)-Oberfläche ein *Rougheningübergang* zu beobachten. Dies wird aus der erhöhten Stufendichte und hauptsächlich aus der

Bildung von Mehrfachstufen abgeleitet. Zum ersten mal konnte die Stufenhöhenverteilung bei einem *Rougheningübergang* direkt bestimmt werden. Das Ergebnis der Analyse ist in Tabelle 5.1 gezeigt. Der leichte Unterschied in den Stufenhöhenverteilungen zwischen [001] und $[1\bar{1}0]$ Richtung liegt noch innerhalb der Fehlergrenzen ($\approx 5\%$) bei der Bestimmung der Verteilung.

Anstatt den *Rougheningübergang* durch eine Änderung des Peakprofiles von einem Lorentz Profil zu einem Potenzgesetz-Profil zu charakterisieren, wurde die Erhöhung der mittleren Stufenhöhen als Indiz für den Übergang herangezogen. Die erwartete Änderung des Peakprofils [51] konnte in diesen Experimenten nicht beobachtet werden. Wie schon diskutiert, wird der große Beitrag der experimentellen Auflösungsfunktion zum Peakprofil hierfür verantwortlich gemacht. Aus diesem Grund kann jedoch keine Aussage gemacht werden, ob der beobachtete *Rougheningübergang* im Rahmen eine KT-Überganges theoretisch beschrieben werden kann, oder ob eine andere Beschreibung notwendig ist.

5. Die glatte, lateral ungeordnete Phase ($T > T^*$, *Premelting*).

In einem kürzlich durchgeführten MEIS (Medium-Energy-Ion-Scattering) Experiment [119, 120] an der Au(110)-Oberfläche, konnte ab einer Temperatur $T^* = 770\text{K}$ die Bildung einer ungeordneten Schicht beobachtet werden. Diese Unordnung wird dem *Premelting*-Effekt zugeordnet. Zusätzlich wurde in den LEED-Experimenten bei der Analyse der Halbwertsbreite des (00) Reflex bei einer außer-phasen Bedingung eine Verschmälerung des Peaks bei $T \gg T_R$ beobachtbar (Abb. 5.9). Dies kann durch eine Verringerung der Stufendichte γ erklärt werden. In einem SPA-LEED Experiment an einer Pb Oberfläche [83] konnte ebenfalls ab einer bestimmten Temperatur ein 'zusammenbrechen' der Oberflächenrauigkeit beobachtet werden. Die Bildung einer quasiflüssigen Oberflächenschicht ist mit einer deutlichen Erhöhung der lateralen Diffusionskonstanten verbunden [79], die den beobachteten Abbau der Rauigkeit erklären könnte.

Es wird vermutet, daß der beobachtete *Rougheningübergang* einen Vorläufer des anschließenden *Premelting* darstellt. Durch die stark geänderten Bindungsverhältnisse für die Oberflächenatome an der rauhen Oberfläche, ist eine stärkere Anharmonizität der interatomaren Wechselwirkung anzunehmen, was auch zu der erhöhten Schwingungsamplitude führt (vergl. Kapitel 5.1.2), die die Bildung einer quasi-flüssigen Oberflächenschicht fördert (Lindemann-Theorem [2]).

Kapitel 6

Zusammenfassung und Ausblick

In dieser Arbeit wurde durch Beugungsexperimente die Temperaturabhängigkeit der Struktur der Au(110)-Oberfläche untersucht. Hierzu wurden zwei Methoden unterschiedlicher Auflösung verwendet: LEED, mit einer Transferbreite von ca. 75Å und SPA-LEED, dessen Transferbreite etwa 1500Å ist.

Erweiterung einer kinematischen Theorie zur Beschreibung von Beugungsexperimenten an gestuften Oberflächen

Um die Ergebnisse der Beugungsexperimente quantitativ auswerten zu können, wurde eine von Fenter und Lu entwickelte Berechnung der Beugungsprofile im Rahmen der kinematischen Theorie erweitert. Die Erweiterungen beinhalteten die Beschreibung von Mehrfachstufen an einer (2x1) rekonstruierten Oberfläche und die Berücksichtigung sogenannter Anit-Phasen-Defekte. Durch die Erweiterungen konnte der Einfluß von Mehrfachstufen und einer Mißorientierung der Oberfläche auf die Peakpositionen und Halbwertsbreiten der Reflexe beispielhaft demonstriert werden.

Ausgehend von der vorgestellten kinematischen Theorie wurde eine Methode entwickelt, die mit Hilfe einer Fourier-Analyse der Halbwertsbreiten-Oszillation als Funktion des senkrechten Impulsübertrages $k_{\perp} \cdot d$ erste Werte der Stufenhöhenverteilung ermittelt, die als Startwerte für eine genauere Berechnung mit Hilfe der kinematischen Theorie dienen.

LEED Untersuchung

In den LEED Experimenten wurde eine Irreversibilität des (2x1)→(1x1) Überganges beobachtet, die während der gesamten Zeitdauer der Untersuchungen (über 2 Jahre!) beobachtbar war. Hierbei sind nach dem langsamen Abkühlen von einer Temperatur oberhalb der *Dekonstruktions*-Temperatur T_c auf Raumtemperatur im Beugungsbild zahlreiche zusätzliche Reflexe zu sehen, die eine Mischung zahlreicher verschiedener Strukturen anzeigen. Die Irreversibilität ist auch beim SPA-LEED Experiment beobachtet worden.

Durch die Messungen der Peakprofile in einem großen Temperaturbereich von 45K bis 780K wurde aus der Temperaturabhängigkeit der Intensitäten der (10) und ($\frac{3}{2}$ 0) Reflexe die effektive Debye Temperatur bestimmt. Die ist das erste Experiment, bei dem

die Debye-Temperatur für diese Oberfläche bei tiefen Temperaturen bestimmt wurde. Aus dem Experiment läßt sich eine Erhöhung der mittleren Schwingungsamplitude um einen Faktor 1.5 für den (10) Reflex gegenüber dem Bulkwert ableiten. Zusätzlich ist eine größere Debye-Temperatur für einen größeren parallelen Impulsübertrag ($\Theta_{Debye}^{(10)} < \Theta_{Debye}^{(\frac{3}{2}0)}$) zu sehen. Dies wird durch einen Beitrag der mittleren Schwingungsamplitude parallel zur Oberfläche erklärt, die in der Größenordnung des Bulkwertes liegen sollte. Bei Bestimmung der Halbwertsbreite der (10) und ($\frac{3}{2}0$) Reflexe wurde bei einer Temperatur von ca. 200K eine Anomalie beobachtet, die durch keines der bisher bekannten Struktur-Modelle erklärt werden kann. Eine mögliche Ursache könnte in einer strukturellen Umordnung der Oberfläche bei tiefen Temperaturen liegen.

Bei einem Experiment an einer unvollständig geordneten Oberfläche wurde eine breite Intensitätsverteilung unterhalb der halbzahligen Bragg-Reflexe gefunden. Die Analyse der Halbwertsbreiten und Intensitäten zeigten, daß auch an einer unvollständig geordneten (2x1) Struktur das Verhalten der Korrelationslänge ξ (inverse Halbwertsbreite des diffusen Peaks), des Ordnungsparameters Ψ (Intensität des halbzahligen Bragg-Peak) sowie der dynamischen Suszeptibilität χ (Intensität des diffusen Peaks) gut im Rahmen des 2D-Ising Modells beschrieben werden kann.

Bei einer ausführlicheren Analyse der Intensität des ($\frac{3}{2}0$) Reflexes an einer vollständig geordneten (2x1) Struktur konnte die Übergangstemperatur mit $T_c = 700.7K \pm 1K$ und der kritische Exponent mit $\beta = 0.102 \pm 0.08$ ermittelt werden. Zusätzlich konnte aus den Daten für (10) und ($\frac{3}{2}0$) Reflexe erneut die effektive Debye-Temperatur für Temperaturen von Raumtemperatur bis T_c ermittelt werden. In dieser Analyse wurden gegenüber der tieftemperatur Messung ca. 8% kleinere Werte gefunden, die eine stärkere Anharmonizität der interatomaren Wechselwirkung für höhere Temperaturen andeuten. Aus dem kritischen Verhalten des Ordnungsparameters, beschrieben durch den kritischen Exponenten β , und der Korrelationslänge ξ wird abgeleitet, daß der (2x1) \rightarrow (1x1) Übergang gut mit einem 2D-Ising Modell beschrieben werden kann.

SPA-LEED Untersuchung

In einer ausführlichen SPA-LEED Untersuchung wurde zum ersten Male mit Elektronenbeugung die temperaturabhängige Positionszillation der halbzahligen Reflexe ($(\frac{1}{2}0)$ und $(\frac{1}{2}\bar{1}0)$) bestimmt. Zusätzlich wurde aufgrund einer Mißorientierung der Kristalloberfläche um ca. -0.17° gegenüber der [110] Richtung eine Positionszillation der $(\bar{1}0)$ und (10) Reflexe beobachtet. Aus einem Vergleich der temperaturabhängigen Meßergebnisse der Positionszillationen mit Modellrechnungen wurde die mittlere Terrassenbreite ermittelt.

Eine temperaturabhängige Analyse der Halbwertsbreite des (00) Reflexes als Funktion des senkrechten Impulsübertrages wurde im Vergleich mit ausführlicher Modellrechnungen durchgeführt. Hierbei ist die Stufendichte sowie die Stufenhöhenverteilung in [001] und $[1\bar{1}0]$ Richtung bestimmt worden. Für Temperaturen unterhalb

des *Rougheningüberganges* wurde zum ersten Male eine starke Anisotropie der Stufendichte bezogen auf die Richtung festgestellt. Außerdem wurden ausschließlich Einfachstufen ermittelt. Schon unterhalb des *Dekonstruktionsüberganges* zeigt die Oberfläche in [001] Richtung eine Rauigkeit mit einer mittleren Terrassenbreite von ca. 150Å–200Å, während für die [1 $\bar{1}$ 0] Richtung eine untere Grenze der Terrassenbreite von ca. 640Å abgeschätzt wurde. In der Umgebung von T_c zeigt sich eine starke Erhöhung der Stufendichte in [001] Richtung. Oberhalb T_c wird bei T_R eine geordnete (1x1) Struktur, mit einer kleineren Stufendichte als bei Raumtemperatur, festgestellt.

Diese experimentellen Beobachtungen wurden mit einem einfachen Modell diskutiert, indem der Bildung von Einfachstufen für die *Dekonstruktion* und die anschließende 'Glättung' eine wichtige Rolle zugeschrieben wird. Dieses Modell deckt sich ausgezeichnet mit Ergebnissen einer theoretischen Arbeit von Roelofs *et al.* [93], in der der (2x1)→(1x1) Phasenübergang im Rahmen einer erweiterten *Embedded-Atom-Methode* untersucht wurde. In der Arbeit von Roelofs *et al.* wurde die in dieser Arbeit beobachtete Anisotropie der Stufendichte, bezogen auf die Kristallrichtungen, vorhergesagt. Oberhalb dieser glatten (1x1) Struktur wurde ein *Rougheningübergang* durch Auftreten von Mehrfachstufen für beide Richtungen und eine Erhöhung der Stufendichte nachgewiesen. Als Übergangstemperatur wird ein Wert von $T_R = 700\text{K} \pm 10\text{K}$ abgeschätzt. Zum ersten Male konnte ein *Rougheningübergang* durch direkte Beobachtung der Stufenhöhenverteilung belegt werden.

Temperaturabhängigkeit der Oberflächenstruktur

Aus diesen und den LEED Ergebnissen läßt sich feststellen, daß der *Rougheningübergang* gut separiert oberhalb des (2x1)→(1x1) Überganges stattfindet. Dies steht in guter Übereinstimmung mit Ergebnissen eines kürzlich veröffentlichten He-Beugungs Experimentes [118] und einem Synchrotron-Strahlungs Experiment [110]. Bei allen bisher veröffentlichten Untersuchungen der *Dekonstruktion* und des *Roughening* wurde, trotz unterschiedlichen absoluten Werten für die Übergangstemperaturen, eine Übereinstimmung in der Differenz von T_c und T_R mit einem Wert von 50K–60K gefunden. Es wird vermutet, daß die absoluten Übergangstemperaturen von Oberflächenverunreinigungen und *finite size* Effekt beeinflusst sein können, die Temperaturdifferenz jedoch nur von der Asymmetrie zwischen Nächster-Nachbar- und Übernächster-Nachbar-Wechselwirkung abhängt, wie auch in [93] diskutiert wurde.

Anhand der experimentellen Ergebnisse wurde ein Modell der temperaturabhängigen Oberflächenstruktur diskutiert, in dem fünf unterschiedliche Temperaturbereiche charakterisiert wurden. Um einen zusammenfassenden Überblick über die unterschiedlichen Temperaturbereiche der Oberflächenstrukturen geben zu können, wurde als ein Maß für die Rauigkeit ein Rauigkeitsparameter eingeführt. Da die Rauigkeit sowohl von der Stufendichte γ , als auch von der mittleren Stufenhöhe $\langle H \rangle$ abhängt, wurde als Rauigkeitsparameter das Produkt $\gamma \cdot \langle H \rangle$ aus beiden Größen gewählt. Das Ergebnis ist in Abbildung 6.1 für beide Richtungen dargestellt. Deutlich sind die fünf unterschiedli-

chen Temperaturbereiche mit verschiedenen Oberflächenstrukturen und die Anisotropie zwischen $[001]$ und $[1\bar{1}0]$ Richtung erkennbar.

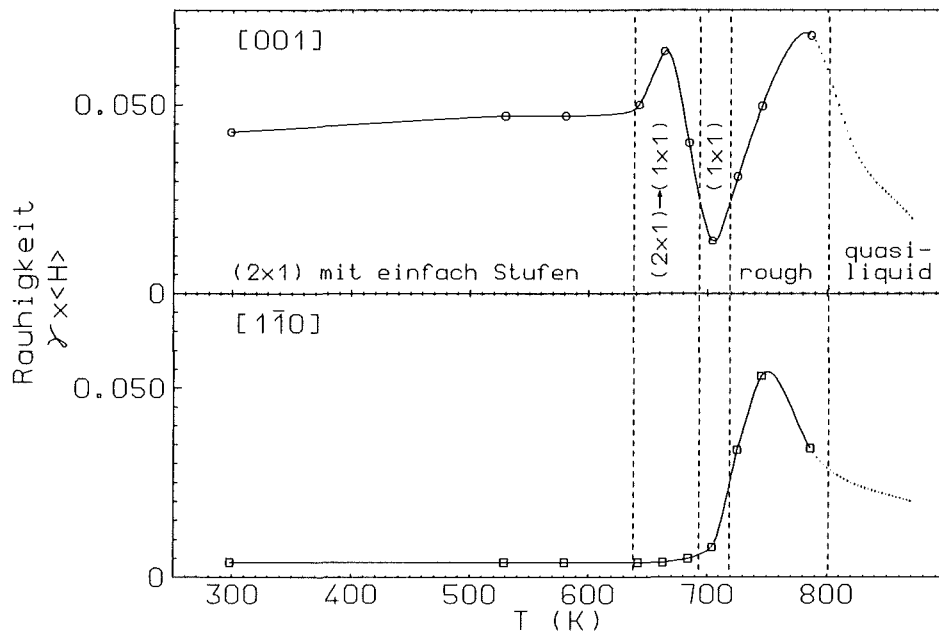


Abb. 6.1: Temperaturabhängigkeit der Rauigkeit an der Au(110)-Oberfläche, beschrieben durch einen Rauigkeitsparameter ($\gamma \times \langle H \rangle$) für die $[001]$ und $[1\bar{1}0]$ Richtungen. Die Glättung durch die Bildung einer Quasi-Flüssigkeit oberhalb 770K–800K wird anhand der LEED-Ergebnisse abgeleitet und ist durch die gepunkteten Linien angedeutet.

Ausblick

Zukünftig werden die Untersuchungen durch eine dritte, unterschiedliche Methode, durch Beugung von thermischen He-Atomen, ergänzt. Hierzu sind die Vorbereitungen an einer parallel zu dieser Arbeit in Betrieb genommenen Apparatur abgeschlossen, so daß in nächster Zeit erste Experimente begonnen werden können. Der Vorteil dieser Methode liegt darin, daß außer Strukturinformationen aus den Beugungsprofilen, noch zusätzliche Daten durch Energieanalyse der gebeugten He-Atome gewonnen werden können. Durch die Möglichkeit der Spektroskopie werden Aussagen über die Phononen und die Diffusion beim *Dekonstruktions-* und *Rougheningübergang* möglich sein.

Außerdem wäre es wünschenswert, ergänzende Messungen mit SPA-LEED, im besonderen im Temperaturbereich zwischen $T < T_c$ und $T > T_R$, durchzuführen. Hierbei könnte über eine Kalibrierung der Intensitäten eine ausführlichere quantitative Analyse des diffusen Peaks unter den halbzahligen Reflexen, hervorgerufen durch Streuung an kritischen Fluktuationen, durchgeführt werden. Zusätzlich wäre eine noch ausführlichere Untersuchung der Zeitabhängigkeit des *Dekonstruktions-*, bzw. *Roughening-*Überganges interessant.

Anhang A

Ergänzungen

A.1 Empirische Regel zur Entfaltung von Meßdaten (Auflösung Gaußförmig, Meßeffect Lorentzförmig)

Die zur Entfaltung der experimentellen Peaks verwendete empirische Regel (Gl. (5.14)) wurde, wie schon in Kapitel 5.2.4 erwähnt, durch numerische Analyse gewonnen. An dieser Stelle möchte ich auf die Vorgehensweise bei der Gewinnung der Regel etwas genauer eingehen. Die Lorentzkurve ist definiert durch

$$l(x) = \frac{1}{1 + 4 \left(\frac{x}{l}\right)^2}, \quad (\text{A.1})$$

mit der Halbwertsbreite l . Die zu faltende Gaußkurve wird durch

$$g(x) = \exp\left(-4 \ln 2 \left(\frac{x}{g}\right)^2\right), \quad (\text{A.2})$$

definiert, wobei g die Halbwertsbreite der Gaußkurve darstellt. Die Faltung der zwei Kurven ist definiert durch:

$$(l \otimes g)(x) = \int_{-\infty}^{+\infty} l(\tau)g(x - \tau)d\tau, \quad (\text{A.3})$$

wobei das Symbol \otimes die Faltung zweier Funktionen darstellen soll. Die Gaußkurve muß vor der Faltung noch auf die Fläche '1' normiert werden.

Im Beispiel zweier gefalteter Gaußkurven ist das Resultat wiederum eine Gaußkurve, deren Halbwertsbreite größer ist, als die der Einzelpeaks. Die Zusammensetzung der gesamten Halbwertsbreite aus den einzelnen Halbwertsbreiten, kann aus dem analytischen Ausdruck für den gefalteten Peak gewonnen werden. Hieraus kann eine einfache inverse Beziehung zur Entfaltung gewonnen werden. Diese Vorgehensweise ist im Falle der Faltung von Lorentz- mit Gaußpeak nicht möglich, da die analytische Ausführung des Faltungsintegrals Gl. (A.3) zu einer Integralfunktion führt, für deren Stammfunktion kein geschlossener Ausdruck existiert.

Um eine wichtige Eigenschaft der Faltung zweier symmetrischen Funktionen mit gegebener Halbwertsbreite plausibel zu machen, gehe ich in den Fourier-Raum über.

Aus der Definition der Fourier-Transformation folgt, daß die Faltung zweier Funktionen durch Multiplikation der Fourier-Transformierten der Funktionen und einer anschließenden Rücktransformation der Produktfunktion durchgeführt werden kann (Faltungstheorem):

$$(l \otimes g)(x) = \text{FT}^* \{ (L(x) \cdot G(x)) \} \quad (\text{A.4})$$

('FT*{ }') bedeutet die inverse Fourier-Transformation, $L(x)$ und $G(x)$ die Fourier-Transformierten der Lorentz-, bzw. Gaußkurven.)

Die Fourier-Transformierte einer reellen symmetrischen Peak-Funktion mit Halbwertsbreite b ergibt eine reelle symmetrische Peak-Funktion mit einer Halbwertsbreite $B \sim 1/b$. Mit diesen Eigenschaften kann das Skalierungsverhalten einer Faltung zweier Peak-Funktionen mit entsprechenden Halbwertsbreiten abgeleitet werden:

Die Faltung zweier Peak-Funktionen mit Halbwertsbreiten b_1 und b_2 ergibt eine resultierende Peak-Funktion mit Halbwertsbreite r . Werden nun zwei Peak-Funktionen mit Halbwertsbreiten $n \cdot b_1$ und $m \cdot b_2$ gefaltet, so ergibt sich eine Peak-Funktion deren Halbwertsbreite $nm \cdot r$ beträgt.

Das Skalierungsverhalten der gefalteten Funktion wurde bei der im folgenden beschriebenen numerischen Analyse ausgenutzt. Hierzu wurde die Halbwertsbreite des Lorentz-Peaks von $l = 0$ bis $l = 1$ in 50 Schritten vergrößert. Parallel hierzu wurde die Halbwertsbreite der zu faltenden Gauß-Kurve von $g = 1$ bis $l = 0$ verringert, ebenfalls in 50 Schritten. Beide Peaks wurden nun mit Hilfe eines FFT-Algorithmus (Fast-Fourier-Transformation) gefaltet. Der resultierende Peak wurde numerisch auf seine Halbwertsbreite ausgewertet. Die Halbwertsbreiten der Lorentz- und Gauß-Kurven wurde mit der ermittelten gesamten Halbwertsbreite normiert. Alle Kurven wurden mit einer Genauigkeit von $\Delta x = 10^{-7}$ berechnet, so daß die relative Genauigkeit mit der die Halbwertsbreite numerisch bestimmt wurde ebenfalls in der Größenordnung von 10^{-7} liegt. Nach dieser Analyse wurden die normierten Gaußbreiten g als Funktion der normierten Lorentzbreiten l aufgetragen. Das Resultat ist als Kreise in Abbildung A.1 dargestellt. Die eingezeichnete Kurve stellt ein Fit einer Wurzelfunktion an die Daten dar, mit dem Ergebnis: $g = x\sqrt{1 - l/x}$, mit $x = 1$ der Halbwertsbreite des resultierenden Peaks. Aus diesem Ergebnis zusammen mit dem gerade erwähnten Skalierungsverhalten der Halbwertsbreiten konnte die in Gl. (5.14) definierte Regel abgeleitet werden.

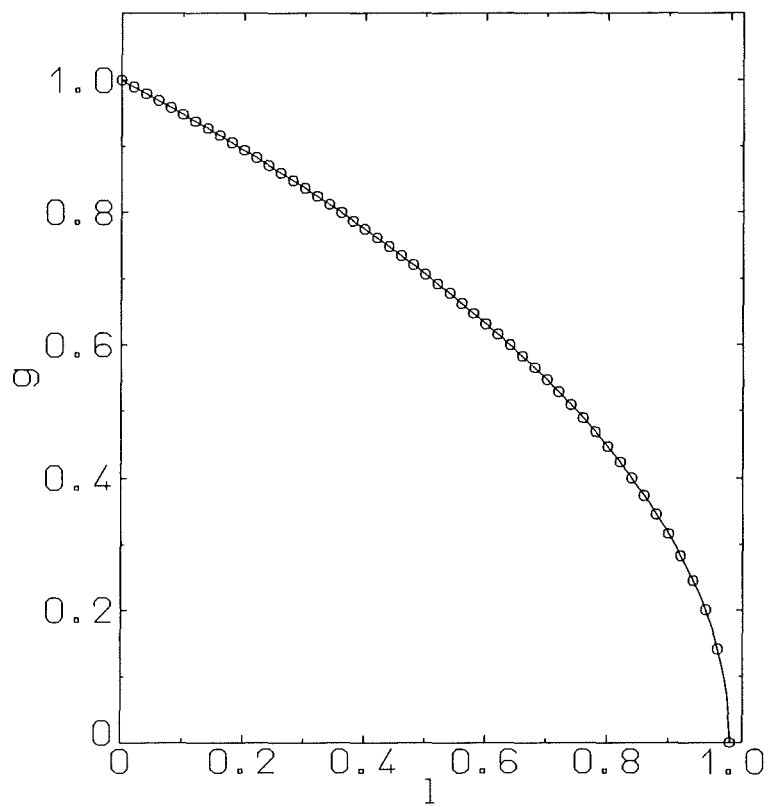


Abb. A.1: Halbwertsbreiten g einer Gaußkurve als Funktion der Lorentzbreite l bei Faltung beider Kurven in einen Peak mit der Halbwertsbreite '1'. Die Kreise stellen die Ergebnisse der numerischen Analyse dar. Die eingezeichnete Kurve ist ein Fit einer Wurzelfunktion an die Daten.

A.2 Fourier-Analyse der Halbwertsbreiten Oszillation

Bei der Bestimmung der Stufenhöhenverteilung aus der Analyse der Halbwertsbreiten Oszillationen des (00)-Reflexes in Kapitel 5.2.4 wurde gesagt, daß die Schätzwerte der Stufenhöhenverteilung durch eine Fourier-Analyse gewonnen wurden. Mit diesen Startwerten wurde anschließend ein χ^2 -Vergleich der berechneten Oszillationen mit den experimentellen Daten durchgeführt. Ausgehend von Gleichungen (4.12) auf Seite 44 und (4.19) auf Seite 46 für den Fall reiner Einfachstufen ($H = 1$) kann nach [44] eine Näherungsformel für die Halbwertsbreite als Funktion des senkrechten Impulsübertrages k_{\perp} gefunden werden:

$$\frac{\Delta(k_{\perp})}{\Delta(BZ)} = \frac{1}{\pi} \arccos \left(\frac{4\rho - \rho^2 - 1}{2\rho} \right) \quad (\text{A.5})$$

Hierbei ist ρ der Realteil des in Gl. (4.19) definierten Grenzstrukturfaktors f , $\Delta(k_{\perp})$ die Halbwertsbreite als Funktion von k_{\perp} und $\Delta(BZ) = 2\pi/a$ die Größe der Brillouin-Zone. Durch Umschreiben von Gl. (A.5) in eine Taylor Reihe und einsetzen von Gl. (4.19) für $H = 1$ liefert eine Reihe, die nach einigen Umformungen mit einem (\sin^2) identifiziert werden kann. Dies kann auch aus einem reinen optischen Vergleich der berechneten Halbwertsbreiten Oszillation geschlossen werden (vergl. Abb. 4.11a)). Gleichung (A.5) kann deshalb als

$$\frac{\Delta(k_{\perp})}{\Delta(BZ)} = \alpha \gamma \sin^2 \left(\frac{1}{2} k_{\perp} d \right) \quad (\text{A.6})$$

geschrieben werden. Hierbei ist α eine Proportionalitätskonstante. Gleichung (A.6) kann auf Mehrfachstufen erweitert werden:

$$\frac{\Delta(k_{\perp})}{\Delta(BZ)} = \alpha \sum_{h=1}^H \gamma_h \sin^2 \left(\frac{1}{2} q k_{\perp} d \right). \quad (\text{A.7})$$

In Worten ausgedrückt, besagt diese Gleichung, daß die Halbwertsbreiten Oszillation als Superposition von harmonischen Funktionen mit verschiedenen Frequenzen beschrieben werden kann. Gleichung (A.7) kann wie folgt umgeformt werden:

$$\frac{\Delta(k_{\perp})}{\Delta(BZ)} = \frac{\alpha}{2} \gamma + \frac{\alpha}{2} \sum_{h=1}^H (-\gamma_h) \cos(q k_{\perp} d) \quad (\text{A.8})$$

Dieser letzte Ausdruck stellt eine harmonische Reihe dar, deren Koeffizienten die negativen relativen Stufenhöhenwahrscheinlichkeiten γ_h sind. Die Methode wurde im Vergleich mit bereits veröffentlichten Daten [113] erfolgreich getestet [124].

Um nun die relativen Stufenhöhenwahrscheinlichkeiten γ_h aus der Halbwertsbreiten Oszillation zu erhalten, wurde folgende Prozedur durchgeführt:

1. Zuerst wurden die Daten bezüglich einer außer-phasen Bedingung symmetrisiert, d.h die Halbwertsbreiten Oszillation ist eine gerade periodische Funktion bezüglich den außer-phasen Bedingungen.

2. An die symmetrisierten Daten wurde eine glatte Spline-Kurve angepaßt, um die Datenmenge zu erhöhen. Dabei wurde darauf geachtet, daß die Anzahl der Datenpunkte eine zweier Potenz darstellte, um eine FFT durchführen zu können.
3. Die Daten der Spline-Kurve wurden durch eine FFT transformiert.

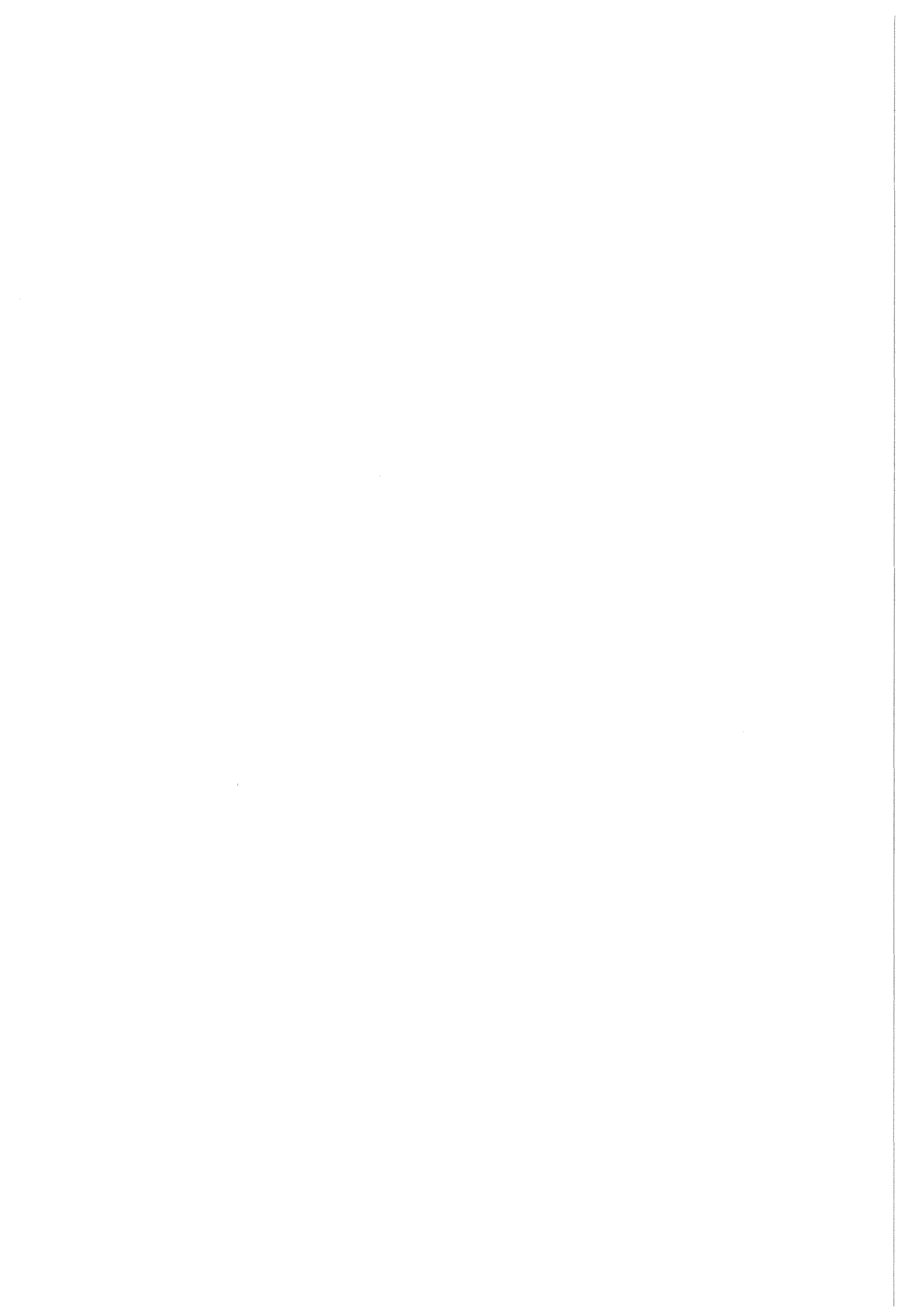
Die dabei erhaltenen Fourier-Koeffizienten stellen nun die relativen Stufenhöhenwahrscheinlichkeiten, multipliziert mit der unbekanntenen Konstanten $\alpha/2$, dar. In Tabelle A.1 ist das Ergebnis der Fourier-Analyse für die Halbwertsbreiten Oszillation bei T=786K in [001] Richtung dargestellt (Abb. 5.17 auf Seite 88). Im Vergleich zum Ergebnis der Modellrechnung (Tabelle 5.1 auf Seite 90) ist eine relativ gute Übereinstimmung zu erkennen.

Stufenhöhe	h=1	h=2	h=3	h=4	h=5	h=6	h=7
γ_h	53.9%	—	15.6%	15.8%	5.3%	5.0%	4.4%
Tab. 5.1	58%	—	15%	18%	9%	—	—

Tabelle A.1: Stufenhöhenverteilung aus der Fourier-Analyse der Halbwertsbreiten Oszillation des (00) Reflex bei T=786K in [001] Richtung.

Die Genauigkeit dieser Methode wird durch die Schrittweite in Δk_{\perp} , mit der die verschiedenen Halbwertsbreiten des (00) Reflex gemessen wurden, begrenzt. Bei der Fourier-Analyse kann die Stufenhöhenverteilung mit einem Frequenzspektrum identifiziert werden. Nach dem *Nyquist-Theorem* können jedoch nur Frequenzen bis zu einer maximalen Frequenz aufgelöst werden. Mit dieser maximalen Frequenz kann eine maximale Stufenhöhe identifiziert werden.

Diese Methode stellt somit eine leistungsfähige Analysenmethode dar, um schnell einen ersten Anhaltspunkt für die Stufenhöhenverteilung zu erhalten. Diese Schätzwerte können anschließend im Vergleich von Modellrechnungen mit den Daten verbessert werden.



Abbildungsverzeichnis

1.1	Kugelmodell der Au(110)(2x1)-Oberfläche	2
2.1	LEED-Kammer	6
2.2	LEED-Transferbreite	8
2.3	Schematischer Aufbau des SPA-LEED	10
2.4	Elektrostatische Ablenkung im SPA-LEED	11
2.5	Ewaldkonstruktion für SPA-LEED	11
2.6	SPA-LEED-Kammer	13
2.7	AES-Spektrum mit Verunreinigungen	15
2.8	AES-Spektrum ohne Verunreinigungen	16
3.1	Modell einer (2x1), bzw. (1x1)-Oberfläche	23
3.2	Beispiele für die Wulff-Konstruktion	26
3.3	Ergebnisse einer SOS-Simulation	30
4.1	Mosaik-Struktur	36
4.2	Beispiele regelmäßiger Stufen	37
4.3	Beispiel statistischer Stufen	39
4.4	Geometrische Verteilungsfunktion	41
4.5	Stufenmodell für ABAB-Stapelung	46
4.6	Ising-Defekte auf fcc(110)(2x1)-Oberflächen	47
4.7	Peakprofile an gestufen fcc(110)(2x1)-Oberflächen	49
4.8	Positionen und FWHM von Peakprofilen an Einfachstufen	51
4.9	Positionen und FWHM von Peakprofilen an Einfach- und Zweifachstufen	52

4.10	Positionen und FWHM von Peakprofilen an Einfachstufen mit Mißorientierung	53
4.11	Halbwertsbreiten-Oszillationen des (00) Peaks mit verschiedenen Stufenhöhen	55
4.12	Halbwertsbreiten-Oszillationen des (00) Peaks mit verschiedenen Stufenhöhen-Verteilungen	56
4.13	Halbwertsbreiten-Oszillationen des (00) Peaks mit geometrischer Stufenhöhen-Verteilungen	57
4.14	FWHM des (00) Peaks als Funktion von γ	58
4.15	Eigenschaften des halbzahligen Reflexes für unterschiedliche Stufenhöhen Verteilungen	59
4.16	FWHM des ($\frac{1}{2}$ 0) Peaks als Funktion der Ising-Defekt-Dichte ϵ	60
5.1	LEED Beugungsbilder in 3D Darstellung	62
5.2	LEED-Messung bei tiefen Temperaturen (Intensität)	64
5.3	LEED-Messung bei tiefen Temperaturen (FWHM)	66
5.4	Beugungsprofile mit diffuser Streuung an Fluktuationen der (2x1) Struktur	68
5.5	Gemessene Beugungsprofile mit diffuser Streuung	68
5.6	Halbwertsbreite und Intensitäten von Peakprofilen	69
5.7	Intensitäten als Funktion der Temperatur	71
5.8	Peakposition des ($\frac{3}{2}$ 0) Peaks bei T=660K	74
5.9	Zeitabhängigkeit der Verbreiterung des (00) Peaks	74
5.10	Typisches SPA-LEED Beugungsprofil	78
5.11	Relative Abstände der Peakpositionen zum (00) Peak als Funktion der Elektronenenergie	79
5.12	Peakpositionen eines halbzahligen Reflexes als Funktion von $k_{\perp} \cdot d$	81
5.13	Peakpositionen als Funktion von $k_{\perp} \cdot d$ bei T=298K	82
5.14	Peakpositionen als Funktion von $k_{\perp} \cdot d$ bei T=642K	83

5.15	Peakpositionen als Funktion von $k_{\perp} \cdot d$ bei $T=684\text{K}$	84
5.16	Auflösung als Funktion des senkrechten Impulsübertrages bei $T=529\text{K}$.	87
5.17	Temperaturabhängige Halbwertsbreiten-Oszillationen des (00) Peaks . .	88
5.18	Entfaltete Halbwertsbreite des (00) Peaks sowie des $(\frac{1}{2}0)$ Peaks	91
5.19	Peakprofile des (00) Reflexes bei drei Temperaturen	93
5.20	Mittlere Terrassenbreite aus der Peakshift und FWHM des (00) Reflexes	95
5.21	Schematisches Modell einer Au(110)-Oberfläche bei $T_c < T \ll T_R$	99
6.1	Temperaturabhängigkeit der Rauhigkeit an der Au(110)-Oberfläche . . .	106
A.1	Halbwertsbreiten einer Gaußkurve als Funktion der Lorentzbreite bei Fal- tung beider Kurven zu einem Peak der Halbwertsbreite '1'	109

Tabellenverzeichnis

3.1	Kritische Exponenten des 2D-Ising Modells.	22
3.2	<i>Roughening</i> -Temperatur in Abhängigkeit der Orientierung an Cu(11 <i>n</i>)- Oberflächen	33
3.3	<i>Roughening</i> -Temperatur unterschiedlicher fcc(110) Metalloberflächen . .	34
5.1	Stufenhöhenverteilungen für unterschiedliche Temperaturen	90
A.1	Stufenhöhenverteilung aus der Fourier-Analyse	111

Literaturverzeichnis

- [1] G.Wulff, *Z.Krist.Mineral.* **34**, (1901)449
- [2] F.A.Lindemann, *Z.Phys.* **14**, (1910) 609
- [3] W.Kossel, *Nachr.Ges.Wiss. Göttingen, Mathemat./Physikal. Klasse*, (1927)135
- [4] J.N.Stranski, *Z.Phys.Chemie* **136**, (1928)259
- [5] L.Onsager, *Phys.Rev.* **65**, (1944)117
- [6] W.K.Burton and N.Cabrera, *Discuss.Faraday Soc.* **5**, (1949)33
- [7] W.K.Burton and N.Cabrera, F.C.Frank, *Phil.Trans.Roy.Soc. (London)*, **243A**, (1951)299
- [8] P.J.Flory, *Principles of Polymer Chemistry*, (Cornell University Press, Ithaca NY 1953), S.318
- [9] M.E.Fisher and R.J.Bruford, *Phys.Rev.* **156**, (1967)583
- [10] J.E.Houston and R.L.Park, *Surf.Sci.* **21**, (1970)209
- [11] J.E.Houston and R.L.Park, *Surf.Sci.* **26**, (1971)269
- [12] R.L.Park, J.E.Houston and D.G.Schreiner, *Rev.Sci.Instr.* **42**, (1971)60
- [13] E.H.Lieb, F.Y.Wu, *Two-dimensional ferroelectric models*, in *Phase Transitions and Critical Phenomena*, Vol. I, ed. von C.Domb, M.S.Green (Academic, New York 1972)
- [14] J.M.Kosterlitz, D.J.Thouless, *J.Phys.C* **6**, (1973)1181
J.M.Kosterlitz, *J.Phys.C* **7**, (1974)1046
- [15] J.Villain, *J.Phys. (Paris)* **36**, (1975)581
- [16] S.T.Chui and J.D.Weeks, *Phys.Rev.B* **14**, (1976)4978
- [17] M.Henzler, *Appl.Phys.* **9**, (1976)11
- [18] H.van Beijeren, *Phys.Rev.Lett.* **38**, (1977)993
- [19] *Handbook of AUGER Electron Spectroscopy*, Second Ed., published by Physical Electronics Division, Perkin Elmer Corp. (1978)
- [20] M.Henzler, *Surf.Sci.* **73**, (1978)240
- [21] W.J.Shugard, J.D.Weeks, G.H.Gilmer, *Phys.Rev.Lett.* **41**, (1978)1399

- [22] H.Jagodzinski, W.Moritz and D.Wolf, Parts I-IV *Surf.Sci.* **77**, (1978)233
- [23] J.R.Noonan and H.L.Davis, *J.Vac.Sci.Technol.* **16(2)**, (1979)587
- [24] W.Moritz and D.Wolf, *Surf.Sci.* **88**, (1979)L29-L34
- [25] P.Bak, *Sol.St.Comm.* **32**, (1979)581
- [26] J.C.Heyraud, J.J.Mètois, *J.Cryst.Growth* **50**, (1980) 571
J.C.Heyraud, J.J.Mètois, *Acta Metal.* **28**, (1980) 1789
J.C.Heyraud, J.J.Mètois, *Surf.Sci.* **128**, (1983) 334
J.C.Heyraud, J.J.Mètois, *Surf.Sci.* **177**, (1986) 213
J.C.Heyraud, J.J.Mètois, *J.Cryst.Growth* **82**, (1987) 269
J.C.Heyraud, J.J.Mètois, *Surf.Sci.* **180**, (1987) 647
- [27] M.Iosifescu, *Finite Markov Processes and their Applications*, (Wiley, Bucharest 1980)
- [28] K.-H.Rieder, T.Engel and N.Garcia in *Proc. 4th Intern. Conf. on Solid Surfaces*, Cannes 1980, S.861 ff
- [29] J.D.Weeks, *The Roughening Transition*, in *Ordering in Strongly Fluctuating Condensed Matter Systems*, ed. von T.Riste, (Plenum, New York 1980) S.293
- [30] K.D.Gronwald and M.Henzler, *Surf.Sci* **117**, (1982)180
- [31] D.G.Welkie and M.G.Lagally in *Thin films and Interfaces*, ed. by K.-M.Ho, (Springer, New York 1981) S.227 ff
- [32] K.D.Gronwald, Dissertation an der Universität Hannover (1982)
- [33] M.Manninen, J.K.Nørskov and C.Umrigar, *Surf.Sci.* **119**, (1982)L393
- [34] M.Henzler, *Appl. of Surf.Sci.* **11**, (1982)450
- [35] F.Y.Wu, *Rev.Mod.Phys.* **54**, (1982)235
F.Y.Wu, *J.Appl.Phys.* **55**, (1984)2421
- [36] T.-M.Lu and M.G.Lagally, *Surf.Sci.* **120**, (1982)47
- [37] G.Binning, H.Rohrer, Ch.Gerber and E.Weibel, *Surf.Sci.* **131**, (1983)L379-L384
- [38] I.K.Robinson, *Phys.Rev.Lett.* **50**, (1983)1145
- [39] C.Jayaprakash, W.F.Saam, S.Teitel, *Phys.Rev.Lett.* **50**, (1983)2017
- [40] I.K.Robinson, Y.Kuk and L.C.Feldman, *Phys.Rev.B* **29**, (1984)4762
- [41] C.S.Lent and P.I.Cohen, *Surf.Sci.* **139**, (1984)121
- [42] J.M.Pimbley and T.-M.Lu, *Surf.Sci.* **139**, (1984)360

- [43] M.Presicci and T.-M.Lu, *Surf.Sci.* **141**, (1984)233
- [44] P.Fenter and T.-M.Lu, *Surf.Sci.* **154**, (1985)15
- [45] P.R.Pukite, C.S.Lent and P.I.Cohen, *Surf.Sci.* **161**, (1985)39
- [46] J.M.Pimbley and T.-M.Lu, *Surf.Sci.* **159**, (1985)169
- [47] W.Moritz and D.Wolf, *Surf.Sci.* **163**, (1985)L655-L665
- [48] J.W.M.Frenken and J.F.van der Veen, *Phys.Rev.Lett* **54**, (1985)134
- [49] J.C.Campuzano, M.S.Foster, G.Jennings and R.F.Willis, *Phys.Rev.Lett.* **54**, (1985)2684
- [50] D.A.Huse, C.L.Henley, *Phys.Rev.Lett.* **54**, (1985)2708
- [51] J.Villain,D.R.Grepel, J.Lapujoulade, *J.Phys.F* **15**, (1985)809
- [52] E.H.Conrad *et al.*, *J.Chem.Phys.* **84**, (1986) 1015
errata in *J.Chem.Phys.* **85**, (1986)4756
- [53] U.Scheithauer, G.Meyer and M.Henzler, *Surf.Sci.* **178**, (1986)441
- [54] J.Möller, K.J.Snowdown, W.Heiland and H.Niehus, *Surf.Sci.* **178**, (1986)475
- [55] J.Lapujoulade, *Surf.Sci.* **178**, (1986)406
- [56] M.Copel and T.Gustafsson, *Phys.Rev.Lett.* **57**, (1986)723
- [57] D.E.Clark, W.N.Unertl and P.H.Kleban, *Phys.Rev.B* **34**, (1986)34
- [58] M.A.Van Hove, W.H.Weinberg, C.-M.Chan, *Low Energy Electron Diffraction*, Springer Series in Surf.Sci. 6 (Springer, Berlin Heidelberg 1986)
- [59] S.Balibar, B.Casting, *Surf.Sci.Rep.* **5**, (1986)87
- [60] P.von Blanckenhagen, W.Schommers and V.Vögele, *J.Vac.Sci.Technol. A* **5**, (1987)649
- [61] J.C.Heyraud, J.J.Mètois, *J.Cryst. Growth* **84**, (1987)503
- [62] F.Fabre, D.Gorse, B.Salanon, J.Lapujoulade, *J.de Phys.* **48**, (1987)1017
- [63] E.Bauer, *Phase Transitions on Single-Crystal Surfaces and in Chemisorbed Layers in Structure and Dynamics of Surfaces II*, ed. von W.Schommers und P.von Blanckenhagen, (Springer, Berlin Heidelberg 1987) S.115ff
- [64] H.van Beijeren and I.Nolden, *The Roughening Transition in Structure and Dynamics of Surfaces II*, ed. von W.Schommers und P.von Blanckenhagen, (Springer, Berlin Heidelberg 1987) S.259ff

- [65] M.Garofalo, E.Tosatti and F.Ercolessi, *Surf.Sci.* **188**, (1987)321
- [66] K.-M.Ho and K.P.Bohnen, *Euro.Phys.Lett.* **4**, (1987)345-349
- [67] S.G.J.Mochrie, *Phys.Rev.Lett.* **59**, (1987)304
- [68] K.-M.Ho and K.P.Bohnen, *Phys.Rev.Lett.* **59**, (1987)1833
- [69] G.A.Held, J.L.Jordan-Sweet, P.M.Horn, A.Mak and R.J.Birgeneau, *Phys.Rev.Lett* **59**, (1987)2075
- [70] E.G.McRae, T.M.Buck, R.A.Malic and G.H.Wheatly, *Phys.Rev.B* **36**, (1987)2341
- [71] H.Derks, J.Möller and W.Heiland, *Surf.Sci.* **188**, (1987)L685-L691
- [72] B.Pluis, J.W.M.Frenken and J.F.van der Veen, *Phys.Rev.Lett.* **54**, (1987) 2678
- [73] N.M.Butt *et al.*, *Acta Cryst. A* **44**, (1988)396
- [74] M.Henzler in *Dynamical Phenomena at Surfaces, Interfaces and Superlattices*, Springer Series in Surf.Sci. Vol.3, ed. by F.Nizzoli, K.-H.Rieder and R.F.Willis, (Springer, Berlin 1988) S.14 ff
- [75] R.F.Willis in *Dynamical Phenomena at Surfaces, Interfaces and Superlattices*, Springer Series in Surf.Sci. Vol.3, ed. by F.Nizzoli, K.-H.Rieder and R.F.Willis, (Springer, Berlin 1988) S.126 ff
- [76] M.Wortis, in *Chemistry and Physics of Solid Surfaces VII*, Springer Series in Surf.Sci. Vol.10, ed. by R.Vanselow and R.Howe, (Springer, Berlin Heidelberg 1988) Kap. 11 S.367 ff
- [77] J.Villain and I.Vilfan, *Surf.Sci.* **199**, (1988)165
- [78] W.Weiss, D.Schmeisser and W.Göpel, *Phys.Rev.Lett.* **60**, (1988)1326
- [79] J.W.M.Frenken, J.P.Toennies and Ch.Wöll, *Phys.Rev.Lett* **60**, (1988)1727
- [80] W.Weiss, D.Schmeisser and W.Göpel, *Surf.Sci.* **207**, (1989)401
- [81] M.Guillopé and B.Legrand, *Surf.Sci.* **215**, (1989)577
- [82] P.Zeppenfeld, K.Kern, R.David, G.Comsa, *Phys.Rev.Lett.* **62**, (1989)63
- [83] H.-N.Yang, T.-M.Lu and G.C.Wang, *Phys.Rev.Lett.* **62**, (1989)2148
- [84] H.-N.Yang, T.-M.Lu and G.-C.Wang, *Phys.Rev.Lett.* **63**, (1989)1621
- [85] I.K.Robinson, E.Vlieg and K.Kern, *Phys.Rev.Lett.* **63**, (1989)2578
- [86] T.Gritsch, D.Coulman, R.J.Behm and G.Ertl, *Phys.Rev.Lett.* **63**, (1989)1086
- [87] A.C.Levi and M.Touzani, *Surf.Sci.* **218**, (1989)223

- [88] D.L.Blanchard, D.F.Thomas, H.Xu and T.Engel, *Surf.Sci.* **222**, (1989)477
- [89] G.A.Held, J.L.Jordan-Sweet, P.M.Horn, A.Mak and R.J.Birgeneau, *Sol.State Comm.* **72**, (1989)37
- [90] Techn. Büro Dr.Lamprecht, Lehniger Str. 10-12, W-7031 Neuhausen, Germany
- [91] E.Vlieg, I.K.Robinson and K.Kern, *Surf.Sci.* **233**, (1990)248
- [92] E.van de Riet, H.Derks and W.Heiland, *Surf.Sci.* **234**, (1990)53
- [93] L.D.Roelofs, S.M.Foiles, M.S.Daw and M.I.Baskes, *Surf.Sci.* **234**, (1990)63
- [94] M.den Nijs, *Phys.Rev.Lett.* **64**, (1990)435
- [95] G.Jug and E.Tosatti, *Phys.Rev.B* **42**, (1990)969
- [96] J.Kohanoff, G.Jug and E.Tosatti, *J.Phys.A:Math.Gen.* **23**, (1990)5625
- [97] K.L.Murphy and C.Rottman, *Phys.Rev.B* **42**, (1990)680
- [98] NATO ASI Konferenz, 18.-29. Juni 1990, Erice Sizilien, sowie *Phase Transitions In Surface Films 2* ed. by H.Taub, G.Torzo, H.J.Lauter and S.C.Fain Jr., NATO ASI Series (Plenum, New York 1991), im speziellen das Kapitel *Surface Reconstruction, Roughening and Melting*, S.201 ff
- [99] A.Hoss and U.Romahn, Postervorstellung, NATO ASI Konferenz, 18.-29. Juni 1990, Erice Sizilien
- [100] Th.Schmidt, Diplomarbeit an der Universität Hannover (1990)
- [101] A.W.D.van der Gon, R.J.Smith, J.M.Gay, D.J.O'Connor and J.F.van der Veen, *Surf.Sci.* **227**, (1990)143
- [102] A.K.Myers-Beaghton, *Surf.Sci.* **241**, (1991)439
- [103] N.C.Bartelt, T.L.Einstein and E.D.Williams, *Surf.Sci.* **244**, (1991)149
- [104] H.-N.Yang, T.-M.Lu and G.-C.Wang, *Phys.Rev.B* **43**, (1991)4714
- [105] M.den Nijs, *Phys.Rev.Lett.* **66**, (1991)907
- [106] I.K.Robinson, E.Vlieg, H.Hornis, E.H.Conrad, *Phys.Rev.Lett.* **67**, (1991)1890
- [107] J.K.Gimzewski, R.Berndt and R.R.Schlittler, *Surf.Sci.*, **247**, (1991)327
- [108] R.Kariotis and M.G.Lagally, *Surf.Sci.* **248**, (1991)295
- [109] R.Kariotis, *Surf.Sci.* **248**, (1991)306
- [110] D.T.Keane, P.A.Bancel, J.L.Jordan-Sweet, G.A.Held, *Surf.Sci.* **250**, (1991)8
- [111] L.D.Roelofs, J.I.Martin and R.Sheth, *Surf.Sci* **250**, (1991)17

- [112] U.Romahn, H.Zimmermann, M.Nold, A.Hoss, H.Göbel and P.von Blanckenhagen, *Surf.Sci.* **251/252**, (1991)656
- [113] C.Kroll, M.Abraham and W.Göpel, *Surf.Sci.* **253**, (1991)157
- [114] H.Dosch, T.Höfer, J.Peisl and R.L.Johnson, *Euro.Phys.Lett.* **15**, (1991)527
- [115] Y.-L.He, J.-K.Zuo and G.-C.Wang, *Surf.Sci.* **254**, (1991)21
- [116] H.Zimmermann, Diplomarbeit an der Universität (TH) Karlsruhe (1991)
- [117] W.Getto, Diplomarbeit an der Universität (TH) Karlsruhe (1991)
- [118] J.Sprösser, B.Salanon and J.Lapujoulade, *Euro.Phys.Lett.*, **16**, (1991)283
- [119] A.Hoss, M.Nold, O.Meyer and P.von Blanckenhagen, im Druck bei *Phys.Rev.B*, (1992)
- [120] A.Hoss, Dissertation an der Universität (TH) Karlsruhe (1991)
- [121] M.Nold, Diplomarbeit an der Universität (TH) Karlsruhe (1991)
- [122] J.Sprösser, private Mitteilungen
- [123] L.D.Landau E.M.Lifshitz, *Statistische Physik, Teil 1*, Lehrbuch der Theoretischen Physik V, (Akademie-Verlag, Berlin 1979)
- [124] U.Romahn and P.von Blanckenhagen, C.Kroll and W.Göpel, vorbereitet zur Veröffentlichung bei *Surf.Sci*