

**Entwurf und Bau eines Manipulators
zur Probenpräparation im
Ultrahochvakuum**

und

**Lichtemissionsspektroskopie
auf Au(111)**

Sven Marten Czerwonka
Institut für Experimentelle und Angewandte Physik

Diplomarbeit

vorgelegt der
Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät
der Christian-Albrechts-Universität zu Kiel

Mai 2007

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Experimenteller Aufbau	3
2.1	Probenpräparation	3
2.1.1	Sputtern	3
2.1.2	Heizen von Proben und Spitzen	4
2.1.3	Aufbringen von Atomen und Molekülen	5
2.2	Probenanalyse	6
2.2.1	Niederenergetische Elektronenbeugung, LEED	6
2.2.2	Auger-Elektronen-Spektroskopie	7
2.2.3	Rastertunnelmikroskopie	7
2.2.4	Optische Rastertunnelmikroskopie und -spektroskopie	8
3	Manipulator	11
3.1	Generelle Überlegungen zum Design	11
3.1.1	Modellierung der Kühlung	12
3.1.2	Die Heizung	15
3.2	Umsetzung	17
3.2.1	Omni-ax-Manipulator	17
3.2.2	Manipulatorkopf	20
3.2.3	Die Probenaufnahme	21
3.2.4	Aufbau der Kühlung	23
3.2.5	Kühlkontakt	26
3.2.6	Kühlschild	27
3.3	Ergebnisse	28
3.3.1	Kühlung	28
3.3.2	Heizung	29
4	Lichtemissionsmessungen	33
4.1	Durch Rastertunnelmikroskopie induzierte Lichtemission	34
4.2	I(s)-Spektroskopie und Kontaktmessung	36
4.3	Optische Messmethoden	38
4.4	Das untersuchte System	38
4.5	Lichtemissionsspektroskopie auf Au(111)	40
4.5.1	Lichtemission bei kleinen Strömen	40

4.5.2	Untersuchung der Abschneideenergie-Anomalien	44
4.5.3	Lichtemission im Kontakt	50
5	Zusammenfassung	53
	Literaturverzeichnis	57

Abbildungsverzeichnis

2.1	Sputtern von Proben	4
2.2	Resistive Probenheizung	5
2.3	Heizung durch Elektronenbombardement	6
2.4	Niederenergetische Elektronenbeugung	7
2.5	Schematische Darstellung der Rastertunnelmikroskopie	9
2.6	Schematische Zeichnung des Aufbaus zur optischen Rastertunnelmikroskopie	9
3.1	Model der Probenkühlung	13
3.2	Modell zur Beschreibung der Kühlung der Probe am Manipulator	14
3.3	Ergebnisse der Simulationsrechnung	15
3.4	Seitenansicht des Omniax-Manipulators	18
3.5	Das Flüssigstickstoff-Kühlmodul	19
3.6	Schematische Zeichnung des Dewarhalters am Manipulator	19
3.7	Der Manipulatorkopf	20
3.8	Probenträger	21
3.9	Grundkörper des Manipulatorkopfs	22
3.10	Kühlung am Manipulatorkopf	23
3.11	Funktionsprinzip der Kühlung, Teil 1	24
3.12	Funktionsprinzip der Kühlung, Teil 2	25
3.13	Kühlkörper	26
3.14	Kühlschild	27
3.15	Temperaturverlauf des Kühlvorgangs	28
3.16	Kurzzeit-Heiztest des Manipulators	30
3.17	Kurzzeit-Heiztest des Manipulators	31
4.1	Schematisches Energiediagramm eines Tunnelübergangs zweier Metallelektroden	33
4.2	Tunnelstrom als Funktion der Barrierenbreite: Herstellung des Kontakts	37
4.3	Detektorantwort	39
4.4	Gold-Emissionsspektrum bei Spannungen zwischen -10 V und 10 V	40
4.5	Spektrum der Lichtemission zwischen $U_{\text{sample}} = 1,4\text{ V}$ und 2 V bei $I = 10\text{ nA}$	41
4.6	Emissionsspektrum von Au(111) bei Benutzung einer Goldspitze	43
4.7	Emissionsspektrum bei $U_{\text{sample}} = 1,356\text{ V}$ und $I = 10\text{ }\mu\text{A}$	44

4.8	Spannungsabhängigkeit des Emissionsspektrums: für kleine Ströme . . .	45
4.9	Spannungsabhängigkeit der Emission bei zwischen $I = 5 \mu\text{A}$ und $U_{\text{sample}} = 0,7 \text{ V} \dots 2 \text{ V}$	46
4.10	Lichtemission abhängig vom Tunnelstrom	47
4.11	Intensitätsentwicklung der Emission mit $E > eU_{\text{sample}}$ und $E \leq eU_{\text{sample}}$	48
4.12	Vergleich der Positionen der Emissionsmaxima bei $1,29 \text{ V}$ und $5 \mu\text{A}$ und $2,10 \text{ V}$ und 10 nA	49
4.13	Intensitätsentwicklung der Emission im Kontakt	50
4.14	Stromabhängigkeit der Emission im Kontakt	51

1 Einleitung

Die Untersuchung von Oberflächenstrukturen ist von großem Interesse in der Oberflächenphysik. In vielen Fällen müssen die für eine Untersuchung interessanten Strukturen erst einmal hergestellt werden. Damit man die Oberfläche untersuchen kann, muss sie strukturiert und gereinigt werden. Dies geschieht in vielen Fällen in einem Ultrahochvakuum, da die Probe dort weniger schnell verunreinigt wird. Anschliessend kann die Probe weiter untersucht werden. Elektronen- und Ionenstreuexperimente können genutzt werden, um eine Analyse der Oberflächenstruktur vorzunehmen. Diese sind jedoch nicht geeignet, um kleine Strukturen wie Verunreinigungen oder Stufen zu untersuchen. Diese lassen sich jedoch mit Rastersondenmethoden gut untersuchen.

Das Rastertunnelmikroskop, welches 1981 von Binning und Rohrer entwickelt wurde, stellt eine Methode zur direkten Untersuchung der elektronischen Struktur der Probenoberfläche mit Hilfe des quantenmechanischen Tunneleffekts zur Verfügung. Dazu bietet es die Möglichkeit, die geometrische Struktur mit atomarer Auflösung zu untersuchen. Dadurch ist im Ortsraum eine Analyse von Überstrukturen, Stufen, Verunreinigungen, aufgebrachtten Molekülen bis hin zu einzelnen Adatomen möglich.

Seit seiner Entwicklung wurden die Möglichkeiten des Rastertunnelmikroskops über das Abbilden lokaler Oberflächen erweitert. Seit 1982 wurden Methoden zur Manipulation der Oberfläche entwickelt. Bereits 1988 untersuchten Coombs *et al.* die durch Rastertunnelmikroskopie induzierte Lichtemission. Diese liefert Informationen über inelastische Tunnelvorgänge. 2005 gelang es Limot *et al.* erstmals die Stromleitung durch ein einzelnes Atom zu untersuchen, welches vorher an einer bestimmten Stelle der Oberfläche deponiert wurde.

Diese Arbeit besteht aus zwei unabhängigen Teilen, dem Entwurf und Bau eines Manipulators zur Probenpräparation im Ultrahochvakuum und der Untersuchung der Lichtemission auf Au(111).

Kapitel 2 befasst sich mit dem Aufbau des Experiments, der Probenpräparation und der Probenanalyse. Dabei wird ein Schwerpunkt auf die Präparationsschritte gelegt, die mit dem in dieser Arbeit vorgestellten Manipulator durchgeführt werden sollen.

Kapitel 3 stellt generelle Überlegungen zum Design eines Manipulators an. Die konkrete Umsetzung wird vorgestellt und charakterisiert.

Kapitel 4 stellt die Ergebnisse lichtemissionsspektroskopischer Messungen an der Au(111)-Oberfläche und Au-Adatomen auf Au(111) vor.

Kapitel 5 fasst die Eigenschaften des Manipulators und die Ergebnisse der Untersuchung der Lichtemission zusammen.

2 Experimenteller Aufbau

In diesem Kapitel wird eine kurze Beschreibung der Apparatur geliefert. Da ein Fokus dieser Arbeit auf dem Bau eines Manipulators zur Probenpräparation liegt, werden die Techniken zur Probenpräparation und -analyse hier kurz vorgestellt.

Die Apparatur besteht aus einem Drei-Kammer-Vakuumsystem. Diese besteht aus einer Schleusen-, einer Analyse- und einer Präparationskammer. In der Analysekammer befindet sich ein Badkryostat mit einem 5.8 K-Tieftemperatur-Rastertunnelmikroskop (5.8 K-TT-RTM). Mit Hilfe einer Optik können Photonen, die im Bereich zwischen Probe und Spitze entstehen, gesammelt, ausgekoppelt und extern analysiert werden. Die Eigenschaften der Optik sind in [Hoffmann (2001)] ausführlich beschrieben. Proben können mit Hilfe der Schleusenkammer ins Ultrahochvakuum (UHV) gebracht werden. In der Probenkammer werden die Proben und Spitzen für die Messung vorbereitet. In dieser Kammer kann auch eine erste Analyse der Präparation stattfinden. Für Letzteres stehen ein Auger-Elektronenspektrometer (AES) und ein kombiniertes AES/niederenergetische Elektronen-Diffraktometer (*low energy electron diffraction*, LEED) zur Verfügung. Im nächsten Abschnitt werden die Präparationsschritte ausführlicher betrachtet.

Weitere Details zum Aufbau des Experiments sind in in den Arbeiten von [Stockhausen (1999)], [Kliwer (2000)] und [Hoffmann (2001)] beschrieben.

2.1 Probenpräparation

Wenn man Proben in das UHV-System einbringt, ist ihre Oberfläche verunreinigt. Bevor man ein Probe für Messungen nutzen kann, muss sie gereinigt werden. Nachdem die Probe ins UHV eingeschleust wurde, wird sie auf einen Manipulator gesetzt. Dieser ermöglicht unter anderem das Heizen von Proben und Spitzen. Der Manipulator ermöglicht zusätzlich das präzise Positionieren der Probe innerhalb der Kammer, um z. B. Proben in die optimale Position zu bringen, um die Probe mit Atomen oder Molekülen zu bedampfen, sie zu reinigen oder sie schnell zu analysieren. Diese Rahmenbedingungen geben die Anforderungen für den im Rahmen dieser Arbeit gebauten Manipulator vor. Daher werden sie in diesem Abschnitt vorgestellt und kurz beschrieben.

2.1.1 Sputtern

Um Verunreinigungen von den Oberflächen der Proben und Spitzen zu entfernen, kann die Oberfläche durch den Beschuss mit ionisiertem Argon gereinigt werden, diesen Vorgang nennt man Sputtern. Beim Sputtern werden Atome von den oberen Probenschich-

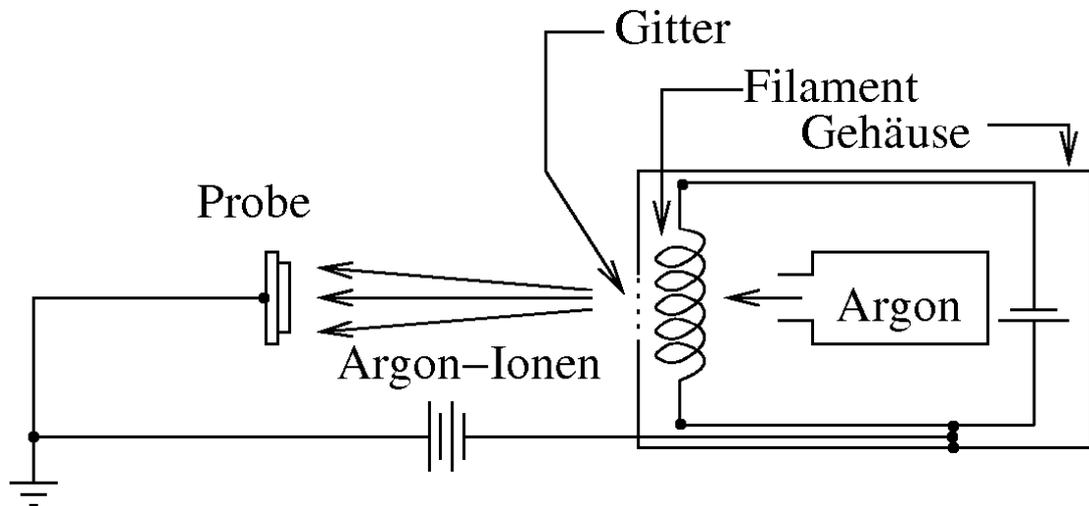


Abbildung 2.1: Sputtern von Proben: Argon-Ionen werden von einem heißen Filament ionisiert und mit einem Gitter auf die Probe beschleunigt. Die Probe wird mit den beschleunigten Argon-Ionen beschossen. Um Aufladungseffekte zu vermeiden, wird die Probe geerdet.

ten abgetragen. Das Argongas wird in die Kammer gelassen, ionisiert und mittels einer angelegten Spannung auf die Probe beschleunigt. Dies ist in Abbildung 2.1 dargestellt. Wenn die Probe von den Ionen aufgeladen wird, stößt sie die anströmenden Ionen ab. Um zu verhindern, dass sie sich auflädt, ist sie geerdet.

Bei diesem Vorgang werden Argon-Atome in die Oberfläche implantiert und große Krater an der Oberfläche hinterlassen, daher ist ein weiterer Präparationsschritt notwendig, um eine möglichst saubere, glatte, Argon-freie Oberfläche zu erreichen.

Sputtern kann auch genutzt werden, um auf einer Probe Krater definierter Tiefe zu erzeugen (vgl. z. B. Präparationsschritte zur Erzeugung monoatomar tiefer Krater (*vacancy islands*) in [Morgenstern *et al.* (1996)]).

Das Sputtern von Spitzen kann genutzt werden, um Verunreinigungen und Oxide zu entfernen. Diese entstehen beim Ätzen der Spitze und vor dem Einschleusen ins UHV [Lisowski *et al.* (1991)]. Des Weiteren wird neben der Reinigung auch noch die Spitze geschärft. Dabei erhält man eine Spitze, wie sie für die Messung im Rastertunnelmikroskop benötigt wird.

2.1.2 Heizen von Proben und Spitzen

Bei Proben und Spitzen wird das Heizen genutzt, um die Oberfläche nach dem Sputtern zu glätten oder um Verunreinigungen zu entfernen.

Beim Heizen wird der Probe soviel Energie zugeführt, dass Atome auf der Oberfläche in der Lage sind, die Diffusionsbarriere zu überwinden. Dadurch können sie sich relativ frei über die Oberfläche bewegen. Sie lagern sich an Stufenkanten an oder füllen

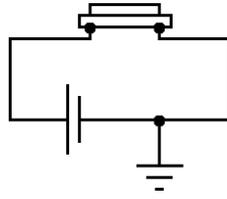


Abbildung 2.2: Resistive Probenheizung: Ein Strom wird durch die Probe geschickt. Durch ihren Eigenwiderstand kommt es zu einer Erwärmung der Probe.

Fehlstellen aus. Dadurch entsteht eine glatte Oberfläche. Bei einer ausreichend hohen Energie können einzelne Atome ausreichend viel Energie erhalten, um die Probenoberfläche zu verlassen. Durch das Heizen werden auch Argon-Atome, die beim Sputtern in die Oberfläche implantiert wurden, aus dem Probenkristall entfernt.

Mit dem Heizen der Spitze soll diese von Oxiden und Verunreinigungen befreit werden. Dafür wird die Spitze mit Hilfe von Elektronenbombardement (Abb. 2.3 b) erhitzt. Die Felddichte ist an der Spitze am höchsten, deshalb treffen die Elektronen dort bevorzugt auf. Damit findet die Heizung der Spitze an ihrer Spitze lokalisiert statt und ist besonders effektiv.

Es gibt verschiedene Methoden, die Probe zu heizen. Dies kann entweder resistiv, durch die Strahlungswärme eines Filamentes oder durch Elektronenbombardement erfolgen.

Bei resistiver Heizung (Abb. 2.2) wird der Eigenwiderstand der Probe ausgenutzt. Durch diese wird ein Strom geschickt, dabei fällt die Leistung an ihr ab und sie erwärmt sich. Diese Methode ist nur für Proben mit einem deutlich größeren Eigenwiderstand als dem Widerstand der Zuleitungen geeignet.

Das Heizen mit Strahlungswärme erfolgt, indem ein Filament nahe an der Probe zum Glühen gebracht wird. Die dabei entstehende Strahlungswärme heizt die Probe auf.

Bei Heizung mit Elektronenbombardement (Abb. 2.3 a) wird ein Filament durch resistive Heizung zum Glühen gebracht, so dass eine Temperatur erreicht wird, bei der es Elektronen emittiert. Die Elektronen werden mittels Hochspannung zur Rückseite der Probe beschleunigt. Die Elektronen deponieren ihre Energie beim Auftreffen in der Probe und heizen sie damit auf.

2.1.3 Aufbringen von Atomen und Molekülen

Es gibt verschiedene Methoden, Moleküle und Atome auf Festkörperoberflächen aufzubringen. Die verbreitetsten Präparationsmethoden von Materialien beruhen darauf, dass das Material, das aufgebracht werden soll, in die Gasphase gebracht wird und auf der Oberfläche kondensiert oder eine Verbindung mit der Oberfläche eingeht. Die eingesetzte Methode hängt von der Temperatur des Phasenübergangs des Materials und

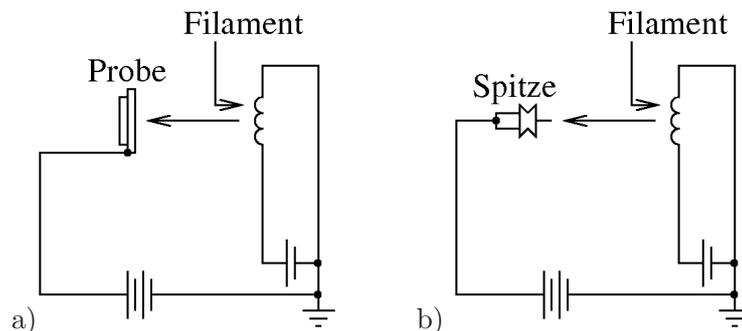


Abbildung 2.3: a) Probenheizung durch Elektronenbombardement (links), b) Spitzenheizung (rechts): Ein Filament wird erhitzt, bis es beginnt, Elektronen zu emittieren. Diese werden auf die Probe beschleunigt und deponieren dort ihre Energie. Die Spitzenheizung funktioniert analog.

der Temperatur, bei der das Molekül denaturiert, ab. Die verwendeten Geräte sind Elektronenstrahlverdampfer für hochschmelzende Materialien, Molekülverdampfer und Knudsenzellen für moderate Temperaturen ($T \lesssim 1000$ K) und Gaseinlass- oder Dosierventile für Materialien, die bei Raumtemperatur in die Gasphase übergehen. Die Wahrscheinlichkeit, dass das Molekül die Probe nicht wieder verlässt, kann durch die Wahl eines Moleküls erhöht werden, das eine chemische Bindung mit der Oberfläche eingeht oder durch Kühlen der Probe. Bei Molekülen, die degenerieren, bevor sie in die Gasphase übergehen, kann die Präparation außerhalb des Vakuums naßchemisch erfolgen [Cavalleri *et al.* (2000)].

2.2 Probenanalyse

Um zu überprüfen, ob die Probenpräparation gelungen ist, stehen an der Anlage verschiedene Analysemöglichkeiten zur Verfügung.

2.2.1 Niederenergetische Elektronenbeugung, LEED

Niederenergetische Elektronenbeugung (low energy electron diffraction, LEED) dient der Untersuchung des Kristallgitters der Probe. Bei niederenergetischer Elektronenbeugung werden die Elektronen mit einer typischen Energie zwischen 10 eV und einigen 100 eV senkrecht auf die Probenoberfläche geschossen (Abb. 2.4). Die Elektronen werden am Oberflächengitter gebeugt, sofern die Wellenlänge und der Wellenvektor der Elektronen mit jenen des Gitters korrespondieren. Die gebeugten Elektronen werden auf einem Phosphorschirm sichtbar gemacht. Das entstehende Bild zeigt das reziproke Gitter der Oberfläche.

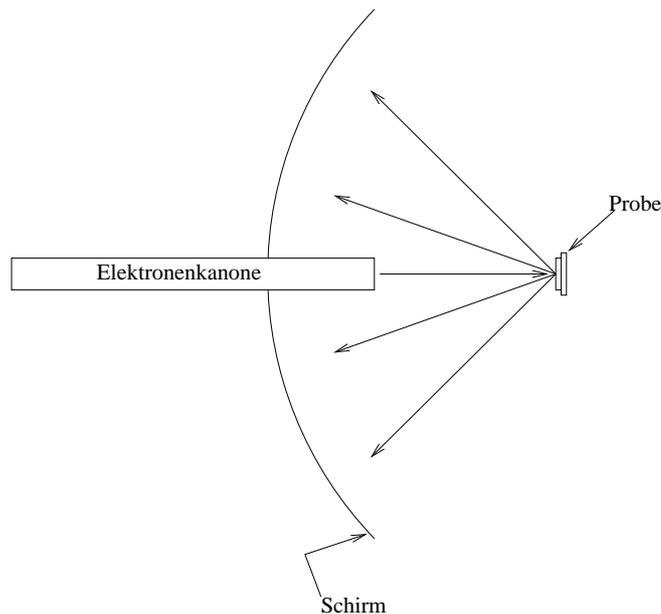


Abbildung 2.4: Niederenergetische Elektronenbeugung: Elektronen werden mit niedriger Energie auf die Proben geschossen, an der Oberfläche gebeugt und auf einen Schirm reflektiert.

2.2.2 Auger-Elektronen-Spektroskopie

Auger-Elektronen-Spektroskopie ist eine Methode zur Analyse der chemischen Zusammensetzung der Probenoberfläche. Dabei wird ein Rumpfelektron durch ein hochenergetisches Elektron aus seiner Schale geschlagen. Ein Elektron aus einer höheren Schale nimmt seinen Platz ein. Die dabei freiwerdende Energie wird auf ein weiteres Elektron übertragen. Dieses wird emittiert und detektiert. Die Energie der emittierten Sekundärelektronen weist ein charakteristisches Spektrum auf, welches den jeweiligen Elementen zugeordnet werden kann.

2.2.3 Rastertunnelmikroskopie

Das Rastertunnelmikroskop nutzt den quantenmechanischen Tunneleffekt aus, um mittels der elektronischen Struktur der Oberfläche Aussagen über die Topographie der Oberfläche zu treffen. Das erste Rastertunnelmikroskop wurde 1982 von Binnig, Rohrer, Gerber und Weibel entwickelt und ist in [Binnig *et al.* (1982a)] beschrieben. Tersoff und Hamann lieferten 1985 eine Theorie zur Deutung der gewonnenen Messdaten [Tersoff and Hamann (1985)]. Die konkrete Bauweise des in dieser Arbeit verwendeten RTMs ist in [Stockhausen (1999)] dargestellt.

Da ein Schwerpunkt dieser Diplomarbeit auf der Konstruktion des Manipulators zur

Probenpräparation liegt, wird die Funktionsweise des STMs in dieser Arbeit nur soweit vorgestellt, wie es notwendig ist, um die Messungen in Kapitel 4 zu erklären. Im RTM wird eine Spitze über die zu untersuchende Oberfläche bewegt (Abb. 2.5). Die Position der Spitze kann picometergenau gesteuert werden. Zwischen Spitze und Probe wird eine Spannung U_{sample} angelegt, ein Tunnelstrom I_{tunnel} zwischen Spitze und Probe tritt auf. Der Tunnelstrom weist eine exponentielle Abhängigkeit vom Spitze-Probe-Abstand auf. Die Details dieser Abhängigkeit werden in Abschnitt 4.2 diskutiert.

Wird beim Verfahren der Spitze über die Probe der Tunnelstrom mit einer Regelschleife auf einem konstanten Wert gehalten, indem der Abstand zur Probe und Spitze nachgeregelt wird, so lässt sich aus der Nachregelinformation die Topographie der Oberfläche gewinnen.

2.2.4 Optische Rastertunnelmikroskopie und -spektroskopie

Das Rastertunnelmikroskop kann als Quelle für Photonen genutzt werden. Diese werden lokalisiert in der Region zwischen Spitze und Probe emittiert. Das Licht wird mit einer Linse gesammelt, aus dem Vakuum ausgekoppelt, mit einer weiteren Linse auf einen Lichtleiter fokussiert und durch diese in ein Gitterspektrometer geleitet. Dort wird es dann wellenlängenaufgelöst von einer CCD-Kamera detektiert. Dieser Aufbau der Optik ist in Abbildung 2.6 dargestellt. Um kürzere Messzeiten zu ermöglichen, können das Gitterspektrometer und die CCD-Kamera durch Filter und einen Photomultiplier ersetzt werden.

Details zum konkreten Aufbau der Optik sind in der Doktorarbeit von Gernar Hoffmann [Hoffmann (2001)] beschrieben. Aufgrund der endlichen Ausdehnung der Linse kann nur ein Anteil von $\approx 9\%$ (bezogen auf 2π) des gesamten emittierten Lichts aufgefangen werden. Weitere Verluste entstehen im Lichtleiter, im Spektrometer und im Detektor.

Alle in Kapitel 4 gezeigten Messungen sind um die Sammelverluste und die Transmissionsverluste im Lichtleiter korrigiert.

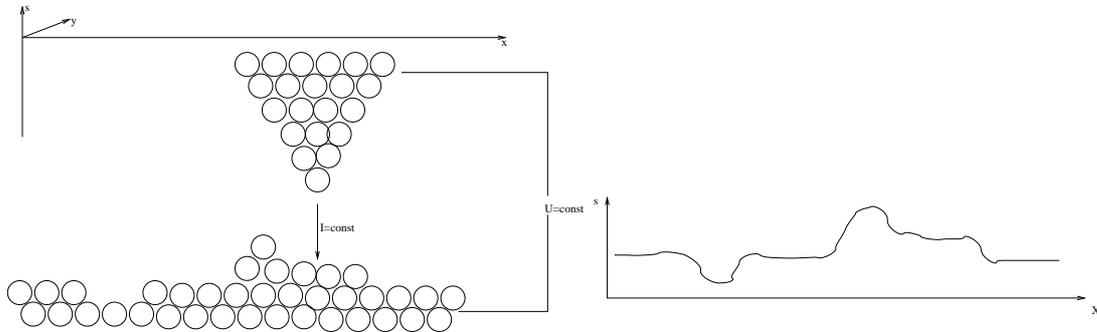


Abbildung 2.5: Schematische Darstellung der Rastertunnelmikroskopie: Beim RTM wird eine Spitze über eine Probenoberfläche bewegt. Eingezeichnet ist die Spitze, die über die Oberfläche bewegt wird und von der aus ein Strom zur Oberfläche fließt. Die Spitze wird nun in x-Richtung bewegt, wird der Strom durch eine Regelschleife konstant gehalten, indem die s-Position nachgeregelt wird. Das Regelsignal ist in der rechten Bildhälfte dargestellt. Mit dieser Methode kann die Topographie der Oberfläche gewonnen werden.

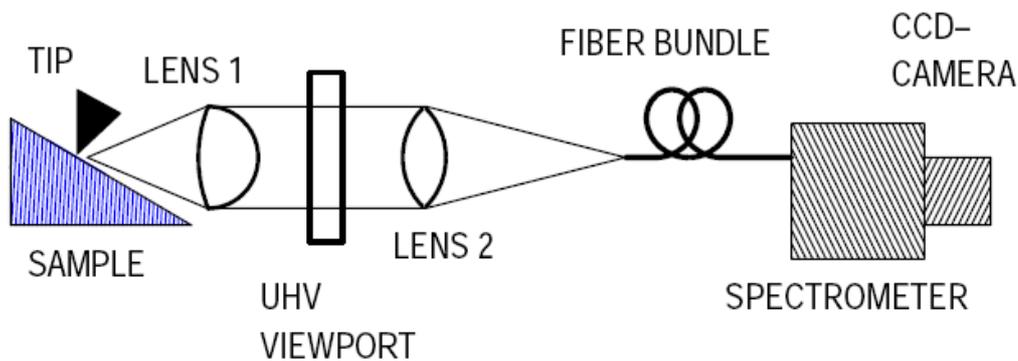


Abbildung 2.6: Schematische Zeichnung des Aufbaus zur optischen Rastertunnelmikroskopie: Licht aus der Region zwischen Spitze und Probe wird mit zwei Linsen gesammelt und mit einer Glasfaser in ein Spektrometer geleitet. Die Photonen werden hinter dem Spektrometer von einer CCD-Kamera wellenlängenaufgelöst detektiert (aus [Hoffmann (2001)]).

3 Manipulator

In diesem Kapitel wird das Design des in dieser Arbeit gebauten Manipulators ausführlich behandelt. Dabei werden die Anforderungen, die an den Manipulator gestellt werden, in Abschnitt 3.1 kurz zusammengefasst und ein Modell zum thermischen Verhalten des Manipulators vorgestellt. Außerdem werden prinzipielle Probleme benannt, die unabhängig von der konkreten Umsetzung auftreten, wenn alle diese Anforderungen erfüllt werden sollen.

Abschnitt 3.2 behandelt die konkrete Umsetzung des Manipulators. Dabei werden die Einzelkomponenten des Systems genauer vorgestellt.

Abschnitt 3.3 befasst sich mit der Charakterisierung der Eigenschaften des Manipulators und fasst die wichtigsten Kenndaten des Manipulators noch einmal zusammen.

3.1 Generelle Überlegungen zum Design

Die im Abschnitt 2.1 beschriebenen Präparationsmethoden sind auch mit dem alten Manipulator durchzuführen, jedoch bestehen dabei einige Einschränkungen, die bei der Konstruktion des neuen Manipulators vermieden werden sollen.

So besitzt der alte Manipulator keine Möglichkeit, Proben zu kühlen. Daher lassen sich Präparationen, die eine Kühlung erfordern, nicht durchführen. Auch lassen sich Proben nicht auf Temperaturen oberhalb von 1200 K erwärmen. Zudem ist das Potential, das zwischen Proben und Filamenten angelegt werden kann, durch den zu geringen Abstand zwischen Probe und Filament begrenzt, so dass z. B. bei der Spitzenpräparation nur Spannungen unter 1300 V angelegt werden können. Ferner ist eine der Forken einseitig geerdet.

Die Anforderungen, die an den neuen Manipulator gestellt werden, sind hier noch einmal kurz aufgeführt:

- Aufnehmen von Proben, Spitzen und Filamenten
- Kühlen der Proben auf ≈ 150 K
- Heizen von Proben auf > 2000 K
- Anlegen von beliebigen Spannungen zwischen -2000 V und 2000 V an Proben und Filamente
- Präzises Positionieren

3.1.1 Modellierung der Kühlung

Die Möglichkeit, die Probe zu kühlen, ist in vielfacher Hinsicht interessant. Bei der Kühlung wird dem Probensystem Energie entzogen. Dadurch verringert sich die Wahrscheinlichkeit, dass Atome ihre Position an der Oberfläche verändern. Dies geschieht typischerweise durch Diffusion. Diffusion ist ein statistischer Prozess, bei dem ein Atom mit einer Frequenz von ν von $\nu = \nu_0 \exp\left(\frac{E_D}{k_B T}\right)$ seine Position ändert, wobei ν_0 typischerweise in der Größenordnung der Phononenfrequenz liegt und E_D die Höhe der Diffusionsbarriere ist. Ob ein Diffusionsereignis auftritt, hängt also stark von der Temperatur des Systems ab. Durch Kühlen ist es möglich, einen einmal erhaltenen Zustand der Oberfläche für längere Zeit zu stabilisieren. Zudem kann durch Kühlen auch die Wahrscheinlichkeit erhöht werden, dass ein auftreffendes Molekül auf der Probe haften bleibt. Zudem werden verschiedene Konfigurationen bei der Präparation erst durch Bedampfen bei niedrigen Temperaturen ermöglicht. Als Beispiel sei hier z.B. das Wachstum von Kobalt auf Gold erwähnt [Repain *et al.* (2002)]. Bei diesem System kann die Größe von Kobalt-Clustern durch die Temperatur bestimmt werden.

Modellierung der Kühlung durch Wärmetransport

Bei dem neu konstruierten Manipulator erfolgt die Kühlung durch Ankopplung der Probe an einen Stickstoffverdampfer. Die Wärmeenergie der Probe wird über eine wärmeleitende Verbindung zwischen Probe und Stickstoffverdampfer dem Verdampfer zugeführt.

Zur Abschätzung der Kühlleistung werden die Probe und der Stickstoffverdampfer als zwei Reservoirs beschrieben, die durch ein Material verbunden sind (Abb. 3.1). Die Verbindung zwischen den Reservoirs wird durch ihre Eigenschaften spezifische Wärmekapazität c_p , Querschnittsfläche A , die Länge l der Verbindung zwischen den Reservoirs, Wärmeleitfähigkeit λ und dem molaren Volumen V_{mol} des Materials charakterisiert.

Der Wärmetransport dieses Systems wird durch die Wärmetransportgleichung

$$\frac{dT}{dt} - \frac{\lambda}{c} \frac{d^2 T}{dx^2} = Q \quad (3.1)$$

beschrieben [Swartz (1998)], wobei Q die dem System zugeführte Wärme pro Einheitszelle und $c = c_p/V_{mol}$ ist. Als Startwert wird

$$T(x, t = 0) = T_0 + T_1 \sin\left(\frac{\pi x}{2l}\right) \quad (3.2)$$

mit den Randbedingungen $T(0, t) = T_0$ und $\frac{dT}{dx}(l, t) = 0$ verwendet. Ferner wird angenommen, dass dem System keine weitere Wärme von außen zugeführt wird ($Q = 0$). Damit wird Gleichung 3.1 durch

$$T(x, t) = (T(x, t = 0) - T_0) \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right) + T_0 \quad (3.3)$$

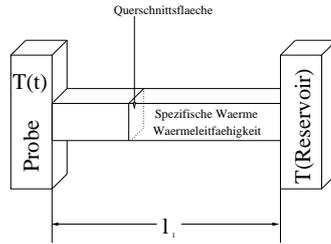


Abbildung 3.1: Modell der Kühlung einer Probe: Ein Kühlreservoir ist mit einer Probe verbunden. Die Verbindung wird dabei durch geometrische und materialspezifische Eigenschaften beschrieben und bestimmt das Wärmetransportverhalten zwischen Probe und Kühlreservoir.

gelöst, τ ist dabei die Zeitkonstante des Systems, T_0 die Stickstoffreservoirtemperatur. Die Zeitkonstante hat die Form

$$\tau = \left(\frac{2}{\pi}\right)^2 \frac{c \cdot l^2}{\lambda}. \quad (3.4)$$

In einer realen Verbindung ist die Wärmekapazität nicht gleichmäßig über die Verbindung verteilt, zudem ist die Wärmeleitfähigkeit in realen Systemen durch die Ankopplung der Reservoirs an die Verbindung zur Probe begrenzt. In realen Systemen bietet es sich an die Zeitkonstante zu groß anzunehmen und z. B. $\tau = \frac{1}{(2\lambda)} c \cdot l^2$ zu setzen.

Zur Abschätzung der erreichbaren Temperatur an der Probe wird das Modell leicht erweitert; die Erweiterung ist in Abbildung 3.2 dargestellt. Dabei wird angenommen, dass sich die Probe zwischen einem Reservoir bei 77 K und einem bei 300 K befindet. Dabei werden die Verbindungen durch ihre Zeitkonstanten $\tau_1(l_1, c_1, \lambda_1)$ und $\tau_2(l_2, c_2, \lambda_2)$ charakterisiert. Das zweite Reservoir am Manipulator wird durch den Grundkörper des Manipulatorkopfs gebildet. Dieser weist eine recht kleinflächige Anbindung an die Umgebung auf. Daher wird im späteren Betrieb des Manipulators die Temperatur des Grundkörpers beim Einsatz der Kühlung langsam fallen. Dies wird im Modell berücksichtigt, indem die Temperatur des zweiten Reservoirs langsam fällt.

Die Berechnung dieses Modells ergibt nach ≈ 600 s eine Temperaturänderung pro Minute von $\Delta T(60 \text{ s}) \lesssim 1$ K. Dabei wird der Abstand zwischen Probe und den Reservoirs als äquidistant und der Gesamtabstand $l_1 + l_2$ kleiner als 30 mm gewählt.

Zur Bestimmung einer sinnvollen Länge wurde vor Beginn der Konstruktion die erreichbare Temperatur dieses Modells für $t = 900$ s für verschiedene Längen l_1 und l_2 abgeschätzt. Bei einer Gesamtlänge $l_1 + l_2$ variiert die Temperatur für verschiedene Verbindungslängen l_1 und l_2 zwischen 150 K und 144 K. Die Entwicklung der Temperatur in Abhängigkeit von der Verbindungslänge ist in Abbildung 3.3 dargestellt. Eine Temperatur in diesem Bereich erschien sinnvoll. Eine Verbindungslänge l_1 von 3 cm (halb Edelstahl, halb OFHC-Kupfer) zum Reservoir auf Raumtemperatur und $l_2 = 8$ cm (aus OFHC-Kupfer) zum Reservoir bei 77 K erschienen am Manipulatorkopf

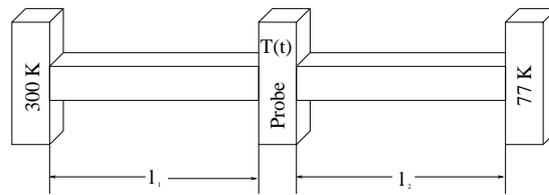


Abbildung 3.2: Modell zur Beschreibung der Kühlung der Probe am Manipulator: Die Probe befindet sich zwischen zwei Reservoiren bei fester Temperatur, die Verbindungen zwischen den Reservoiren weisen jeweils eigene Materialeigenschaften auf.

umsetzbar. Daher wurden diese Längen des Kühlkontakts als Basis der Kühlkonstruktion gewählt.

Problemquellen bei der Kühlung

Die Herstellung eines guten thermischen Kontaktes zwischen Probe und Kühlkörper ist von großer Bedeutung für eine erfolgreiche Kühlung der Probe. Der Kontakt zwischen Kühlkörper und Probe stellt einen der größten Begrenzungsfaktoren für die Kühlung des Systems dar. Die Wärmeleitung zwischen Probe und Kühlkontakt wird von der Rauigkeit der Kontaktfläche und dem Anpressdruck bestimmt. Daher muss in der Praxis ein möglichst hoher Anpressdruck hergestellt werden. Der Einsatz von gut wärmeleitenden, weichen Materialien (wie z. B. Indium zum Ausgleich der Oberflächenrauigkeit) verbietet sich, da diese die Probe kontaminieren könnten.

Zudem muss sichergestellt werden, dass die Heizung (sowohl in der maximal erreichbaren Temperatur als auch in der Heizdauer) nicht durch die Kühlung beeinträchtigt wird. Bei zu hohen Temperaturen besteht die Gefahr, die Kühlkörper zu beschädigen, da die Schmelztemperatur der zur Kühlung verwendeten Materialien überstiegen wird. Aufgrund seiner guten Wärmeleitfähigkeit wird eine Kühlung typischerweise aus sauerstofffreiem, hochleitfähigem Kupfer (*oxygen free high conductivity Copper*, OFHC-Cu) gebaut. Der Schmelzpunkt von Kupfer liegt bei 1356,6 K. Die Temperatur der Kupfer Teile darf diese Temperatur also nicht überschreiten. Die Verwendung hochschmelzender Materialien ist aber problematisch, da die Wärmeleitfähigkeit deutlich unter der von Kupfer liegt.

Beim Design des Manipulators wurde die Entscheidung getroffen, die Heizung nur unabhängig von der Kühlung betreiben zu können. Eine gemeinsame Heizung und Kühlung wurde angedacht und wieder verworfen, da sich dadurch sowohl die erreichbare Minimaltemperatur als auch die Heizdauer dramatisch verschlechtern würden.

Trotzdem soll es möglich sein, eine Probe von hohen Temperaturen schnell auf Temperaturen unterhalb der Raumtemperatur herunterzukühlen. Dabei darf der Kühlkörper nicht über seine Schmelztemperatur erhitzt werden. Um das zu verhindern, wird ein kleiner, hochschmelzender Kontaktbereich genutzt. Aufgrund seiner Größe schränkt er trotz schlechterer Leitfähigkeit die Endtemperatur nur minimal ein.

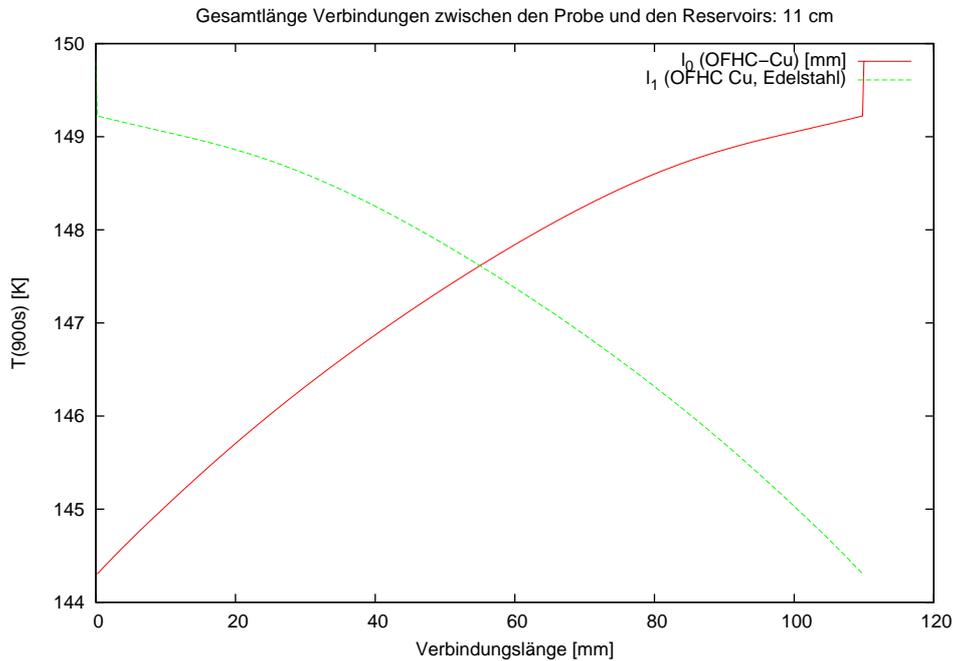


Abbildung 3.3: Ergebnisse der Simulationsrechnung: Dargestellt ist die Temperatur des vorgestellten Modells, die sich nach 15 min einstellt in Abhängigkeit von der Verbindungslänge.

3.1.2 Die Heizung

Die Heizung der Probe auf dem Manipulator erfolgt entweder durch Elektronenbombardement oder resistiver Heizung, wie in Abschnitt 2.1.2 beschrieben. Beide Methoden sind prinzipiell zur Probenreinigung geeignet. Resistive Heizung kann für gut leitende Proben nicht genutzt werden, da kaum Leistung an der Probe abfällt.

Bei Heizung mit Elektronenbombardement ist der Stromfluss zwischen Filament und Probe relativ gering, die Heizleistung wird maßgeblich über die Spannung zwischen ihnen bestimmt. Da dabei Hochspannung zwischen Probe und Filament angelegt wird, muss ein Überschlag zwischen der Probe und dem Gehäuse des Manipulators verhindert werden. Dies wird durch genügenden Abstand zwischen Probe, Filament und umgebenden Gerätschaften sichergestellt. Wenn Bauteile am Manipulator auf Hochspannung liegen sollen, werden die betreffenden Teile mit Keramiken gegeneinander und gegen ihre Umgebung isoliert.

Beim Heizen auf hohe Temperaturen (hier $\gg 1000$ K) können Stahl oder Kupfer nicht mehr verwendet werden, da Temperaturen erreicht werden, die die Schmelzpunkte der Materialien erreichen oder übersteigen. Dieses Problem lässt sich durch die Verwendung von hochschmelzenden Materialien lösen.

Die in Frage kommenden Materialien sind Molybdän, Tantal, Wolfram, Rhenium und Niob. Rhenium ist ein sehr seltenes Material, Niob ist sehr reaktiv, deshalb wur-

Material	Schmelzpunkt [K]	Wärmeleitfähigkeit [$\text{Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$]
W	3410	174
Ta	2996	57,5
Mo	2610	138

Tabelle 3.1: Materialeigenschaften hochschmelzender Materialien: Schmelzpunkte und thermische Leitfähigkeiten bei 300 K

den sie für die Konstruktion nicht betrachtet. Wolfram weist eine sehr hohe Härte auf, versprödet bei hohen und sehr tiefen Temperaturen und ist somit für mechanisch belastete Teile einer Konstruktion schlechter geeignet. Tantal hingegen ist ein sehr leicht verformbares Metall, das schlecht maschinell mit hoher Präzision bearbeitbar ist. Molybdän hat den niedrigsten Schmelzpunkt der Materialien (vgl. Tabelle 3.1), ist aber gut maschinell bearbeitbar.

3.2 Umsetzung

Als Basis für den gebauten Manipulator diente ein kommerzieller Drei-Achsen-Manipulator, der Manipulatorkopf ist im Rahmen dieser Arbeit gebaut worden.

3.2.1 Omniax-Manipulator

Der in dieser Arbeit beschriebene Manipulator basiert auf dem Omniax-Manipulator der Firma VG Scienta und einem Selbstbau-Manipulatorkopf.

Bei dem Omniax-Manipulator (Abb. 3.4) handelt es sich um einen Manipulator mit vier Freiheitsgraden (x, y, z und Rotation). Der Manipulator hat einen z -Hub von 400 mm und eine x, y -Verfahrweg von ± 25 mm um sein Zentrum. Damit ein schnelles Verfahren des Manipulators möglich ist, ist ein Schrittmotor an der Motorhalterung des Manipulators befestigt. Die Ansteuerungselektronik des Motors wurde von Jörg Neubauer entwickelt und gebaut. Weiterhin ist der Omniax mit einem Flüssigstickstoff-Kühlmodul (Abb. 3.5) ausgestattet, das an die Probenkühlung des im Rahmen dieser Arbeit konstruierten Manipulatorkopfs angebunden werden muss. Zur Kühlung der Probe am Manipulator wird gasförmiger Stickstoff mit einer Kühlspirale in einem Stickstoffbad verflüssigt. Dies ist das vom Hersteller empfohlene Verfahren. Dieses Bad ist möglichst nahe an der Stickstoffdurchführung des Omniax angebracht. Der flüssige Stickstoff wird durch einen flexiblen FEP-Schlauch in die Kapillare zum Verdampfer des Manipulators geleitet. Der Flüssiggasanteil des Abgases wird in das Stickstoffbad zurückgeführt. Das Stickstoffbad ist mit einer Halterung am Manipulator befestigt (Abb. 3.6).

Kommerziell erhältlich sind drei unterschiedliche Probenmanipulationssysteme, welche alle mit dem an unserer Anlage verwendeten Probentransfersystem inkompatibel sind. Diese sind entweder für Heizen (bis 950 °C oder 1200 °C je nach Heizverfahren) oder Kühlen (bis -160 °C oder -140 °C je Modell) geeignet. Diese Probenmanipulationssysteme sind zu dem in der Apparatur vorhandenen Probentransfer- und Probenaufnamesystem inkompatibel. Daher wurde ein Selbstbau des Manipulatorkopfes nötig.

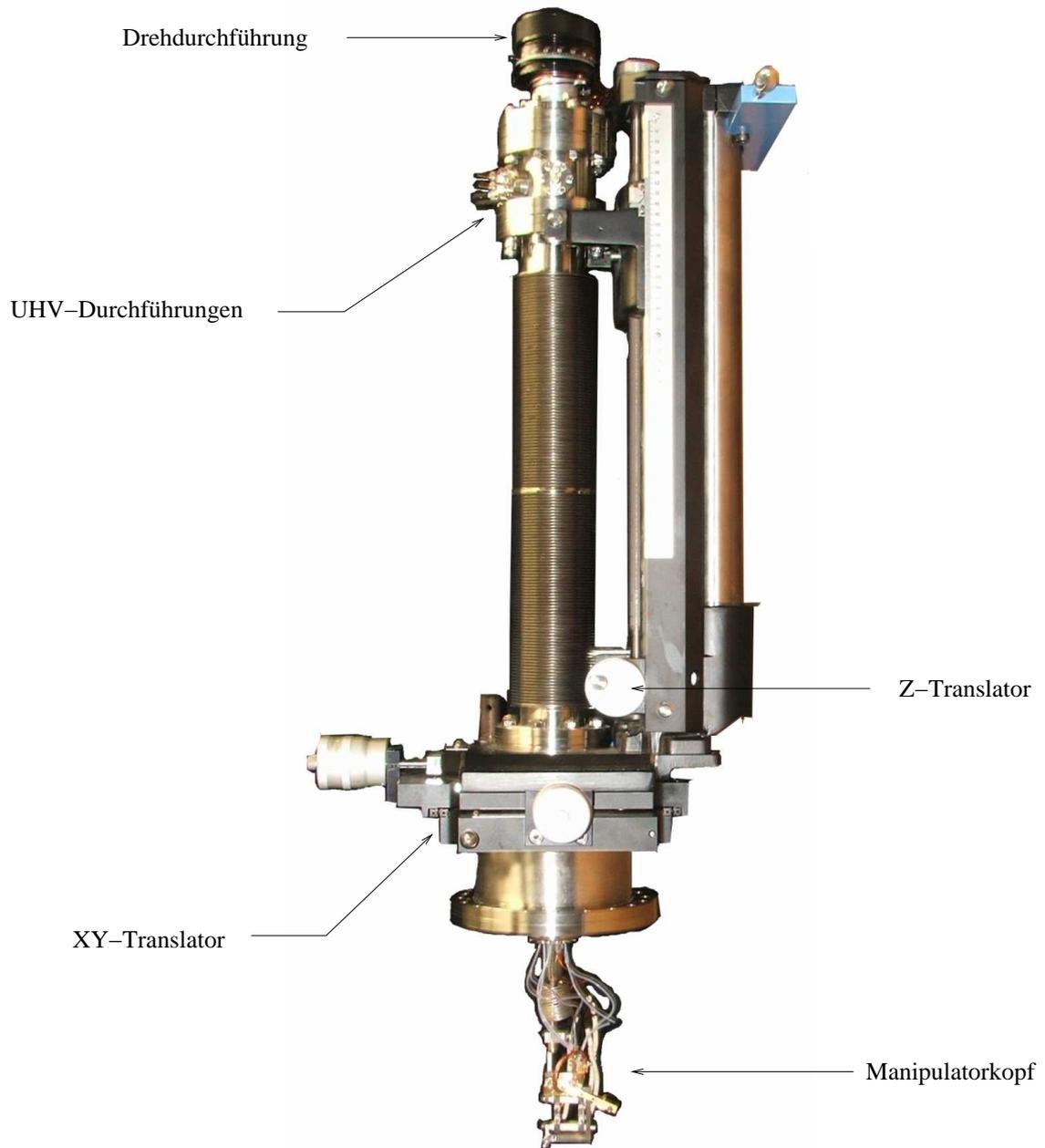


Abbildung 3.4: Seitenansicht des Omniax-Manipulators: Sichtbar sind der x,y -Translator, der z -Translator, die Drehdurchführung und der am Ende der Drehdurchführung befestigte Manipulorkopf. Nicht sichtbar ist der angeschlossene Schrittmotor.

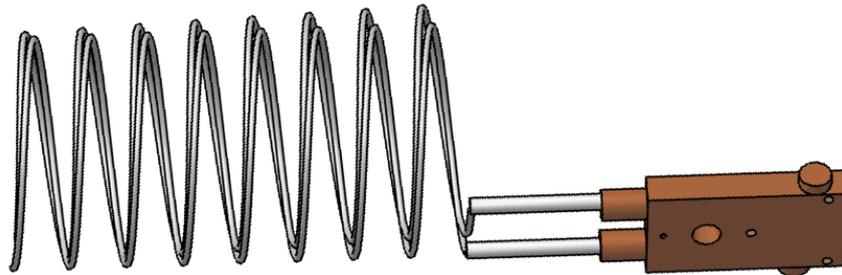


Abbildung 3.5: Das Flüssigstickstoff-Kühlmodul: Spirale aus Edelstahlkapillaren und Stickstoffverdampfer.

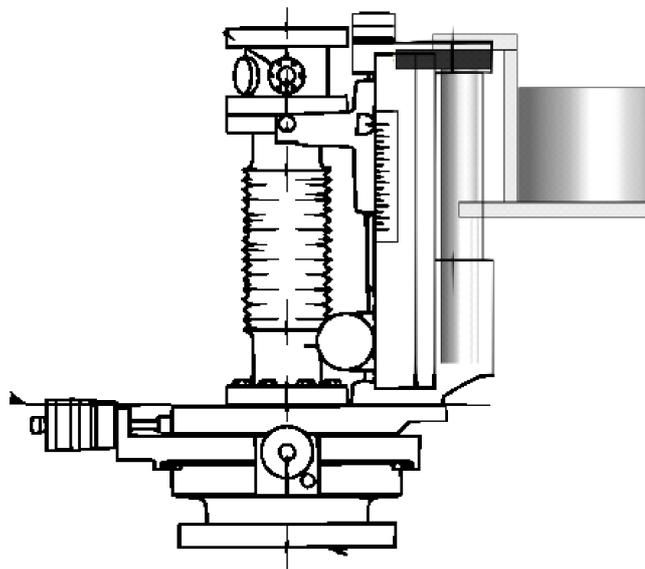


Abbildung 3.6: Schematische Zeichnung des Dewarhalters am Manipulator

3.2.2 Manipulatorkopf

Genereller Aufbau

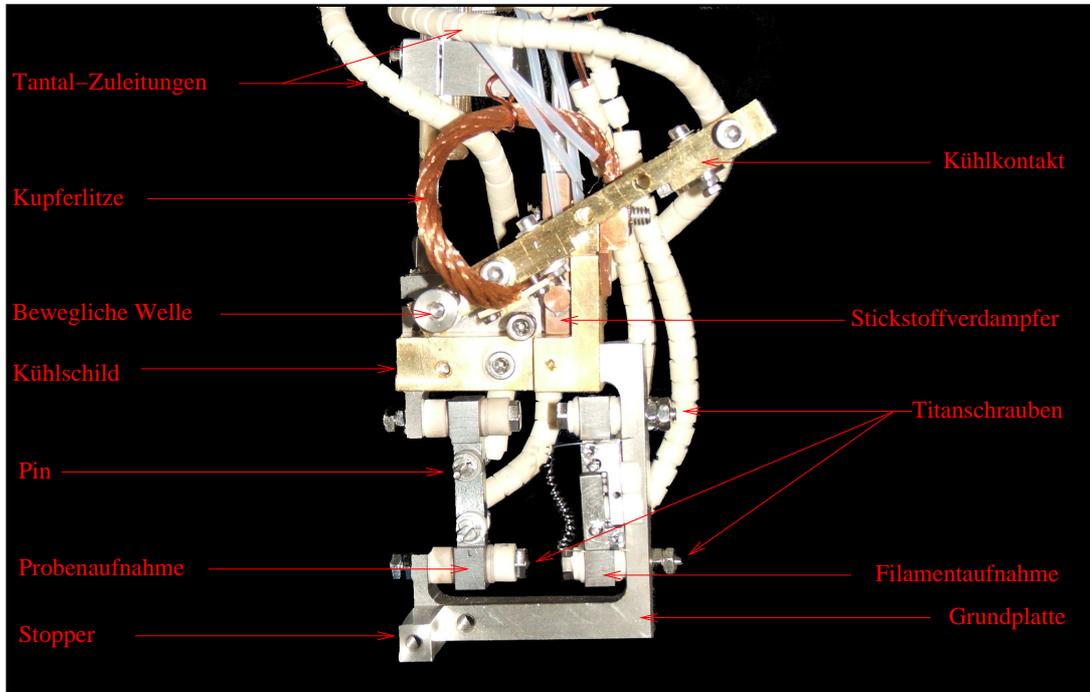


Abbildung 3.7: Abgebildet ist der im Rahmen dieser Arbeit konstruierte Manipulatorkopf. Der Kühlkontakt ist in Parkposition auf dem Kühlschild abgelegt. Das Kühlschild ist mit der Kupferlitze und dem Stickstoffverdampfer verschraubt. Der Kühlkontakt kann mit der Welle und Linearkugellagern (hier nicht sichtbar) über die Probenforke bewegt werden. Außerdem kann er mit dem Grundkörper verschraubt werden. Dardurch kann ein guter thermischer Kontakt zu der Probe hergestellt werden.

Der fertige Manipulatorkopf ist in Abbildung 3.7 dargestellt. Er verfügt über zwei Aufnahmepositionen auf die Proben, Spitzen oder Filamente aufgesteckt werden können. Zudem verfügt er über ein System zur Probenkühlung.

Der Grundkörper des Manipulatorkopfes

Der Grundkörper besteht aus der Grundplatte, einem Stopper und einem Halter aus Edelstahl. Die Grundplatte dient als Träger des Probenaufnahmesystems und der Kühlung. Sie wird am Ende der Drehdurchführung festgeklemmt. Der Stopper dient dem Schutz der Probe gegen versehentliches Überschwingen des Kühlkontakts.

3.2.3 Die Probenaufnahme

Die zu untersuchenden Proben werden im STM auf Probenträgern befestigt. Diese sind in Abbildung 3.8 abgebildet. Dabei weisen die Probenträger (Abb. 3.8) zwei Paare an

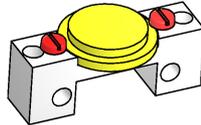


Abbildung 3.8: Probenträger: Die Probe wird auf den Probenträger geschraubt. Die Probenträger haben vier Bohrungen, die zur Aufnahme der Probe auf das Probentransfersystem dienen.

Löchern auf. Diese dienen der Übergabe der Probe von einem Gerät zum andern. Dabei wechseln sich zwischen den Übergabepunkten Forken für den kleinen und den großen Lochabstand ab. Magnetisch gekoppelte Wobblesticks dienen dazu, die Probe zwischen den verschiedenen Transfer-, Präparations- und Analysesystemen zu bewegen. Zudem ist es mit ihnen möglich, Verschraubungen vorzunehmen und rotierbare Teile, wie die Kühlschilde am Kryostaten oder den Kühlkontakt am Manipulator, zu bewegen.

Die Forken zur Aufnahme von Proben am Manipulator sind mit dem Grundkörper verschraubt (Abbildung 3.9). Es sind zwei Positionen vorgesehen, um ein Filament und Probe oder Spitze aufzunehmen.

Die Forken bestehen aus den hochschmelzenden Materialien Molybdän und Tantal. Alle Teile sind gegeneinander mit Keramiken isoliert. Dadurch können verschiedene Potentiale an Proben, Spitzen und Filamenten angelegt werden. Damit wird es möglich, Proben und Spitzen zu erden oder auf Hochspannung zu legen, Proben resistiv zu heizen und Filamentströme zu erzeugen. Da die Forken sich beim Heizen auf sehr hohe Temperaturen (> 1200 K) erwärmen, müssen die Zuleitungen aus hochschmelzendem Material bestehen. Hier wurde Tantal gewählt, da Tantal Wärme schlecht leitet und hochschmelzend ist. Damit einhergehend ist jedoch auch ein hoher Widerstand vorhanden, weshalb die Länge des Tantal Kabels kurz gehalten werden muss. Eine Länge von 12 cm stellte sich in der Praxis als guter Kompromiss zwischen Widerstand und Wärmeleitfähigkeit heraus.

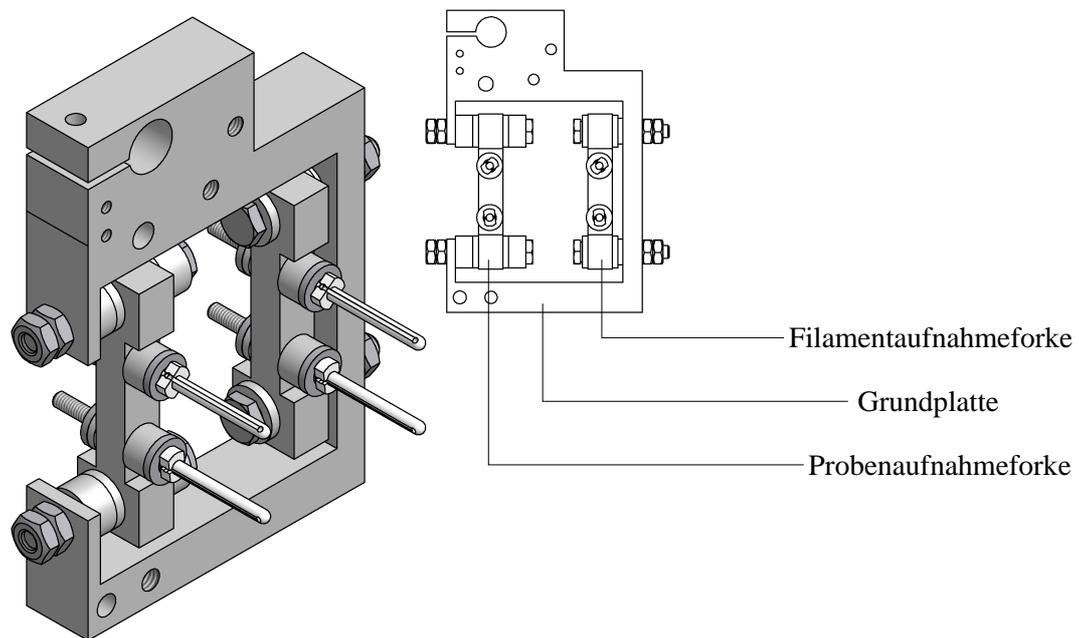


Abbildung 3.9: Grundplatte mit Proben- und Filamentaufnahmevorrichtungen: Die Vorrichtungen werden mit der Grundplatte fest verschraubt. Sie sind mit Keramiken gegen die Grundplatte isoliert.

3.2.4 Aufbau der Kühlung

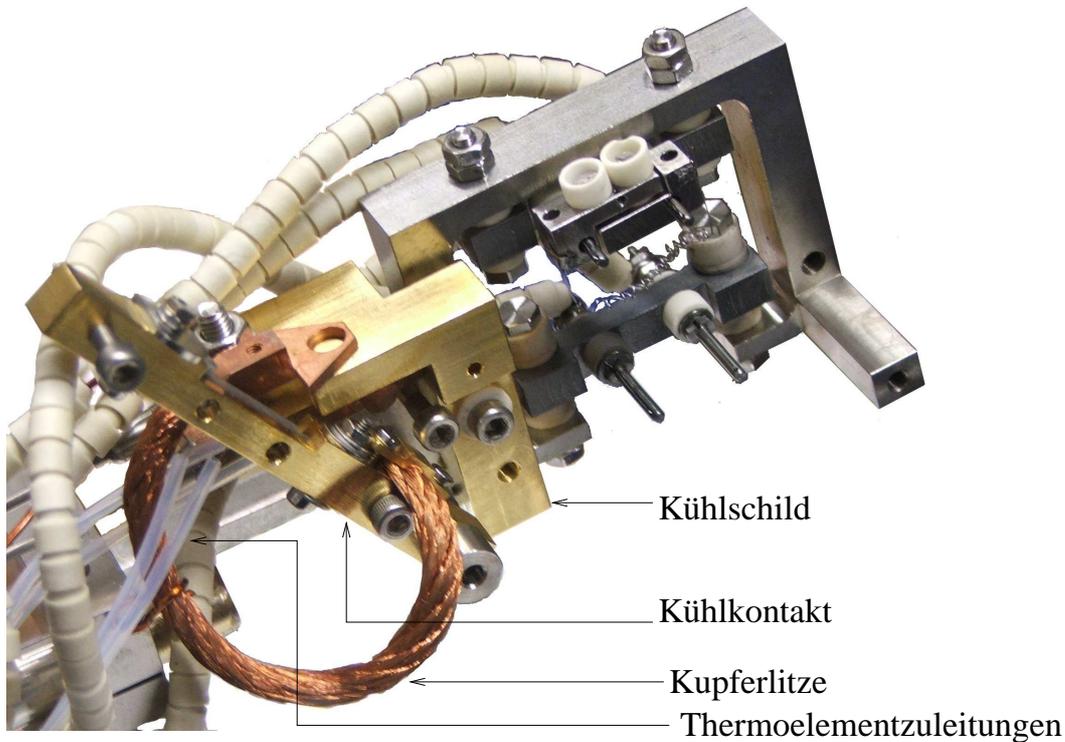


Abbildung 3.10: Kühlung am Manipulatorkopf: Diese Abbildung zeigt den Manipulatorkopf mit dem Kühlkontakt in Parkposition. Das Kühlschild ist dabei direkt mit dem Stickstoffverdampfer verbunden. An ihm ist ein Typ-K-Thermoelement befestigt, welches der Temperaturüberwachung des Manipulatorkopfes dient. Weiter abgebildet sind die Kupferlitze, die das Kühlschild mit dem Kühlkontakt verbindet, und der bewegliche Kühlkontakt. Er befindet sich in seiner Parkposition.

Die Kühlung des Manipulators ist in Abbildung 3.10 dargestellt. Ein beweglicher Kühlkontakt ermöglicht den Kontakt zwischen Probe und Kühlung herzustellen. Er ist über eine bewegliche Welle mit dem Grundkörper des Manipulators verbunden. An der der Welle gegenüberliegenden Seite kann der Kühlkontakt mit einer Edelstahlschraube mit dem Grundkörper verschraubt werden.

Zum Einsatz der Kühlung muss der Kühlkontakt auf die Probe gedrückt werden. Dafür wird der Kühlkontakt aus seiner Parkposition gezogen (Abbildung 3.11, a). Anschließend wird der Kühlkontakt mit dem Wobblestick über der Probe in Position gebracht (Abbildung 3.11, b). Der Kühlkontakt wird an die Probe gepresst (Abbildung 3.12, c), und kann in diesem Zustand mit der Grundplatte verschraubt werden (Abbildung 3.12, d).

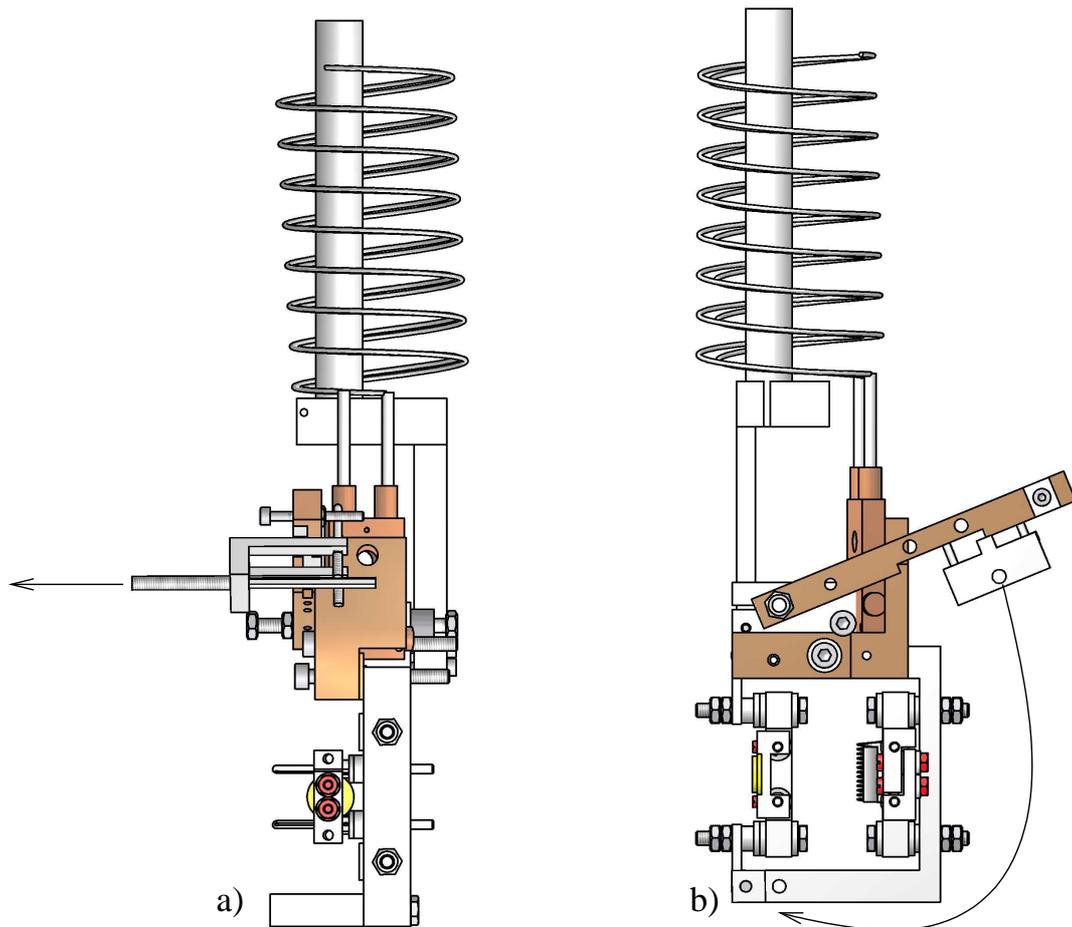


Abbildung 3.11: Funktionsprinzip der Kühlung: a) Der Kühlkontakt wird aus der Parkposition gezogen und b) über die Probenforke bewegt.

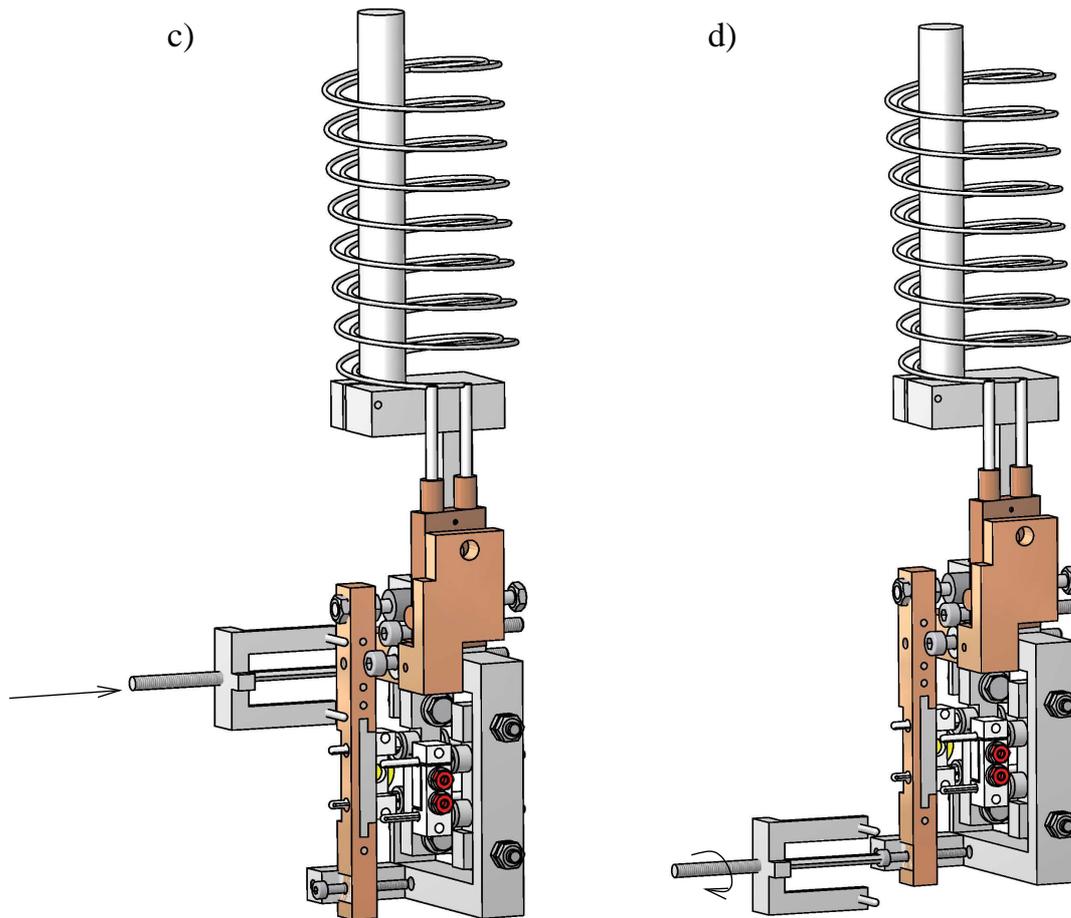


Abbildung 3.12: Funktionsprinzip der Kühlung: c) Der Kühlkontakt wird auf die Probe gepresst. d) Der Kühlkontakt wird mit dem Grundkörper des Manipulators verschraubt.

3.2.5 Kühlkontakt

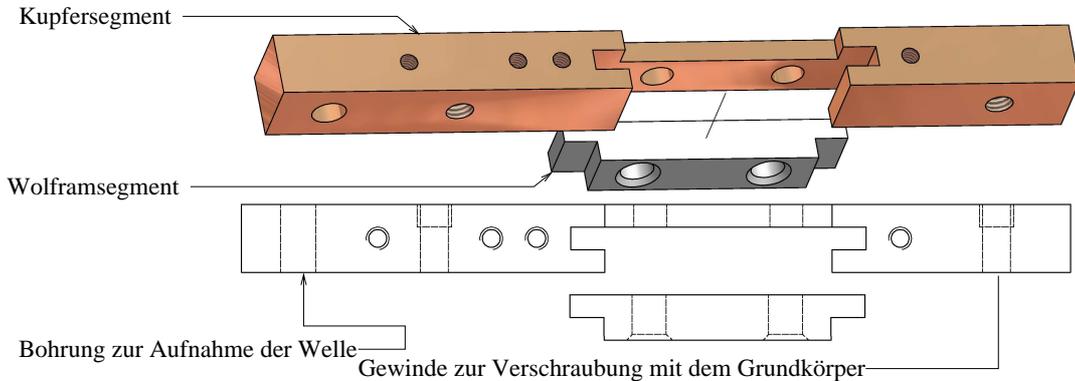


Abbildung 3.13: Kühlkörper: Abgebildet sind beide Segmente der Kühlung. Das Wolframsegment wird in das Kupfersegment eingeschoben und seitlich mit Unterlegscheiben fixiert. Im gekühlten Zustand wird es vom sich zusammenziehenden Kupfer fest umschlossen.

Der Kühlkontakt besteht aus zwei Segmenten (Abb. 3.13), die es ermöglichen, eine gute Wärmeleitfähigkeit zu erhalten und trotzdem den Kühlkörper auf eine heiße Probe aufzusetzen. Das eine Segment besteht aus vergoldetem sauerstofffreiem, hochwärmeleitfähigem Kupfer und dient dem Wärmetransport zur Probe. Desweiteren dient es als beweglicher Hebel dazu, den einfachen Zugang zur Probe zu gewährleisten. Seine Länge ist mit 73 mm so gewählt worden, dass die Gesamtlänge zwischen Stickstoffverdampfer, Probe und Grundkörper möglichst gut den Werten der Simulation in Abschnitt 3.1.1 entspricht. Im Temperaturbereich oberhalb von > 100 K steigt die thermische Leitfähigkeit linear mit dem Anpressdruck [Gmelin *et al.* (1999)]. Somit ist ein hoher Anpressdruck wichtig, wie er durch die Verschraubung des Kühlkörpers mit dem Grundkörper ermöglicht wird. Damit die Verschraubung des Kühlkörpers im gekühlten Zustand und bei Raumtemperatur funktioniert, ist das Schraubenloch in der Grundplatte um 0.2 mm erweitert worden, um der Längenkontraktion des Kupfers Rechnung zu tragen (vgl. Tabelle 3.2). Die Ankopplung an den Stickstoffverdampfer erfolgt mittels einer Kupferlitze. Diese Litze wird mit dem Kühlkontakt verschraubt und ist möglichst kurz gehalten, da ihre Wärmeleitfähigkeit etwa 30% schlechter als die des Kupfersegments aus massiven OFHC Kupfers ist.

In dem Kupfersegment ist ein Wolframsegment eingesetzt (Abb. 3.13), das so gewählt wurde, dass seine Wärmekapazität geringfügig größer ist als die eines Probenhalters aus Molybdän. Damit kann der Kühlkontakt bei einer Temperatur von 2200 K in Kontakt mit der Probe gebracht werden.

Ein guter Wärmekontakt zu dem Kupfersegment des Kühlkontakts wird dadurch hergestellt, dass das Kupfer eine deutlich stärkere Längenkontraktion aufweist als Wolfram. Die Längenkontraktion beider Materialien ist in Tabelle 3.2 dargestellt. Die Kupferteilchen ziehen sich stärker zusammen als die Wolframeinlage, wodurch der Kupferkühlkontakt

Material	80 K	100 K	150 K	200 K	250 K
Cu	30,2%	28,3%	22,2%	14,9%	7,1%
W	8,0%	7,5%	5,9%	4%	1,9%

Tabelle 3.2: Prozentuale Längenkontraktion von Wolfram und Kupfer bei tiefen Temperaturen (aus [Lide (1992–1993)])

die Wolframeinlage eng umschließt [Swartz (1998)].

3.2.6 Kühlschild

Das Kühlschild (Abb. 3.13) dient als Kontakt zwischen Kühlkontakt und Verdampfer. Der Verdampfer ist mit dem Kühlschild verschraubt. Der Stickstoffverdampfer ist über das Kühlschild am Grundkörper befestigt, das Kühlschild mit Keramikunterlegscheiben thermisch gegen den Grundkörper isoliert. Um einen guten thermischen Kontakt zum Stickstoffverdampfer herzustellen, wird Indium-Folie zwischen das Kühlschild und den Stickstoffverdampfer geklemmt. Das Kühlschild (Abb. 3.14) weist eine Ecke auf, auf der der Kühlkontakt in seiner Parkposition sicher abgelegt werden kann.

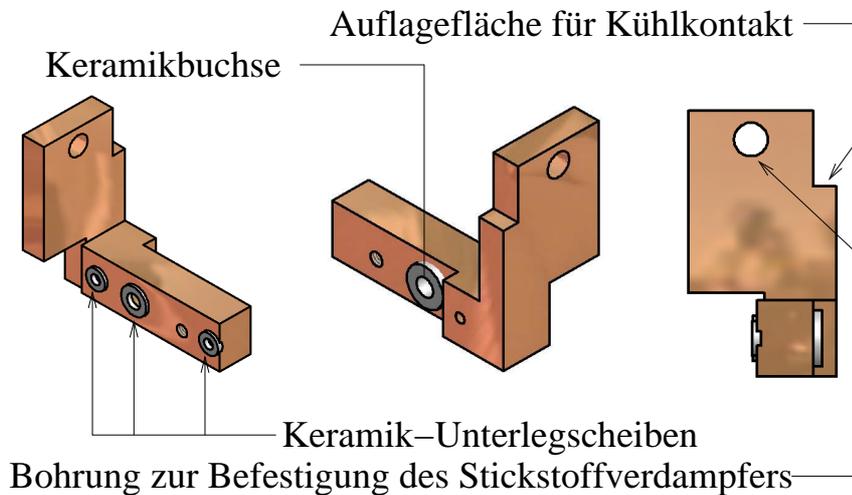


Abbildung 3.14: Kühlschild: Das Kühlschild dient der Befestigung des Stickstoffverdampfers am Grundkörper. Er ist thermisch gegen den Grundkörper isoliert. Das Kühlschild weist eine Ecke auf, auf der der Kühlkontakt in seiner Parkposition sicher abgelegt werden kann.

3.3 Ergebnisse

Um die Funktionsweise des Manipulators vor dem Anbau an die Hauptkammer zu testen, wurde er an eine kleine Testkammer angeschlossen. Gepumpt wurde die Testkammer mit einer Turbopumpe und erreichte einen Enddruck $< 2 \cdot 10^{-9}$ mbar. Die hier dargestellten Ergebnisse sind in dieser Testkammer gemessen.

3.3.1 Kühlung

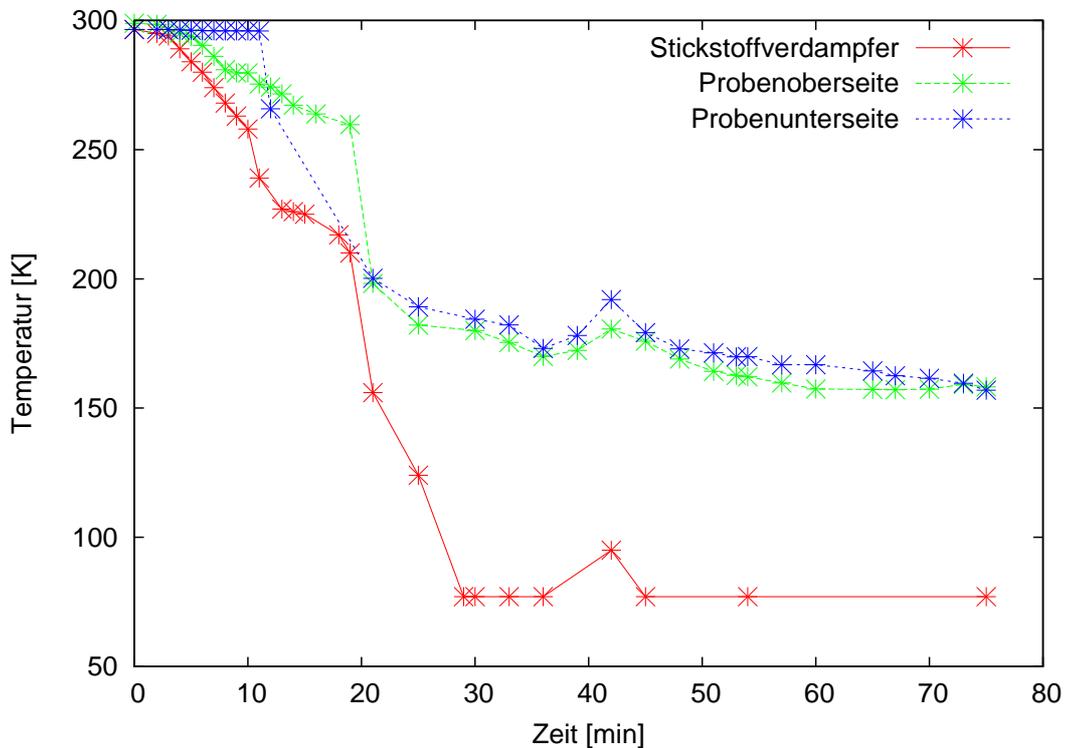


Abbildung 3.15: Temperaturverlauf eines Kühlvorgangs: Die Temperaturmessung erfolgte mit drei Typ K Thermoelementen, welche direkt am Stickstoffverdampfer, an der Grenzfläche zwischen Probe und Kühlkörper, und an der Probenunterseite angebracht waren. Die Temperaturmessung an der Probenunterseite war die ersten 19 min erratisch, deshalb wurde zu diesem Zeitpunkt das Messgerät gewechselt. Nach etwa 40 min stieg die Temperatur wieder an, da der zur Gasverflüssigung notwendige Flüssigstickstoff ausging.

Zur Kühlung sind etwa 2 l Flüssigstickstoff pro Stunde notwendig. Zur Gasverflüssigung werden ≈ 5 l Flüssigstickstoff verbraucht. Der Einkühlvorgang dauert etwa 20 min, um den Verdampfer von Raumtemperatur auf Betriebstemperatur herunterzu-

kühlen. Ein Dauerbetrieb der Kühlung bei Probentemperaturen unter 180 K ist möglich. Die minimal im Testbetrieb erreichte Temperatur lag bei 157 K.

Die Abbildung 3.15 zeigt den Temperaturverlauf eines Kühlexperiments. Während der gesamten Messung befand sich der Kühlkontakt in direktem Kontakt zur Probe.

In den ersten 15 Minuten des Kühlvorgangs fließt nur gekühlter gasförmiger Stickstoff durch die Edelstahlkapillare zum Stickstoffverdampfer. Die Temperatur am Stickstoffverdampfer sinkt geringfügig, an der Probe ist die Temperatur weitgehend stabil. Sobald ein stabiler Flüssigstickstofffluss auftritt, fällt die Temperatur des Stickstoffverdampfers deutlich schneller, bis er eine Temperatur von 77 K erreicht. Nach 28 min erreicht die Temperatur am Stickstoffverdampfer 77 K.

Während der Stickstoffverdampfer herunterkühlt, beginnt die Temperatur an der Probe zu sinken. Nach etwa 20 min unterschreitet sie 180 K und sinkt danach nur noch langsam.

Nach 40 Minuten geht der zur Gasverflüssigung genutzte Stickstoff aus, die Temperatur am Stickstoffverdampfer steigt schnell an. Auch die Temperatur der Probe steigt. Nach dem Nachfüllen des Flüssigstickstoffs fällt sie wieder langsam ab und erreicht nach 80 Minuten ihr Minimum bei 157 K. Dabei herrscht zwischen der Oberseite und der Unterseite des Probenhalters für Temperaturen unter 180 K eine Temperaturdifferenz von weniger als 10 K. Diese Differenz wurde nur in der Messung von $t = 42$ min überschritten.

3.3.2 Heizung

Die erreichbare Temperatur beim Heizen wurde mit einem Probenhalter aus Molybdän mit aufgeschwelter Tantalfolie gemessen. Im Temperaturbereich zwischen Raumtemperatur und 1000 K wurden ein Typ K Thermoelement und ein Infrarot-Pyrometer zur Messung benutzt. Für höhere Temperaturen kam ein Hochtemperatur-Infrarot-Pyrometer zum Einsatz. Dabei diente das Thermoelement als Referenz um die Emissionsrate der Probe für beide Pyrometer kalibrieren zu können. Der Überlappungsbereich der Pyrometer diente zur Absicherung der Ergebnisse. Dabei wurde nicht berücksichtigt, dass sich die Emissionsrate der Tantalfolie zu hohen Temperaturen verändert [Neuer (1971)].

Es wurden zwei Messungen der Temperatur vorgenommen. Dabei wurde eine Testmessung durchgeführt, bei der untersucht wurde, wie schnell eine bestimmte Temperatur erreicht werden kann. Dieser Test wurde für Temperaturen bis ≈ 1500 K durchgeführt. Für höhere Temperaturen war er in der Testkammer nicht durchführbar, um den maximal empfohlenen Temperaturgradienten der Fenster nicht zu überschreiten, da sich die Testkammer schnell erwärmte (bei Probentemperaturen um 700 K stieg die Temperatur der Kammer um etwa 2 – 2.5 K/min).

Die Temperaturentwicklung ist in Abbildung 3.16 dargestellt. Dabei ist die erreichte Temperatur über die elektrische Leistung aufgetragen worden. Die Temperaturmessung wurde im unteren Temperaturbereich $T < 1100$ K mit einem Typ K Thermoelement kalibriert. Die Messwerte dieser Messung sind mit einem relativ großen Fehler

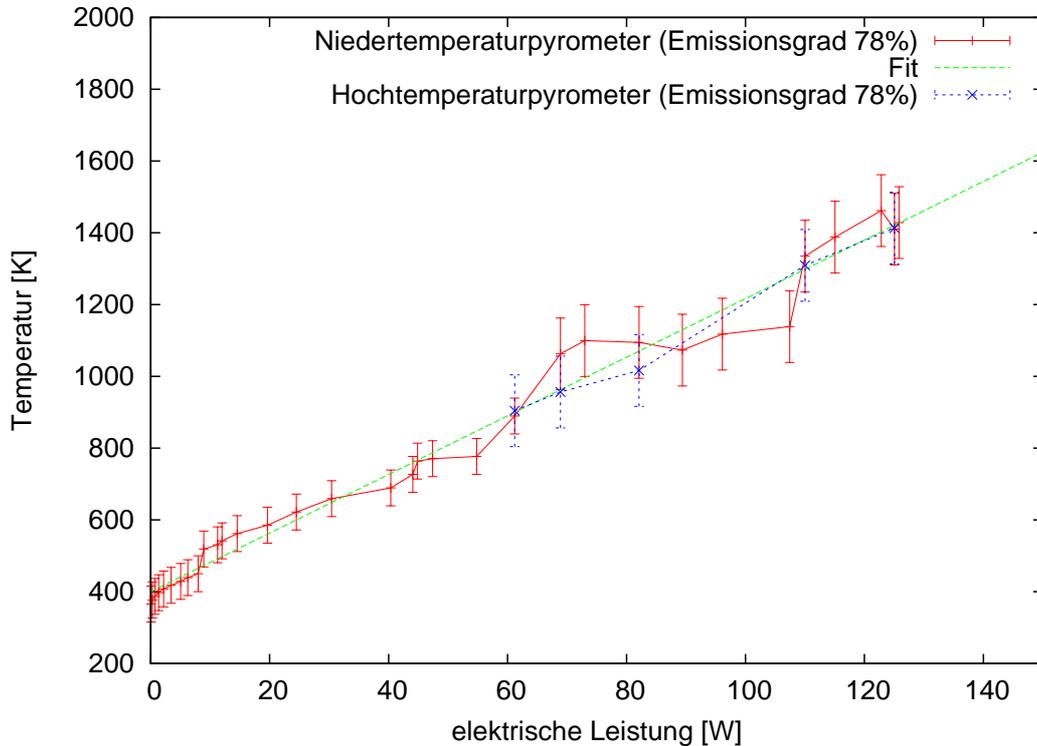


Abbildung 3.16: Test der Probenheizung: Die hier dargestellte Temperaturmessung erfolgte optisch und wurde im Temperaturbereich zwischen 300 K und 1100 K mit einem Typ K Thermoelement kalibriert. Bei Messungen der Temperaturen über 700 K befindet sich die Probe mit dem Thermoelement noch nicht im thermischen Gleichgewicht, daher ist die Messung mit einem großen Fehler behaftet. Typischerweise gewählte Heizdauer liegt bei 10 – 20 s.

behaftet, da das Erreichen der Maximaltemperatur bei einer gegebenen elektrischen Leistung relativ lange dauert (einige Minuten). Die Messungen wurden auf eine Heizdauer von 10 s–20 s begrenzt. Dabei ist das Thermoelement noch nicht zwangsläufig im thermischen Gleichgewicht mit der Probe, was den Fehler der Messung noch einmal vergrößert.

Um zu sehen, welche Temperaturen erreichbar sind, wurde ein zweiter Dauerbelastungstest durchgeführt. Dieser Test diente dazu herauszufinden, ob eine hohe Temperatur für längere Zeit aufrechterhalten werden kann, ohne die Zuleitungen zu beschädigen. Dafür wurde die Proben temperatur so langsam erhöht, dass sie der Kammer langsamer als 1 K/min stieg. Bei etwa 1500 K verändert sich die Emission des Tantal deutlich sichtbar. Es kommt zu einem schlagartigen Farbumschlag von einem Dunkelrot zu hellem Gelb. Diese Emissionsänderung wurde in diesen Messungen nicht berücksichtigt.

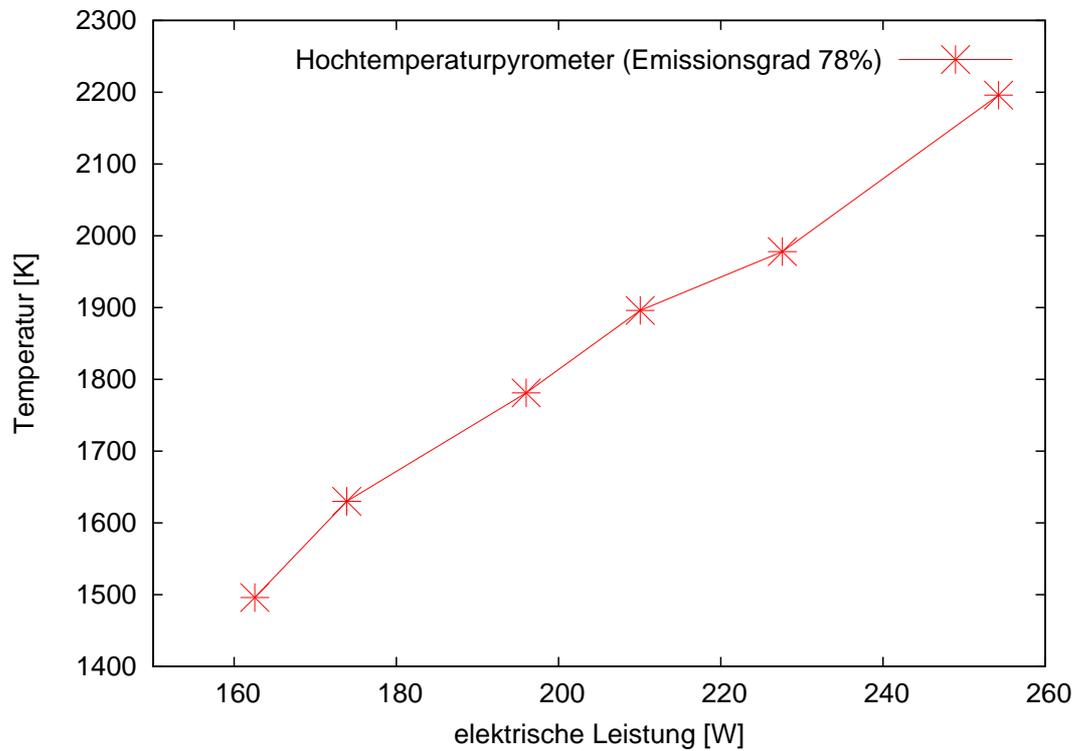


Abbildung 3.17: Test der Probenheizung: Die Temperaturmessung erfolgte mit dem Hochtemperaturpyrometer. Die Temperatur wurde langsam erhöht und bei 1800 Kelvin für 20 min stabil gehalten. Anschliessend wurde die Temperatur kurz weiter erhöht und dann langsam heruntergefahren.

In Abbildung 3.17 sind die gemessenen Temperaturen über die elektrische Heizleistung aufgetragen. Die Temperatur wird langsam bis 1800 K erhöht und dort für etwa 20 min gehalten. Anschliessend wird die der Probe zugeführte Energie weiter erhöht und die Temperatur für wenige Sekunden auf 2169 K erhöht, bevor die Heizleistung langsam heruntergeregelt wird. Eine Temperatur von 2000 K ist somit im Betrieb erreichbar.

Eine nachträgliche Untersuchung der Kabel zeigte auch am Übergang von Tantal auf Kupfer keine Anzeichen von übermäßiger Erwärmung.

4 Lichtemissionsmessungen

In diesem Kapitel werden die Ergebnisse von durch Rastertunnelmikroskopie induzierter Lichtemissionsmessung vorgestellt. Dabei wird die Lichtemission zwischen einer Goldspitze und der (111)-Oberfläche von Gold betrachtet. Diese Messungen wurden zusammen mit Dr. Guillaume Schull vorgenommen.

Bei Metall-Isolator-Metall-Tunnelkontakten (MIM-Tunnelkontakten) wurde über die Lichtemission im Tunnelkontakt erstmals 1976 in [Lambe and McCarthy (1976)] berichtet. Die beobachteten Spektren zeichnen sich durch eine scharfe Abschneideenergie bei Photonenenergien von $h\nu_{\text{cutoff}} \leq eU$ aus, dabei ist ν_{cutoff} die Abschneidefrequenz und U die Tunnelspannung. Die Abschneideenergie entspricht der größtmöglichen Energie, die ein einzelnes Elektron beim Tunneln zwischen dem höchsten besetzten Zustand des Emitters und dem niedrigsten unbesetzten Zustand des Kollektors haben kann. Die Lichtemission entsteht durch inelastisches Tunneln (IET) oder heiße Elektronen (HE), wobei das IET-Elektron zunächst ein Oberflächen Plasmon zwischen Spitze und Probe anregt, welches strahlend zerfallen kann. Dies ist in Abbildung 4.1 dargestellt [Persson and Baratoff (1992)].

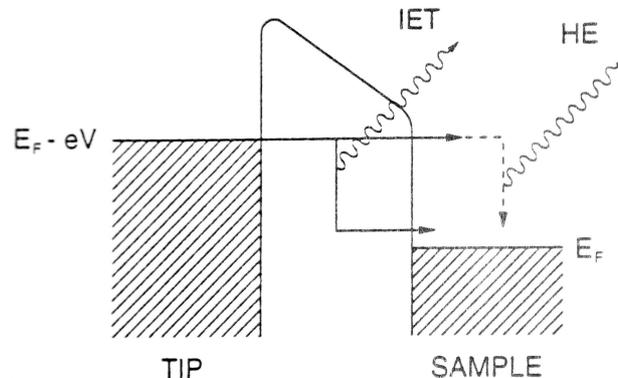


Abbildung 4.1: Schematisches Energiediagramm eines Tunnelübergangs zweier Metallelektroden: E_F stellt die Fermienergie der rechten Elektrode, V die Biasspannung der linken Elektrode und e die elektrische Ladung dar. Zwei Mechanismen für die Entstehung der Lichtemission sind abgebildet, die durchgehende Linie zeigt inelastisches Tunneln (IET), die gestrichelte Linie heiße Elektronen (HE, *hot-electron thermalisation*) (aus [Berndt (1998)]).

Das RTM kann als Quelle für Photonen genutzt werden. Erste Messungen [Coombs *et al.* (1988)] bestätigten für die durch Rastertunnelmikroskopie induzierte Lichtemission ein vergleichbares Spektrum wie bei MIM-Kontakten mit einer Abschneideenergie von $E_{\text{cutoff}} = eU_{\text{sample}}$.

Pechou *et al.* beobachteten 1998 jedoch bei einem Tunnelstrom von $I = 10 \text{ nA}$ Anomalien der Abschneideenergie der durch Rastertunnelmikroskopie induzierten Emission [Pechou *et al.* (1998)]. Dabei trat Lichtemission mit Photonen mit Energien oberhalb der Abschneideenergie auf. Diese Energieüberhöhung verschwand oberhalb einer Spannung von 2 V. Das untersuchte System im Experiment bestand aus einer Goldspitze und einer Goldprobe. In dieser Arbeit wird das Phänomen ausführlicher untersucht. Dazu wird das Verhalten der Lichtemission im Tunnelregime für verschiedene Tunnelspannungen und -ströme betrachtet.

Im Jahr 2005 zeigten Limot *et al.*, dass es mit dem RTM möglich ist, einen stabilen Ag-Adatom-Kontakt auf einer Ag(111)-Oberfläche herzustellen [Limot *et al.* (2005)]. Dabei wird ein Atom aus der Tunnelspitze auf der Oberfläche des Probenkristalls deponiert, indem die Spitze langsam der Probe angenähert wird, bis ein Kontakt auftritt. Dieser Kontakt wird mit einer Untersuchung des Stroms I in Abhängigkeit vom Abstand s , sogenannter $I(s)$ -Spektroskopie, untersucht. Die dort beschriebene Methode wird hier genutzt, um einen Au-Adatom-Kontakt auf Au(111) herzustellen und erstmals die Lichtemission eines solchen Kontakts zu untersuchen.

Die dafür erforderliche Theorie wird in den nächsten Abschnitten vorgestellt. Abschnitt 4.1 befasst sich dabei mit den Grundlagen der durch Rastertunnelmikroskopie induzierten Lichtemission. Der Abschnitt 4.2 befasst sich mit der $I(s)$ -Spektroskopie im RTM, die zur Messung der Stromabhängigkeit der Lichtspektren und zum Herstellen eines Kontakts genutzt wurde.

In den nächsten Abschnitten (Abschnitt 4.3 und Abschnitt 4.4) werden die optischen Messmethoden vorgestellt, die zur Wahl stehen, welche genutzt werden und das zur Messung genutzte System vorgestellt.

Der Abschnitt 4.5.1 verifiziert bisher gemachte Beobachtungen. Abschnitt 4.5.2 beschäftigt sich mit der Untersuchung der Anomalien in der Emission, indem diese systematisch für verschiedene Spannungen und Ströme untersucht werden.

Der darauffolgende Abschnitt beschäftigt sich mit dem Verhalten der Lichtemission in Kontaktmessungen.

4.1 Durch Rastertunnelmikroskopie induzierte Lichtemission

Beschießt man eine Metalloberfläche mit Elektronen, entsteht elektromagnetische Strahlung durch Anregung strahlender Übergänge der beschossenen Atome, Oberflächenplasmonenanregung oder Bremsstrahlung. Bei klassischen Elektronenbeschussexperimenten werden diese Effekte erst ab relativ hohen Elektronenenergien und Beschleunigungsspannungen von $|U| \gtrsim 100 \text{ V}$ beobachtet.

Im RTM tritt die Lichtemission schon bei kleinen Spannungen ($U_{\text{sample}} \lesssim 40 \text{ V}$) auf. Betrachtet man die Lichtemission des RTMs über einen weiten Spannungsbereich, so lässt sich die Lichtemission in zwei Regime einteilen, einem Tunnel-/Nahfeldregime bis 40 V und Fernfeldregime ab $\approx 100 \text{ V}$. Die Lichtemission im Fernfeldregime entspricht klassischen Elektronenbeschussesexperimenten, bei denen die Lichtemission zu kleinen Spannungen hin verschwindet [Berndt *et al.* (1991)].

Im Tunnel-/Nahfeldregime erreicht die Lichtemission ihre maximale Intensität im für RTM-Messungen typischen Spannungsbereich ($U_{\text{sample}} < 10 \text{ V}$). Die Quanteneffizienz stellt ein Maß dafür da, mit welcher Wahrscheinlichkeit ein Elektron die Emission eines Photons anregt. Die Quanteneffizienz dieses Vorgangs ist im RTM sehr hoch verglichen mit Lichtemissionsmessungen bei MIM-Kontakten. Die Quanteneffizienz ist jedoch stark systemabhängig und kann in Abhängigkeit von den Tunnelparametern um mehrere Größenordnungen schwanken. Quanteneffizienzen von bis zu $\eta = 10^{-3}$ Photonen/Elektron wurden bei Spannungen ($U_{\text{sample}} \lesssim 40 \text{ V}$) auf Ag beobachtet [Coombs *et al.* (1988), Berndt *et al.* (1991)].

Der Rahmen zur Erklärung der Lichtemission im Tunnel-/Nahfeldregime wurde durch die Arbeiten von Johanson *et al.* und Person und Baratoff geschaffen ([Person and Baratoff (1992)], [Johansson *et al.* (1990)]). Demnach werden zwischen Probe und Spitze sogenannte spitzeninduzierte Plasmonen (*tip induced plasmons*, TIP), induziert. Diese werden durch ein einzelnes Elektron angeregt und können strahlend zerfallen. Die spektrale Struktur der Lichtemission wird durch die geometrische Struktur der Spitze und Probe und ihre elektromagnetische Wechselwirkung bestimmt. Eine Beschreibung dieser Abhängigkeit wird in ([Aizpurua *et al.* (2000)], [Meguro *et al.* (2002)]) geleistet.

Die Lichtemission weist jedoch nicht für alle Systeme eine scharfe Abschneideenergie auf. Emission mit Energien oberhalb der vorhergesagten Abschneideenergie von $E = eU_{\text{sample}}$ wird im folgenden kurz als *verbotene Emission* oder Emission im *verbotenen Bereich* bezeichnet. Für Au(111) wurden von Pechou *et al.* bei einem Tunnelstrom von 10 nA Emission mit Energien oberhalb der Abschneideenergie beobachtet. Die beobachtete Energieüberhöhung zwischen dem beobachteten Licht und den injizierten Elektronen hängt von der Tunnelspannung ab. Sie nimmt mit steigender Spannung U_{sample} für Spannungen zwischen $1,65 \text{ V}$ und 2 V ab. Eine Deutung der Beobachtung wird geliefert, wobei über oberflächenverstärkte Ramanstreuung (*surface-enhanced Raman scattering* (SERS)) und thermische Strahlung spekuliert wird [Pechou *et al.* (1998)]. Downes *et al.* untersuchten das Emissionsverhalten der Lichtemission in Punktkontakten im RTM. Dabei beobachten sie Lichtemission, die mit Schwarzkörperstrahlung erklärt wird. Bei diesen Messungen wurde die Oberfläche lokal geschmolzen [Downes *et al.* (2002)].

Verbotene Emission wurde Na-Filmen auf Cu(111) beobachtet und einem Zwei-Elektronen-Prozess zugeschrieben [Hoffmann *et al.* (2003)]. Dieser Artikel nennt einen Auger-ähnlichen Prozess, der durch *quantum well*-Übergänge ermöglicht wird, und thermische Strahlung heißer Elektronen innerhalb der Tunnelbarriere als mögliche Ursache.

4.2 I(s)-Spektroskopie und Kontaktmessung

Bei $I(s)$ -Spektroskopie wird die Abhängigkeit des Tunnelstrom von der Breite der Tunnelbarriere untersucht. Diese Beziehung ist bereits in [Fowler and Nordheim (1928)] beschrieben. Für Metall-Vakuum-Metall-Übergänge wurde sie erstmals von [Young *et al.* (1971)] beschrieben.

Für kleine Ströme und kleine Tunnelbarrieren lässt sich diese Beziehung zu

$$I(s, V, \bar{\phi}) \propto \frac{V}{s} \exp\left(-A\bar{\phi}^{1/2}s\right) \quad (4.1)$$

vereinfachen. Dabei ist $A = 1,025 \text{ (eV)}^{1/2} \text{ \AA}^{-1}$, $\bar{\phi}$ die durchschnittliche Barriere zwischen den Elektroden und s die Barrierenbreite.

Aus dieser Abhängigkeit kann die Höhe der lokalen Barriere ϕ berechnet werden. Sie ergibt sich aus

$$\bar{\phi} = 0,952 \left(\frac{d(\ln I)}{ds} \right). \quad (4.2)$$

Dies stimmt gut mit der theoretischen Arbeit von Lang für eine Ein-Na-Atom-Spitze überein, bei der die lokale Barrierenbreite als Funktion der Barrierenbreite berechnet wurde [Lang (1987)].

Bei Abständen $s > 5 \text{ \AA}$ verhalten sich Spitze und Probe wie zwei unabhängige metallische Systeme. Im Bereich $s < 5 \text{ \AA}$ sind die Systeme nicht mehr voneinander unabhängig und müssen gemeinsam behandelt werden. Daher ist die effektive Barrierenhöhe $\bar{\phi}$ und von der geometrischen und elektronischen Struktur der Spitze und der Probe abhängig [Güntherodt and Wiesendanger (1994)].

Um einen Kontakt zwischen Probenoberfläche und Spitze herzustellen, wird der Abstand zwischen Probe und Spitze kontinuierlich reduziert. Dabei zeigt der Strom eine exponentielle Abhängigkeit über mehrere Größenordnungen [Binnig *et al.* (1982b)]. Wird die Spitze der Probe weiter angenähert, so tritt ein Sprung im Strom auf ($s_0 = 0 \text{ \AA}$ in Abb. 4.2). Der Ort, an dem dieser Sprung auftritt, wird als Kontaktpunkt definiert.

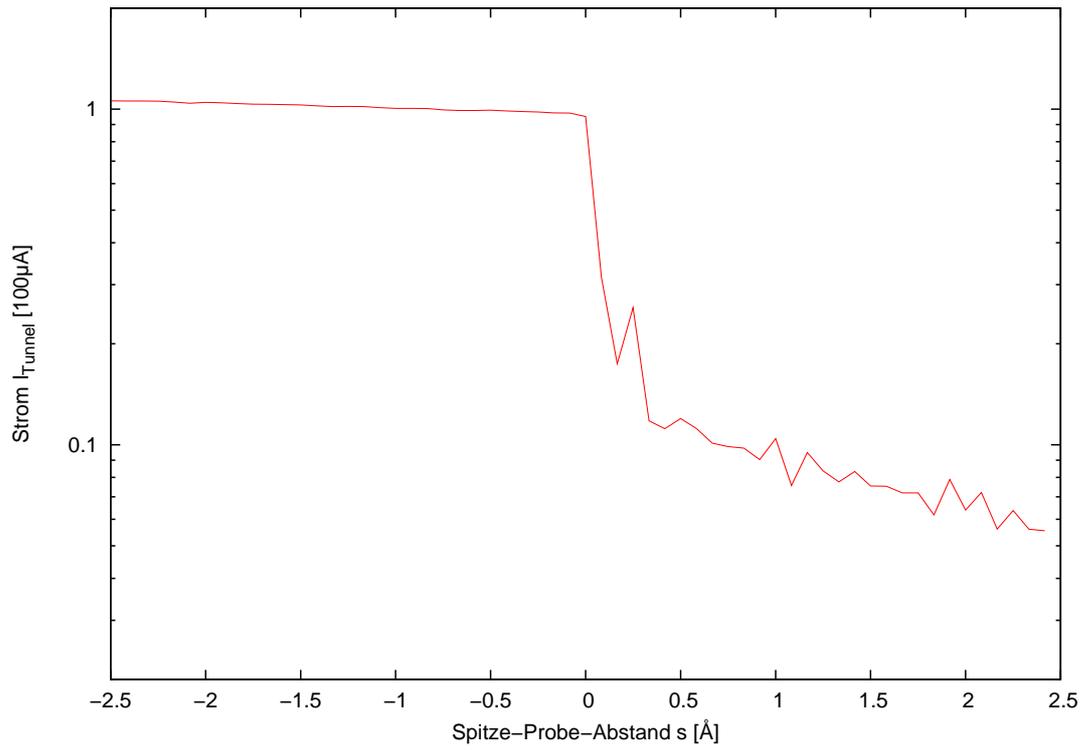


Abbildung 4.2: Tunnelstrom als Funktion der Barrierenbreite: Der Sprung im Tunnelstrom wird als Kontaktpunkt definiert (hier bei $s = 0 \text{ \AA}$).

4.3 Optische Messmethoden

In diesem Abschnitt werden kurz die Methoden vorgestellt, die zur Untersuchung der Lichtemission genutzt werden. Mögliche Messmethoden zur Aufnahme der Lichtemission im RTM sind Photonenkarten, Emissionsspektren und Isochromatspektren.

Bei Photonenkarten handelt es sich um orts aufgelöste Intensitätskarten der Lichtemission. Dabei wird orts aufgelöst die Intensität der Lichtemission bestimmt.

Isochromatspektren sind eine Sonderform der wellenlängenaufgelösten Spektroskopie. Hierbei wird der Wellenlängenbereich der Messung durch einen Bandpassfilter eingegrenzt und nur die Intensität eines kleinen Wellenlängenbereiches betrachtet.

Weiterhin besteht die Möglichkeit, wellenlängenaufgelöste Spektren der Lichtemission aufzunehmen. Dabei wird die Lichtemission mit einem Spektrometer in die Wellenlängen zerlegt und detektiert.

In dem in dieser Arbeit vorgestellten Experiment wird mit wellenlängenaufgelöster Spektroskopie auf einem Punkt der Probenoberfläche die Lichtemission bei verschiedenen Tunnelströmen und -Spannungen im Tunnelkontakt betrachtet. Dabei werden Spektren mit einer scharfen Abschneideenergie und Spektren mit einer Emission oberhalb der erwarteten Abschneideenergie untersucht.

Ferner wird die Lichtemission für den Fall untersucht, dass die Spitze in direktem Kontakt zur Oberfläche steht. Um auszuschließen, dass sich die Oberfläche durch die Messungen verändert, werden jeweils vor Beginn und nach Ende der Spektroskopie Bilder der Oberfläche aufgenommen und im Folgenden nur Messungen verwendet, bei denen keine Veränderung der Oberfläche sichtbar wird.

Zusätzlich zu den Messungen an reinen Oberflächen wurde die Messungen an auf der Oberfläche deponierten Au-Einzelatomen wiederholt. Dabei zeigte sich im Tunnelkontakt zwischen Probe und Spitze keine Änderung im Spektrum des emittierten Lichts. An diesen Punktkontakten wurde auch die Untersuchung der Emission bei Kontaktmessungen durchgeführt.

Sofern nicht anderweitig angegeben sind die Spektren um den konstanten Transmissionsverlust der Glasfaser und den konstanten, winkelabhängigen Verlust korrigiert (vgl. 2.2.4) und auf eine Messdauer von einer Sekunde normiert. Die Detektorantwort (Abb. 4.3) von CCD und Gitterspektrometer wurde in den Darstellungen nicht berücksichtigt. Da der Detektor die Spektren in Wellenlängen aufnimmt, wurden alle Spektren in die Energieskala Elektronenvolt umgerechnet und die Intensitäten N auf die Kanalbreite $\frac{dN}{dE} = \frac{dN}{d\lambda} \frac{d\lambda}{dE} = \frac{\Delta N}{\Delta\lambda} \frac{\lambda^2}{hc}$ normiert, wobei ΔN die Differenz der Zählereignisse pro Detektorkanal ist und $\Delta\lambda$ die Breite des Kanals ist.

4.4 Das untersuchte System

In diesem Abschnitt wird das durchgeführte Experiment kurz vorgestellt. Um die von Pechou *et al.* beobachteten Anomalien der Abschneideenergie der Lichtemission zu beobachten, wurde das Experiment für eine systematische Untersuchung von Strom- und

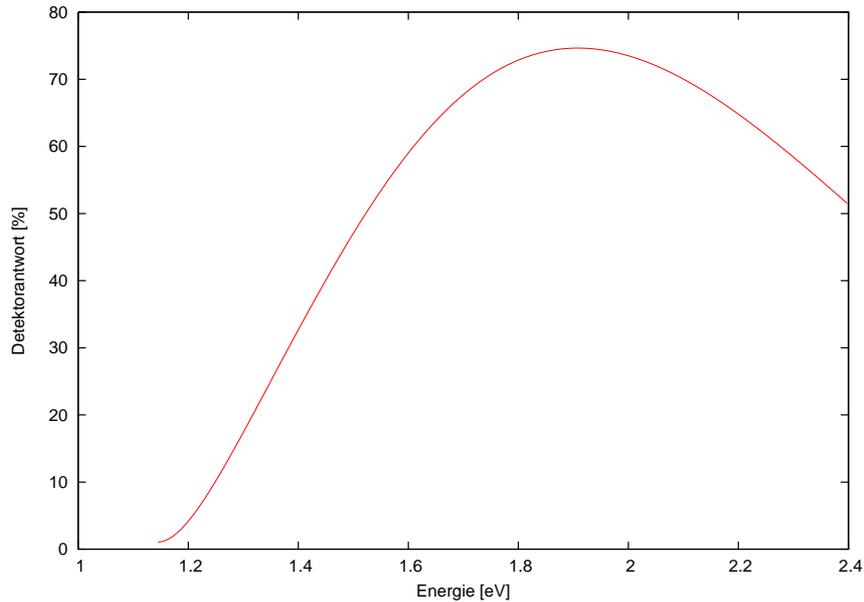


Abbildung 4.3: Detektorantwort: Die Kurve gibt an, mit welcher Wahrscheinlichkeit ein im Detektor auftreffendes Photon ein Zählsignal auslöst.

Spannungsabhängigkeit der Emission einer Goldprobe mit einer Goldspitze angelegt. Die zur Untersuchung gewählte optische Messmethode ist die wellenlängenaufgelöste Emissionsspektroskopie. Die hier präsentierten Arbeiten wurden an dem in Kapitel 2 vorgestellten RTM bei Temperaturen von $5,8-7$ K durchgeführt. Angegebene Spannungen U_{sample} liegen an der Probe an. Als Probe dient eine Au(111)-Oberfläche, die durch mehrmaliges Sputtern mit Argon-Ionen (vgl. Abschnitt 2.1.1) und Heizen (vgl. Abschnitt 2.1.2) gereinigt wurde. Die Eigenschaften der Oberfläche sind in [Barth *et al.* (1990)] beschrieben. Als Spitzenmaterial kommen Wolfram- und Golddraht zum Einsatz. Die Goldspitzen werden mechanisch geschärft, die Wolframspitzen werden elektrochemisch geätzt und durch Sputtern und Heizen im Vakuum gereinigt und vor der Messung kontrolliert in die Oberfläche gefahren. Dadurch erhalten die Wolframspitzen einen Goldüberzug und verhalten sich bei ausreichender Schichtdicke wie Goldspitzen [Berndt *et al.* (1991)]. Ein Nebeneffekt des Goldüberzugs ist, dass die Wolframspitzen genutzt werden können, um Gold-Einzelatome auf der Oberfläche zu deponieren. Dies funktioniert mit Wolframspitzen besser als mit Goldspitzen, da sich Goldatome besser von einer Wolframspitze ablösen lassen als von einer Goldspitze. Die Experimente werden auf planen Bereichen der Goldoberfläche durchgeführt, um Störungen der Plasmonenmoden durch Kristallstufen zu vermeiden. Die laterale Ausdehnung der angeregten Plasmonen beträgt einige Nanometer [Berndt (1998)].

4.5 Lichtemissionsspektroskopie auf Au(111)

4.5.1 Lichtemission bei kleinen Strömen

In diesem Abschnitt werden Messungen bei 10 nA gezeigt. Für diesen Strom wurde von uns sowohl Lichtemission mit einer scharfen Abschneideenergie beobachtet als auch eine Energieüberhöhung beobachtet.

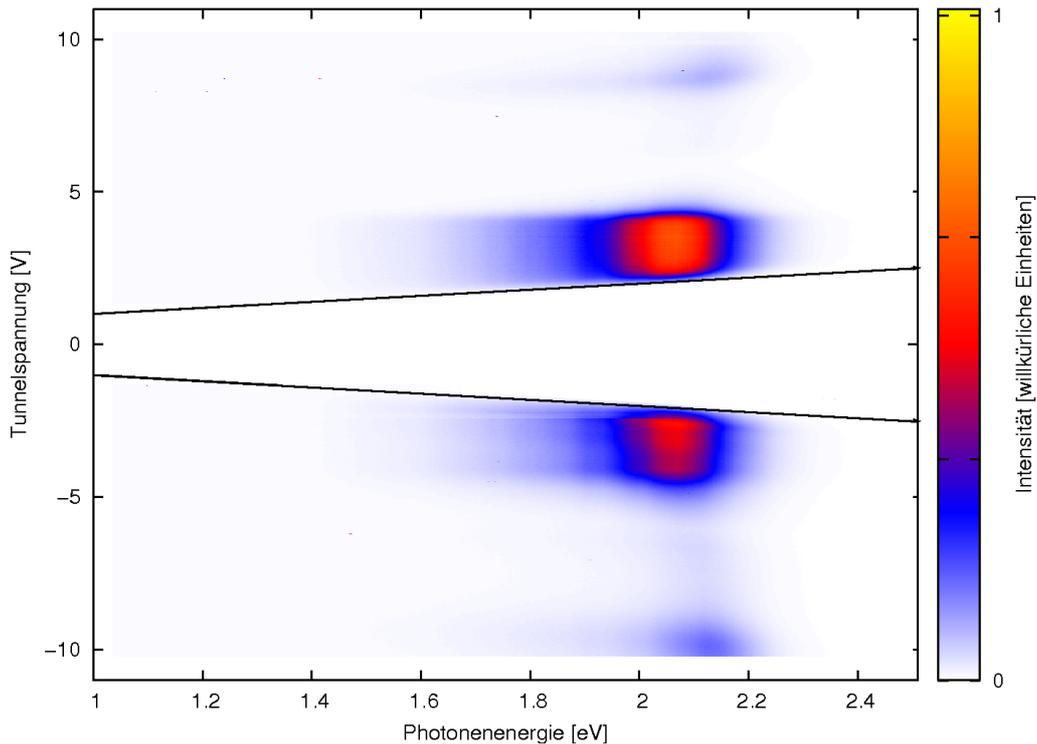


Abbildung 4.4: Emissionsspektrum bei Spannungen von $-10 \dots 10$ V. Die Spektren wurden bei $I_{\text{Tunnel}} = 10$ nA aufgenommen. Die eingezeichneten Pfeile stellen die Abschneideenergie dar. Farbkodiert ist die logarithmische Emissionsintensität.

Abbildung 4.4 zeigt das Emissionsspektrum einer Messung bei $I = 10$ nA und Spannungen zwischen $U_{\text{sample}} = -10$ V bis $U_{\text{sample}} = 10$ V. Für kleine Tunnelspannungen scheint das Spektrum durch die Abschneideenergie begrenzt. Für höhere Spannungen als $U_{\text{sample}} \approx 2,0$ V liegt die maximale beobachtete Photonenenergie deutlich unterhalb der erwarteten Abschneideenergie $E_{\text{cutoff}} = eU_{\text{sample}}$.

Bei Tunnelspannungen $U_{\text{tip}} \gtrsim 3$ V ist die Position des Emissionsmaximums weitgehend unabhängig von der Anregungsspannung. Diese Beobachtung deckt sich mit früheren Beobachtungen und führte zur Betrachtung dieses Phänomens als resonante Verstärkung lokaler Plasmonen in der Tunnelbarriere (u.a. [Johansson (1998)]).

Die Emission nimmt bei Spannungen von mehr als 4,5 V wieder ab, da der Abstand zwischen Probe und Spitze bei konstantem Strom und steigender Spannung zunimmt (vgl. Gleichung 4.1) und sich das System aus dem Zustand resonanter Verstärkung herausbewegt. Bei $|U_{\text{tip}}| \gtrsim 8 \text{ V}$ nimmt die Emission wieder zu. Die Lichtemission wird hier durch Feldemission verursacht [Berndt (1998)].

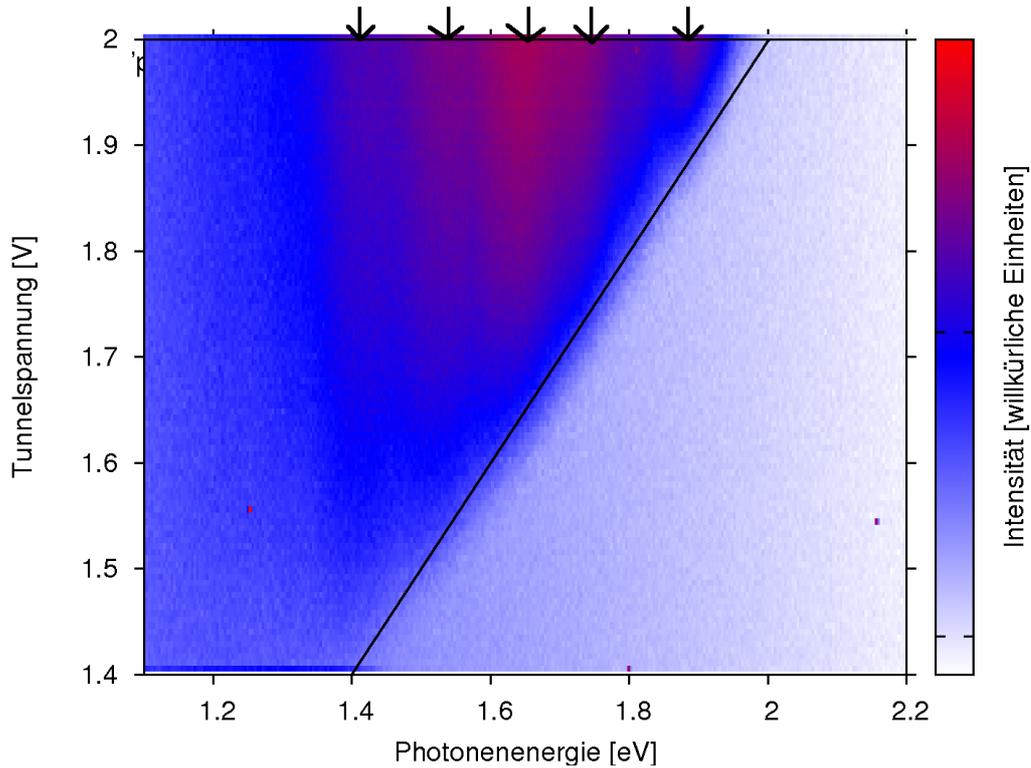


Abbildung 4.5: Spektrum der Lichtemission der Rastertunnelmikroskops: Die Spektren wurden bei einem Strom von $I = 10 \text{ nA}$ aufgenommen. Eine Spannung zwischen $U_{\text{sample}} = 1,4 \text{ V}$ bis $2,0 \text{ V}$ wurde zwischen Probe und Spitze angelegt. Die Spannung wurde in 5 mV Schritten erhöht, die Integrationszeit jedes Spektrums beträgt 1 s . Die Intensität ist logarithmisch aufgetragen. Die sichtbaren Peaks sind angetragen. Die schwarze Linie zeigt die Abschneideenergie. Die hellblaue Fläche rechts der Abschneideenergie ist das Rauschen des Dunkelstroms des CCDs. Die Intensität ist dort gleich null.

Abbildung 4.5 wurde mit einer andern Spitze gemessen als Abbildung 4.4 und zeigt das Spektrum der Lichtemission bei $I = 10 \text{ nA}$, und Spannungen zwischen $U_{\text{sample}} = 1,4 \text{ V}$ und $U_{\text{sample}} = 2 \text{ V}$. Dabei ist für diese Spitze eine Energieüberhöhung bei Tunnelspannungen zwischen $U_{\text{sample}} = 1,4 \text{ V}$ und $U_{\text{sample}} = 1,9 \text{ V}$ sichtbar.

Zusätzlich dazu weist diese Messung mehrere Maxima in der Emission (schwarze Pfeile) auf, während die Abbildung 4.4 ein klares Maximum im Emissionsspektrum

aufweist. Dieses Verhalten ist in [Meguro *et al.* (2002)] als Abhängigkeit von der Spitzenstruktur beschrieben.

Abbildung 4.6 zeigt das Emissionsspektrum einer Messung bei $I = 10 \text{ nA}$ und Spannungen zwischen $U_{\text{sample}} = 1,0 \text{ V}$ und $U_{\text{sample}} = 5,8 \text{ V}$. Dabei ist deutlich sichtbar, dass die Gesamtintensität und damit auch die Quanteneffizienz η des Vorgangs bei $U_{\text{sample}} = 2,0 \text{ V}$ um Größenordnungen niedriger liegt als bei $U_{\text{sample}} < 1,4 \text{ V}$. Weiterhin sind die erwarteten Abschneideenergien eingezeichnet. Auffällig ist dabei, dass die Spektren bis $U_{\text{sample}} = 2 \text{ V}$ Lichtemission oberhalb der erwarteten Abschneideenergie zeigen. Diese Beobachtung deckt sich mit [Pechou *et al.* (1998)]. Da dieses Phänomen bisher weitgehend ununtersucht ist, wird im nächsten Abschnitt eine genauere Untersuchung dieser Anomalie vorgenommen.

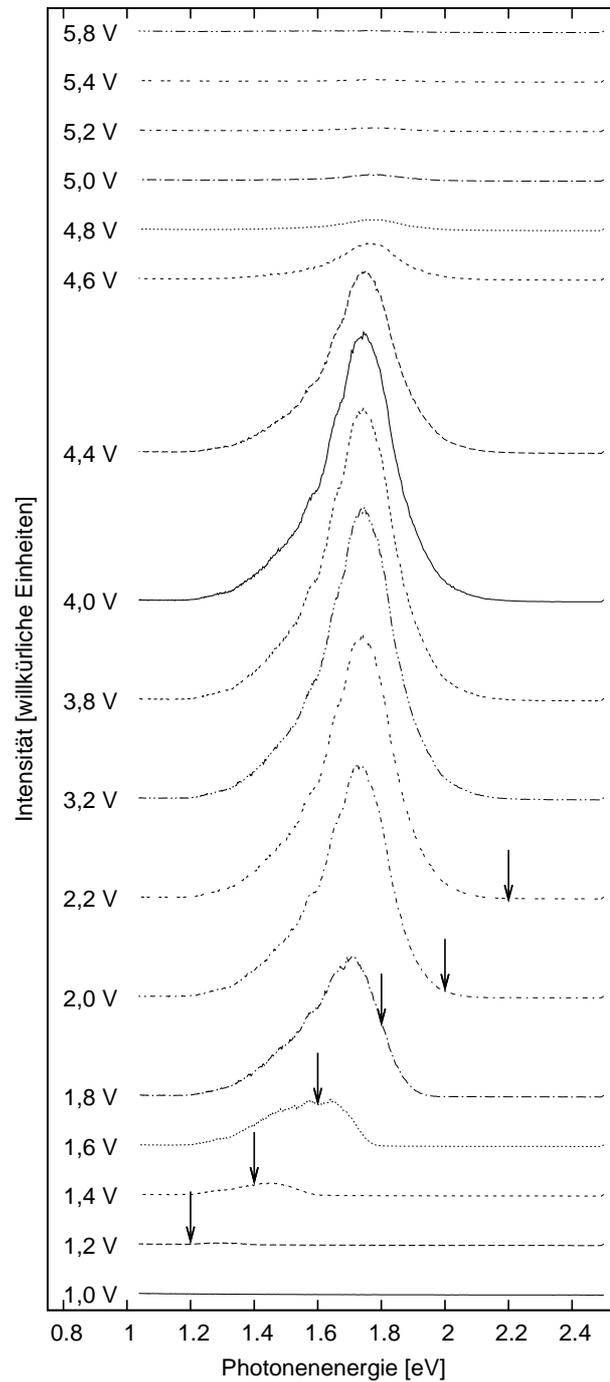


Abbildung 4.6: Emissionsspektrum von Au(111) bei Benutzung einer Goldspitze: Die Tunnelspannung ist an dem jeweiligen Spektrum angegeben. Die Bilder zeigen die Emission bei eingeschalteter RTM-Regelschleife bei einem Strom von 10 nA und einer Belichtungsdauer von 0.5 s. Die erwartete Abschneideenergie ist in den Spektren eingezeichnet (↓).

4.5.2 Untersuchung der Abschneideenergie-Anomalien

Die Lichtemission wurde bei einem höheren Strom ($I \gtrsim 5 \mu\text{A}$) und bei geringen Spannungen ($600 \text{ mV} \lesssim U_{\text{sample}} \lesssim 2200 \text{ mV}$) untersucht. Es wurde großer Wert auf die Untersuchung der Emissionsanomalien gelegt. Dabei wurde für niedrige Spannungen

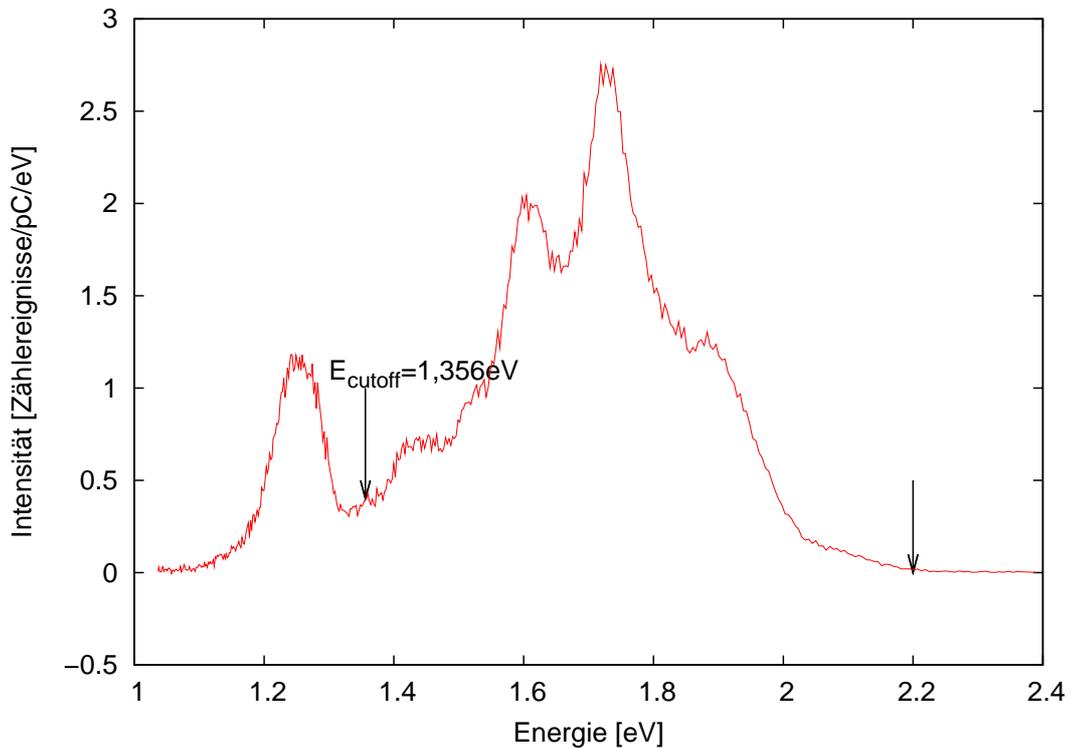


Abbildung 4.7: Emissionsspektrum bei $U_{\text{sample}} = 1,356 \text{ V}$ und $I = 10 \mu\text{A}$: Die Gesamtemission für Energien oberhalb der vorhergesagten Abschneideenergie entspricht bei Berücksichtigung der Detektorantwort der Intensität für $E_{\text{cutoff}} \leq eU_{\text{sample}}$. Das Maximum um $1,25 \text{ V}$ wird durch den Zerfall des spitzeninduzierten Plasmons verursacht. Die Abbildung zeigt eine Energieüberhöhung der emittierten Photonen von fast 1 eV .

($U_{\text{sample}} \lesssim 2 \text{ V}$) Lichtemission im Energiebereich oberhalb der Anregungsenergie $E_{\text{Photon}} \geq eU_{\text{sample}}$ beobachtet. In Abbildung 4.7 ist die Lichtemission bei einer Spannung von $1,356 \text{ V}$ und einem Tunnelstrom $I = 10 \mu\text{A}$ dargestellt. Oberhalb der Energie von $1,356 \text{ eV}$ verschwindet die Emission nicht, sondern weist eine vergleichbare Intensität auf wie die Emission im klassisch erlaubten Bereich. Die Energie der emittierten Photonen weist eine Energieüberhöhung zu den injizierten Elektronen und den emittierten Elektronen von bis zu 1 eV auf. Die Emission im Bereich $E_{\text{Photon}} \geq e \cdot U_{\text{sample}}$ weist verschiedene Maxima in der Intensität auf, deren Position sich für verschiedene Spitzen verändert.

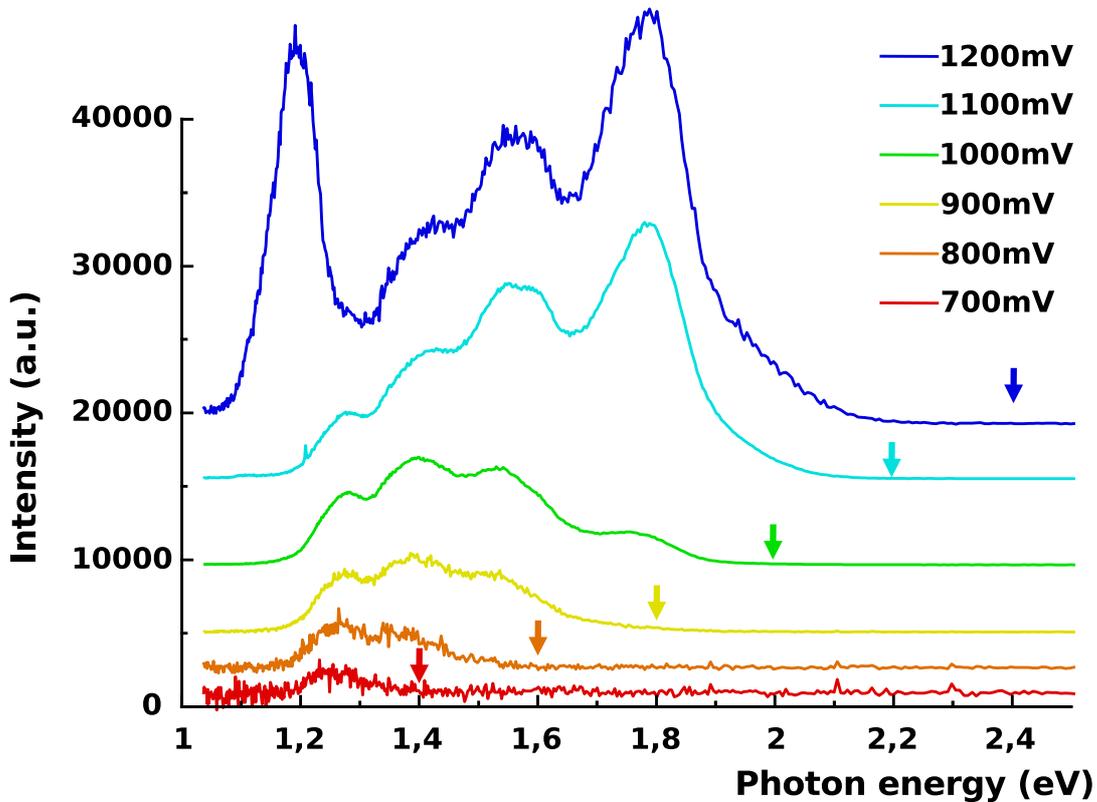


Abbildung 4.8: Spannungsabhängigkeit des Emissionsspektrums bei $I_{\text{Tunnel}} = 5 \mu\text{A}$: Die Pfeile zeigen den doppelten Wert der Abschneideenergie an [Schull (2007)].

Anschließend wurde die Lichtemission systematisch in Abhängigkeit von der Tunnelspannung bei festem Strom betrachtet. Die Abbildung 4.8 zeigt Emissionsspektren bei Spannungen zwischen 0,7 V und 1,2 V und einem Tunnelstrom $I_{\text{Tunnel}} = 5 \mu\text{A}$. Bei diesen Messungen zeigt sich, dass die Intensität zu höheren Tunnelspannungen zunimmt und die Lichtemission mit $E \geq eU_{\text{sample}}$ schon bei Spannungen von 0,7 V nachweisbar ist. Die eingezeichneten Pfeile zeigen die für einen eventuellen Zwei-Elektronen-Prozess zu erwartende maximale Energie des emittierten Lichts an. Dabei zeigen alle Messungen eine Abschneideenergie bei $E_{2e\text{-cutoff}} \leq 2 \cdot e|U_{\text{sample}}|$. Dieser Effekt ist auch in Abbildung 4.9 sichtbar. Dabei stellt die rote Linie eine Energie von $E = eU_{\text{sample}}$ und die grüne eine Energie von $E = 2eU_{\text{sample}}$ dar.

Für Serien von Spektren mit mehr als $10 \mu\text{A}$ erwies sich das System von Spitze-Probe mit einem zusätzlich aufgebracht Au-Adatom auf der Oberfläche als stabiler. Nachfolgend beschriebene Messungen sind daher mit dieser Veränderung des Systems gemessen.

Abbildung 4.10 zeigt eine dreidimensionale Repräsentation der Emission in Abhängigkeit des Tunnelstromes bei einer Spannung $U_{\text{sample}} = 1,30 \text{ V}$. Das System ist bei

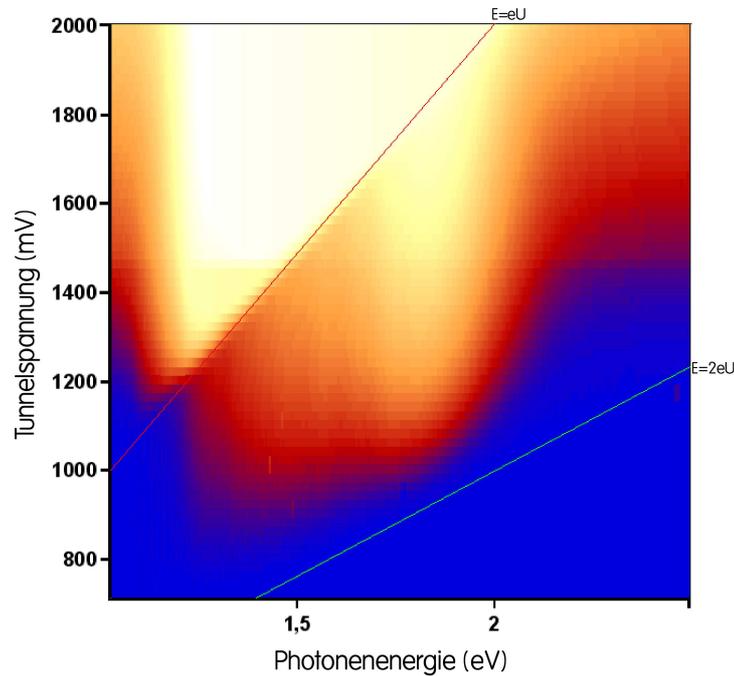


Abbildung 4.9: Spannungsabhängigkeit der Lichtemission: Die Tunnelspannung wurde in 10 mV Schritten zwischen 0,7 V und 2,0 V bei einem Strom $I = 5 \mu\text{A}$ variiert. Abgebildet ist die logarithmische Energieintensität. Eingezeichnet sind $E_{\text{Photon}} = eU_{\text{sample}}$ und $E_{\text{Photon}} = 2eU_{\text{sample}}$ [Schull (2007)].

Strömen bis $\approx 50 \mu\text{A}$ stabil. Damit ist eine Untersuchung des Wachstums beider Phänomene in Abhängigkeit vom Tunnelstrom möglich. Ähnlich der Beobachtung der Lichtemission bei kleinen Strömen steigt Energie der Hauptmaxima des Spektrums in Abhängigkeit von der Tunnelspannung an.

Bei Strömen $I \lesssim 5 \mu\text{A}$ überwiegt die Emission durch Ein-Elektron-Anregung von Plasmonen. Mit zunehmendem Strom übertrifft der Anteil der Lichtemission durch Photonen mit verbotenen Photonenergien an der Gesamtemission den der Ein-Elektron-Plasmonenzerfallsemission. Abbildung 4.11 betrachtet die Entwicklung der Emissionsintensität in Abhängigkeit des Stroms mit $E_{\text{Photon}} > eU_{\text{sample}}$ und $E_{\text{Photon}} \leq eU_{\text{sample}}$ getrennt. Die Intensität der Ein-Elektron-Plasmonenzerfallsemission wächst linear mit dem Strom an, die Intensität der Emission im *verbotenen* Energiebereich bei steigendem Strom steigt proportional zu $I^{1,4}$ an. Die Quanteneffizienz dieses Emissionsprozesses (Abb. 4.11, kleines Bild) beträgt $\approx 5 \cdot 10^{-7}$ Photonen pro Elektron für die höchsten gemessenen Ströme von $I = 52 \mu\text{A}$ und eine Spannung von $U_{\text{sample}} = 1,30 \text{ V}$.

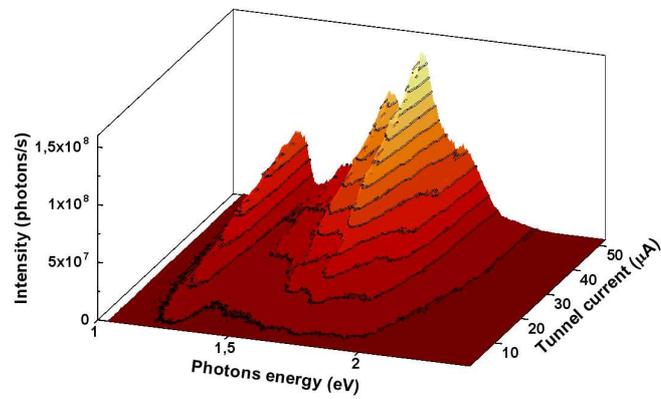


Abbildung 4.10: Abhängigkeit der Lichtemission vom Tunnelstrom: I(s)-Spektroskopie über mehrere Größenordnungen im Strom wurde genutzt, um die Abhängigkeit zwischen Emissionsintensität und Strom zu bestimmen. Die Spannung U_{sample} beträgt bei dieser Messung 1,30 V [Schull (2007)].

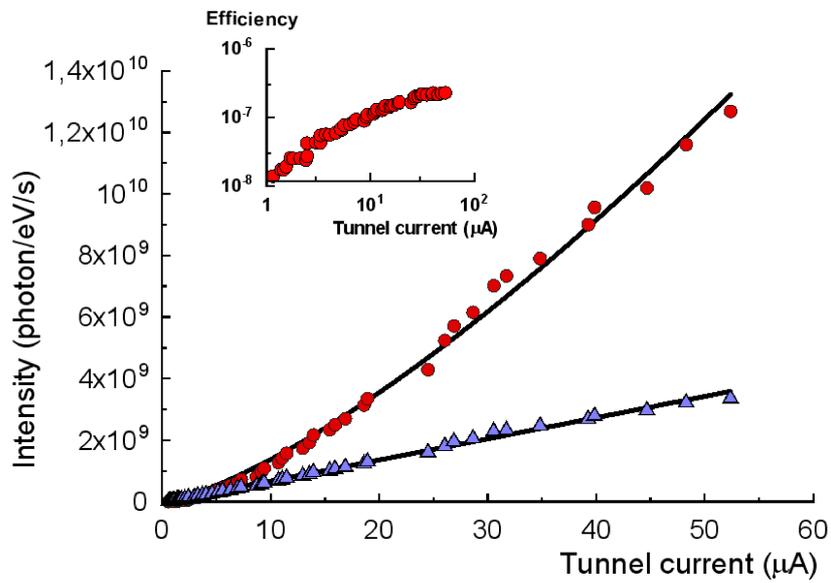


Abbildung 4.11: Intensitätsentwicklung der verschiedenen Peaks: Die blaue Kurve stellt die Entwicklung der Gesamtintensität von Photonen einer Energie $E_{\text{photon}} \leq eU_{\text{sample}}$ dar, die rote Kurve die Intensitätsentwicklung der Photonen mit Energien $E_{\text{photon}} > eU_{\text{sample}}$. Das kleine Bild in dieser Abbildung zeigt die Quanteneffizienz des Emissionsprozesses für $E > eU_{\text{sample}}$. Alle Angaben beziehen sich auf die in Abbildung 4.10 dargestellte Messung [Schull (2007)].

Abbildung 4.12 zeigt die Spektren von zwei Messungen mit derselben Spitze. Verwendet wurde eine Messung bei 1,29 V und 10 nA und eine Messung bei 2,1 V. Der Emissionsprozess bei 1,29 V weist eine deutlich geringere Intensität pro Sekunde auf als die Emission bei 2,1 V. Daher wurde die Darstellung um einen Faktor 400 vergrößert. Das Spektrum bei 1,29 V weist einen zusätzlichen Peak um ≈ 1050 nm auf. Alle weiteren beobachteten Maxima liegen auf den gleichen Wellenlängen wie bei 2,1 V. Dies ist ein starkes Indiz dafür, dass in beiden Messungen dasselbe System zur Lichtemission angeregt wird. Da in der Messung bei 1,29 V ein deutlich größerer Strom fließt, nimmt die Zeit zwischen zwei Tunnelereignissen deutlich ab. Dabei tunnelt bei einem Strom von 10 nA ein Elektron durchschnittlich alle 16 ps, bei einem Strom von 10 μ A alle 16 fs.

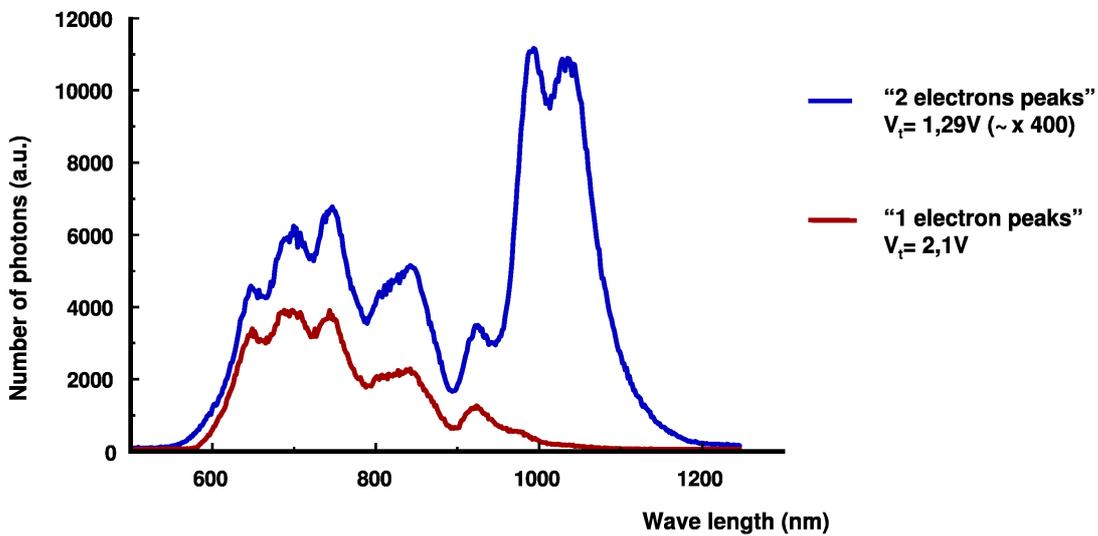


Abbildung 4.12: Die Position der Emissionsmaxima der Lichtemission im *verbotenen Bereich* bei $U_{\text{sample}} = 1,29$ V und $I = 5$ μ A entspricht der Peaklage bei den klassisch beobachteten Plasmonen bei $U_{\text{sample}} = 2,10$ V und $I = 10$ nA. Beide Spektren wurden mit derselben Spitze an derselben Stelle der Oberfläche aufgenommen. Da die Effizienz des Vorgangs bei $U_{\text{sample}} = 1,29$ V deutlich geringer ist als bei einer Spannung $U_{\text{sample}} = 2,10$ V, wurde die Intensität in der Darstellung um einen Faktor 400 vergrößert [Schull (2007)].

4.5.3 Lichtemission im Kontakt

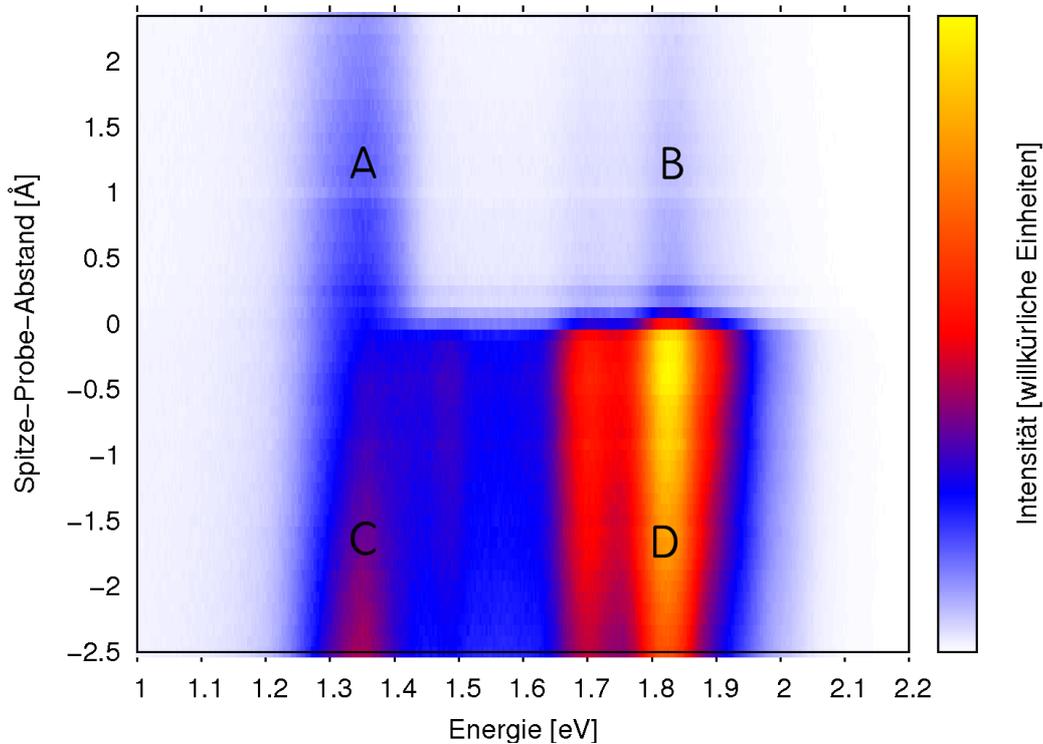


Abbildung 4.13: Intensitätsentwicklung der Emission im Kontakt: Gemessen bei einer Spannung $U_{\text{sample}} = 1,340 \text{ V}$ und einem Anfangsstrom von $I = 5,6 \mu\text{A}$. Die Abbildung zeigt die Intensität abhängig vom Abstand zwischen Probe und Spitze. Die Spitze wird der Probe angenähert, bei einem Abstand ($s_0 = 0 \text{ \AA}$) tritt der Kontaktschluss zwischen Spitze und Probe auf. Anschließend wird die Spitze $2,5 \text{ \AA}$ weiter in die Probe hineingefahren.

Unter Benutzung von I(s)-Spektroskopie wird ein Kontakt zwischen Probe und Spitze hergestellt, wie in [Limot *et al.* (2005)] beschrieben. Abbildung 4.13 zeigt die Intensitätsentwicklung in Abhängigkeit vom Abstand. Der Nullpunkt wurde hierbei auf den Punkt des Kontakts gelegt. Die Bereiche A und B zeigen die Intensität des Lichts, das im Tunnelregime erzeugt wird. A zeigt dabei die klassische Plasmonenemission. B zeigt die verbotene Emission. Beide steigen in ihrer Intensität an, wobei die Intensität in A linear ansteigt, während sie in B etwa $\propto I^{1,4}$ wächst.

Dabei verändert sich das Emissionsspektrum im Moment des Kontakts dramatisch (vgl. Abbildung 4.13, Kontaktschluss in $s_0 = 0$). Vor dieser Messung wurde im Kontakt mit der Oberfläche ein Au-Atom auf der Oberfläche deponiert. In Abbildung 4.13 ist auffällig, dass die Intensität der verbotenen Emission im Moment des Kontakts, dem Übergangsbereich zwischen B und D, dramatisch ansteigt. Der Peak im Bereich

$E_{\text{photon}} < eU_{\text{sample}}$ (Abb. 4.13, C) wächst hingegen linear weiter und zeigt keinen Hinweis auf den Kontakt.

Deutlich wird dieses Verhalten auch, wenn man das Intensitätswachstum der Emission mit Energien $E \leq eU_{\text{sample}}$ und Emission mit $E > eU_{\text{sample}}$ getrennt in Abhängigkeit des Stroms betrachtet. Abbildung 4.14 a) zeigt die Gesamtintensität der Emission des Plasmonenzerfalls und Abbildung 4.14 b) die verbotene Emission. Dabei ist die Gesamtintensität des jeweiligen Energiebereichs gegen den Tunnelstrom aufgetragen. Es zeigt sich, dass die Intensität der verbotenen Emission mit ansteigendem Strom zunimmt bis der Kontaktfall auftritt. Dort gibt es mit dem Sprung im Strom einen Sprung in der Intensität. In der dargestellten Messung (Abb. 4.14 b) fällt die Intensität bei zunehmender Annäherung ab (siehe auch Abbildung 4.13, D). Dieser Abfall ist nicht jedes Mal reproduzierbar, andere Messungen zeigen einen Anstieg. Es findet bei jedem Sprung in den Kontakt ein Anstieg der beobachteten Emission statt. Die Emission des Zerfalls des spitzeninduzierten Plasmons (Abb. 4.14, a) zeigt diesen Sprung nicht.

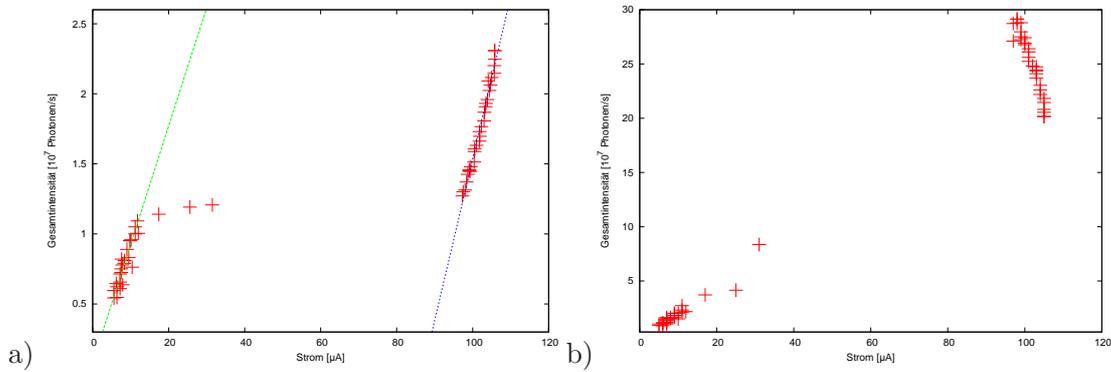


Abbildung 4.14: [Stromabhängigkeit der Emission im Kontakt: Gemessen bei einer Spannung $U_{\text{sample}} = 1,340 \text{ V}$ und einem Anfangsstrom von $5,6 \mu\text{A}$ ist in diesem Bild die Gesamtintensität der Emission mit a) $E \leq eU_{\text{sample}}$ und b) $E > eU_{\text{sample}}$ dargestellt.

5 Zusammenfassung

In dieser Arbeit wurden zwei Themen behandelt. Im ersten Teil dieser Arbeit wird der selbstkonstruierte Manipulator vorgestellt. Dieser Manipulator ermöglicht die Präparation von Proben im UHV bei hohen und tiefen Temperaturen. Dabei kann die Probe auf über 2000 K erhitzt werden und auf bis zu 157 K abgekühlt werden.

Das präzise Verfahren der Probe im UHV wird durch einen kommerziellen Manipulator gewährleistet. Ein mit dem Probentransfersystem kompatibler Manipulatorkopf ist als Eigenentwicklung gebaut worden.

Die Kühlung funktioniert durch Wärmetransport zwischen der Probe und einem Kühlreservoir. Dazu kann ein beweglicher Hebel über die Probe bewegt werden. Dieses ist auch bei heißer Probe möglich, ohne den Kühlkontakt zu beschädigen.

Die Proben, Spitzen und Filamente können auf dem Manipulator unabhängig voneinander auf Spannungen zwischen -2000 V und 2000 V gelegt werden und von Strömen bis zu 10 A durchflossen werden. Damit ist die einer Probe zugeführte Heizleistung sehr genau regelbar. Mit Elektronenbombardement lassen sich an der Probe Temperaturen oberhalb von 2000 K erreichen.

Im zweiten Teil dieser Arbeit wurde durch Rastertunnelmikroskopie induzierte Lichtemissionsspektroskopie an Au(111) durchgeführt. Bei kleinen Strömen zeigen die Messungen sowohl Spektren mit einer Abschneideenergie bei $E_{\text{photon}} = eU_{\text{sample}}$ auf als auch solche mit verbotener Emission. Erhöht man den Strom, so steigen die beobachteten Intensitäten der verbotenen Emission und die beobachtete Energieüberhöhung an.

Für Ströme von $\gtrsim 5 \mu\text{A}$ wird ein Emissionsprozess beobachtet, der dieselbe Position der Maxima aufweist wie Spektren, die bei doppelter Spannung und niedrigen Strömen aufgenommen werden. Zudem zeigen die Beobachtungen eine Abschneide-Energie unterhalb von $E = 2eU_{\text{sample}}$. Das deutet auf einen Zwei-Elektronen-Prozess hin, der dasselbe System zur Lichtemission anregt wie der Ein-Elektron-Prozess (Abb. 4.12).

In dieser Arbeit wurde erstmals die Lichtemission in einem Adatomkontakt untersucht. Betrachtet man die Entwicklung der Lichtemission für einen Kontakt zwischen Probe und Spitze, so entwickeln sich der Ein-Elektron-Prozess und der vermutete Zwei-Elektronen-Prozess unterschiedlich. Die Intensität des Ein-Elektron-Prozesses verändert sich trotz des Kontakts nicht wesentlich, die Intensität des vermuteten Zwei-Elektronen-Prozesses erfährt einen deutlichen Anstieg. Weiteres Annähern der Spitze an die Probe führt bei dem Zwei-Elektronen-Prozess zu schlecht reproduzierbaren Ergebnissen, während die Intensität der durch spitzeninduzierte Plasmonen verursachten Emission linear ansteigt. Für diese Ergebnisse existiert bisher keine zufriedenstellende Erklärung. Daher bietet dieses Phänomen Spielraum für weitergehende Untersuchungen, die den Rahmen dieser Arbeit überschreiten würden.

Danksagung

Ohne die Hilfe vieler Menschen wäre diese Arbeit nicht möglich gewesen, ihnen sei hier gedankt:

Mein Dank geht an Prof. Dr. Richard Berndt, der mir die Möglichkeit gab, in seiner Arbeitsgruppe diese Arbeit durchzuführen, für die spannenden Aufgabenstellungen und die geleisteten Hilfestellungen.

Besonderer Dank gilt Dr. Thomas Jürgens für die exzellente Betreuung während der gesamten Dauer der Arbeit.

Mein Dank richtet sich auch an Michael Becker, Dr. Guillaume Schull und Dr. Yongfeng Wang, die mir während der Bauphase des Manipulators mit Rat und Tat zur Seite standen.

Gedankt sei an dieser Stelle auch den Mitarbeitern der feinmechanischen Werkstatt der Physik und Herrn Krüger, ohne deren Hilfe der Bau des Manipulators unmöglich gewesen wäre.

Dr. Nicolas Néel, Dr. Guillaume Schull und Patrick Schmidt waren an den Lichtemissionsmessungen beteiligt, die hier in der Arbeit beschrieben werden. Ohne sie hätte ich nicht die Ergebnisse bekommen, die in dieser Arbeit präsentiert sind.

Michael Becker, Klaudia Herbst, Dr. Thomas Jürgens, Patrick Schmidt, Dr. Guillaume Schull, Franziska Synatschke und Martin Ziegler sowie meine Eltern Beate Müller-Czerwonka und Uwe Czerwonka nahmen sich die Zeit zur Durchsicht der unvollendeten Arbeit. Ihnen verdanke ich viele nützliche Hinweise, Anregungen und Korrekturen.

Ein herzlicher Dank gilt auch allen anderen Mitglieder der Arbeitsgruppe, die hier unerwähnt bleiben, die während der Dauer der Arbeit immer wieder für Diskussionen und Fragen zur Verfügung standen.

Literaturverzeichnis

- Aizpurua, J., S. P. Apell, and R. Berndt, 2000, Phys. Rev. B **62**(3), 2065.
- Barth, J. V., H. Brune, G. Ertl, and R. J. Behm, 1990, Phys. Rev. B **42**(15), 9307.
- Berndt, R., 1998, *Photon Emission from the Scanning Tunneling Microscope* (Springer-Verlag), chapter 5, pp. 97–134, in Wiesendanger, R., Scanning Probe Microscopy.
- Berndt, R., J. K. Gimzewski, and P. Johansson, 1991, Phys. Rev. Lett. **67**(27), 3796.
- Binnig, G., H. Rohrer, C. Gerber, and E. Weibel, 1982a, Phys. Rev. Lett. **49**(1), 57.
- Binnig, G., H. Rohrer, C. Gerber, and E. Weibel, 1982b, Applied Physics Letters **40**(2), 178, URL <http://link.aip.org/link/?APL/40/178/1>.
- Cavalleri, O., C. Natale, M. E. Stroppolo, A. Relini, E. Cosulich, S. Thea, M. Novi, and A. Gliozzi, 2000, Phys. Chem. Chem. Phys **2**, 4630.
- Coombs, J. H., J. K. Gimzewski, B. Reihl, J. K. Sass, and R. R. Schlittler, 1988, J. Microsc. **152**(2), 325.
- Downes, A., P. Dumas, and M. E. Welland, 2002, Applied Physics Letters **81**(7), 1252, URL <http://link.aip.org/link/?APL/81/1252/1>.
- Fowler, R. H., and L. Nordheim, 1928, Proceedings of the Royal Society of London. Series A, Containing Papers of a Mathematical and Physical Character **119**(781), 173.
- Gmelin, E., M. Asen-Palmer, M. Reuther, and R. Villar, 1999, Journal of Physics D: Applied Physics **32**(6), R19, URL <http://stacks.iop.org/0022-3727/32/R19>.
- Güntherodt, H.-J., and R. Wiesendanger (eds.), 1994, *Scanning Tunneling Microscopy I* (Springer-Verlag), 2nd edition.
- Hoffmann, G., 2001, *Light Emission from Metals and Adsorbates in the Scanning Tunneling Microscope*, Ph.D. thesis, Christian Albrecht Universität zu Kiel.
- Hoffmann, G., R. Berndt, and P. Johansson, 2003, Phys. Rev. Lett. **90**(4), 046803.
- Johansson, P., 1998, Phys. Rev. B **58**(16), 10823.
- Johansson, P., R. Monreal, and P. Apell, 1990, Phys. Rev. B **42**(14), 9210.

- Jona, F., 1978, Journal of Physics C: Solid State Physics **11**(21), 4271, URL <http://stacks.iop.org/0022-3719/11/4271>.
- Kliwer, J. U., 2000, *Dynamics and Manipulation of Surface States*, Ph.D. thesis, Rheinisch-Westfälische Technische Hochschule Aachen.
- Lambe, J., and S. L. McCarthy, 1976, Phys. Rev. Lett. **37**(14), 923.
- Lang, N. D., 1987, Phys. Rev. B **36**(15), 8173.
- Lide, D. R. (ed.), 1992–1993, *CRC handbook of chemistry and physics : a ready-reference book of chemical and physical data*, 73. edition.
- Limot, L., J. Kroger, R. Berndt, A. Garcia-Lekue, and W. A. Hofer, 2005, Physical Review Letters **94**(12), 126102 (pages 4), URL <http://link.aps.org/abstract/PRL/v94/e126102>.
- Lisowski, W., A. H. J. Berg, G. A. M. Kip, and L. J. Hanekamp, 1991, Fresenius' Journal of Analytical Chemistry **341**, 196, URL <http://www.springerlink.com/content/v4214x2m8714464g>.
- Meguro, K., K. Sakamoto, R. Arafune, M. Satoh, and S. Ushioda, 2002, Phys. Rev. B **65**(16), 165405.
- Morgenstern, K., G. Rosenfeld, and G. Comsa, 1996, Phys. Rev. Lett. **76**(12), 2113.
- Neuer, G., 1971, Heat and Mass Transfer **4**(3), 133, doi 10.1007/BF01443671.
- Pechou, R., R. Coratger, F. Ajustron, and J. Beauvillain, 1998, Applied Physics Letters **72**(6), 671, URL <http://link.aip.org/link/?APL/72/671/1>.
- Persson, B. N. J., and A. Baratoff, 1992, Phys. Rev. Lett. **68**(21), 3224.
- Repain, V., G. Baudot, H. Ellmer, and S. Rousset, 2002, Europhysics Letters (EPL) **58**(5), 730, URL <http://stacks.iop.org/0295-5075/58/730>.
- Schull, G., 2007, private Mitteilung zu gemeinsamer Messung.
- Stockhausen, J., 1999, Aufbau und Test eines Tieftemperaturrastertunnelmikroskops.
- Swartz, E. T., 1998, in *Experimental Techniques in Condensed Matter Physics at Low Temperatures*, edited by R. C. Richardson and E. N. Smith (Addison Wesley), chapter 3 – Cryogenic Cooling Aids, pp. 154–165.
- Tersoff, J., and D. R. Hamann, 1985, Phys. Rev. B **31**(2), 805.
- UI 3205, 1998, *Operating Instructions – Rotary Drives – RD1, RD2, RD224, RD5, RD6, RD7*, Vacuum Generators, Maunsell Road, Castleham Industrial Estate, St Leonards-on-Sea East Sussex TN38 9NN, England.

UI 4208, 1997, *Operating Instructions – Liquid Nitrogen Cooling*, Vacuum Generators, Maunsell Road, Castleham Industrial Estate, St Leonards-on-Sea East Sussex TN38 9NN, England.

UI 4212, 1998, *Operating and Maintenance Handbook – Resistive Heater Accessory – HST Series*, Vacuum Generators.

Wiesendanger, R. (ed.), 1998, *Scanning Probe Microscopy – Analytical Methods* (Springer-Verlag Berlin Heidelberg New York).

Young, R., J. Ward, and F. Scire, 1971, *Phys. Rev. Lett.* **27**(14), 922.