

Überblick & Ziele

Das vorrangige Ziel unserer Arbeit besteht in der **Strukturaufklärung** von HOPG (Highly Ordered Pyrolytic Graphite) und Tantaldisulfid (TaS_2) sowie im **Nachweis von CDWs** (Charge Density Waves) auf der Oberfläche von TaS_2 . Hierbei kommt die Rastertunnelmikroskopie (STM, Scanning Tunneling Microscopy) als vergleichsweise einfache Methode zur Strukturaufklärung auf atomaren Größenskalen zum Einsatz. Als STM verwenden wir in unseren Versuchen das NANOSURF[®]EASYSCAN der ersten Generation und zur Auswertung die in [1] beschriebene Software WSXM 5.0.

Die Quantitative Analyse der gemessenen Oberflächenstrukturen erlaubt mit Hilfe der Fouriertransformation die Bestimmung der Gitterkonstanten sowohl des atomaren Gitters als auch des von den CDWs induzierten Übergitters.

Die Präsentation unserer Ergebnisse gliedert sich in zwei übergeordnete Abschnitte:

- Die **linke Spalte** befasst sich mit den Grundlagen, die das theoretische Gerüst dieser Arbeit bilden.
- Die **rechte Spalte** liefert Einblick in unsere experimentellen Befunde und deren Interpretation.

A | Tunneleffekt

Der Tunneleffekt ist wohl einer der bekanntesten quantenmechanischen Effekte überhaupt. Klassischen Theorien und der Intuition zufolge wird ein Teilchen mit kinetischer Energie E an einem Potentialwall der Höhe $V > E$ in jedem Fall reflektiert.

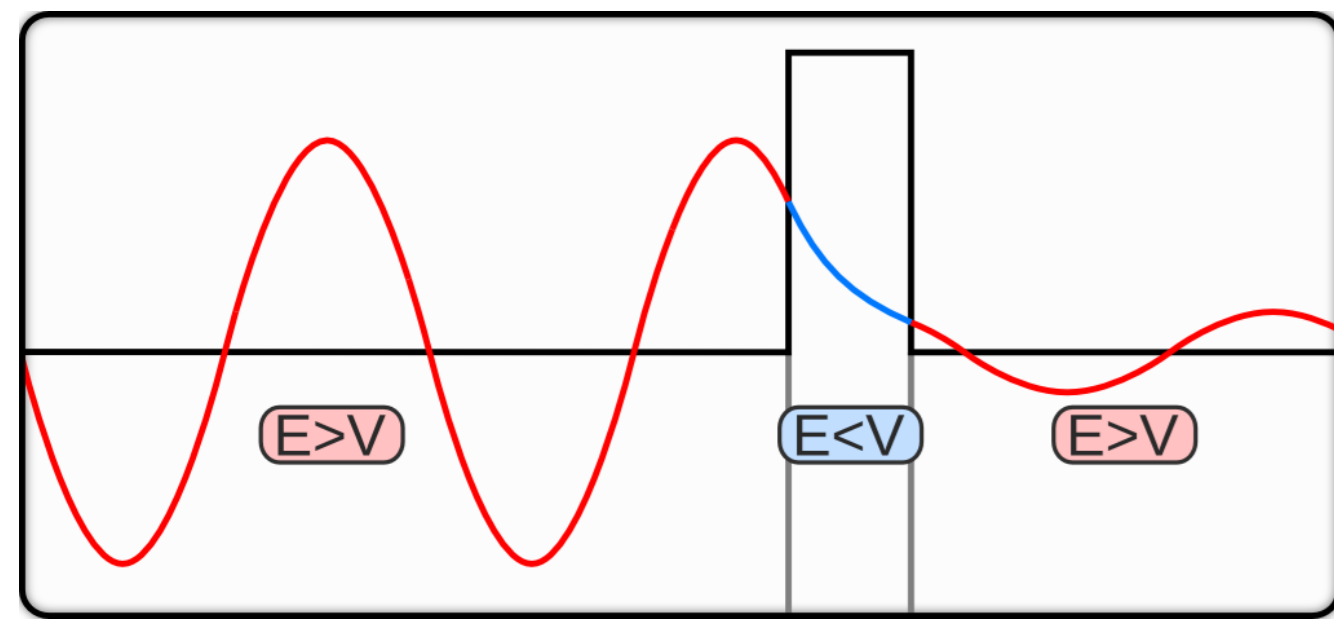


Abbildung 1: Materiewelle vor und nach einem Potentialwall.

Im quantenmechanischen Regime wird ein solches Teilchen aber durch seine Wellenfunktion $|\Psi\rangle$ bzw. $\Psi(x, t)$ (in Ortsdarstellung) beschrieben. Eine solche ist im Fall reeller Amplituden Ψ in Abb. 1 dargestellt. Diese muss gewissen Randbedingungen für Ψ und Ψ' entsprechen, da sie Lösung der

zeitunabhängigen Schrödingergleichung

$$-\frac{\hbar^2}{2m}\Psi''(x) + V(x)\Psi(x) = E\Psi(x) \quad (1)$$

ist. Damit wird ersichtlich, weshalb die Wellenfunktion innerhalb eines Potentialwalls $V > E$ nicht abrupt auf 0 abfallen sondern stetig abklingen muss. Ist dieser Abklingprozess beim Erreichen der Rückseite des Potentialwalls noch nicht zu weit fortgeschritten, baut sich dort wieder eine Materiewelle mit messbarer Wahrscheinlichkeitsamplitude $|\Psi(x)|^2$ auf – das Teilchen hat den Potentialwall *durchtunnelt*. Dies geschieht in diesem einfachen Modell für hohe Potentiale $V \gg E$ mit der Wahrscheinlichkeit

$$P_T(E) \propto \frac{E}{V} \exp\left[-\frac{4d}{\hbar}\sqrt{2mV}\right] \quad (2)$$

Hier ist d die Breite des Potentialwalls V , E die kinetische Energie und m die Masse des Teilchens. Wichtig ist hier der **exponentielle Abfall** der Tunnelwahrscheinlichkeit mit der Potentialbreite d .

B | Rastertunnelmikroskopie

Bei einem STM induziert eine Metallspitze mit einem einzigen Atom am äußersten Ende einen Tunnelstrom (Abb. 2), der durch Anlegen einer Spannung zwischen Spitze und leitfähiger Probe variiert werden kann.

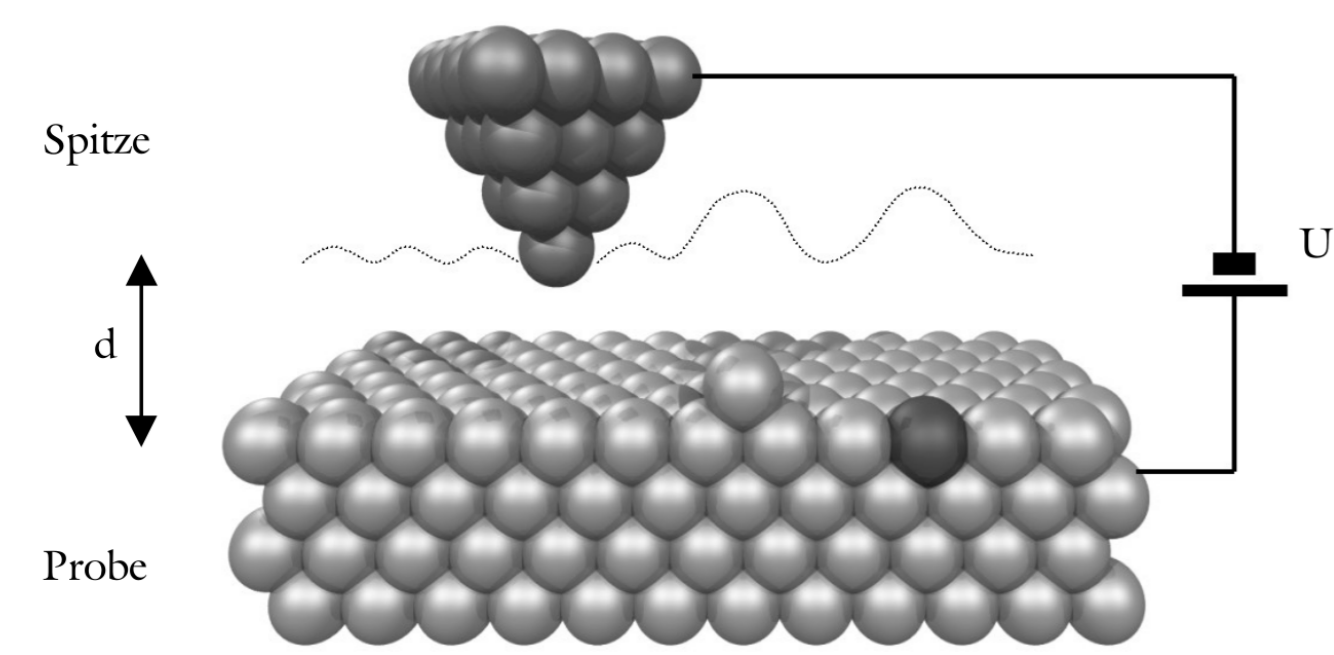


Abbildung 2: Prinzip eines Rastertunnelmikroskops.

Dieser Strom hängt exponentiell vom Abstand zwischen Spitze und Probe d sowie der elektronischen Zustandsdichte an der Fermikante ρ_F^P ab [3]

$$I_T \propto U \cdot \rho_F^P \cdot \exp\left[-\frac{2d}{\hbar}\sqrt{2m\Phi}\right] \quad (3)$$

Φ ist hier die (effektive) Barrierenhöhe, die eng mit den Austrittsarbeiten der Elektronen aus Spitze und Substrat verknüpft ist. Abb. 3 zeigt den schematischen Aufbau eines STM.

Dieser erlaubt zwei Betriebsmodi:

- CHM (Constant Height Mode)**
 - Fester Abstand $d \equiv z$, Messung des Stromes I_T
 - schnelle Bildaufnahme \rightarrow dynamische Prozesse abbildbar (Video-STM)
 - Probleme: Probe-Spitze-Kollisionen, Drift
- CCM (Constant Current Mode)**
 - Fester Tunnelstrom I_T , Messung des Abstandes d
 - hohe Auflösungen, üblicher Betriebsmodus
 - Probleme: langsame Bildaufnahme

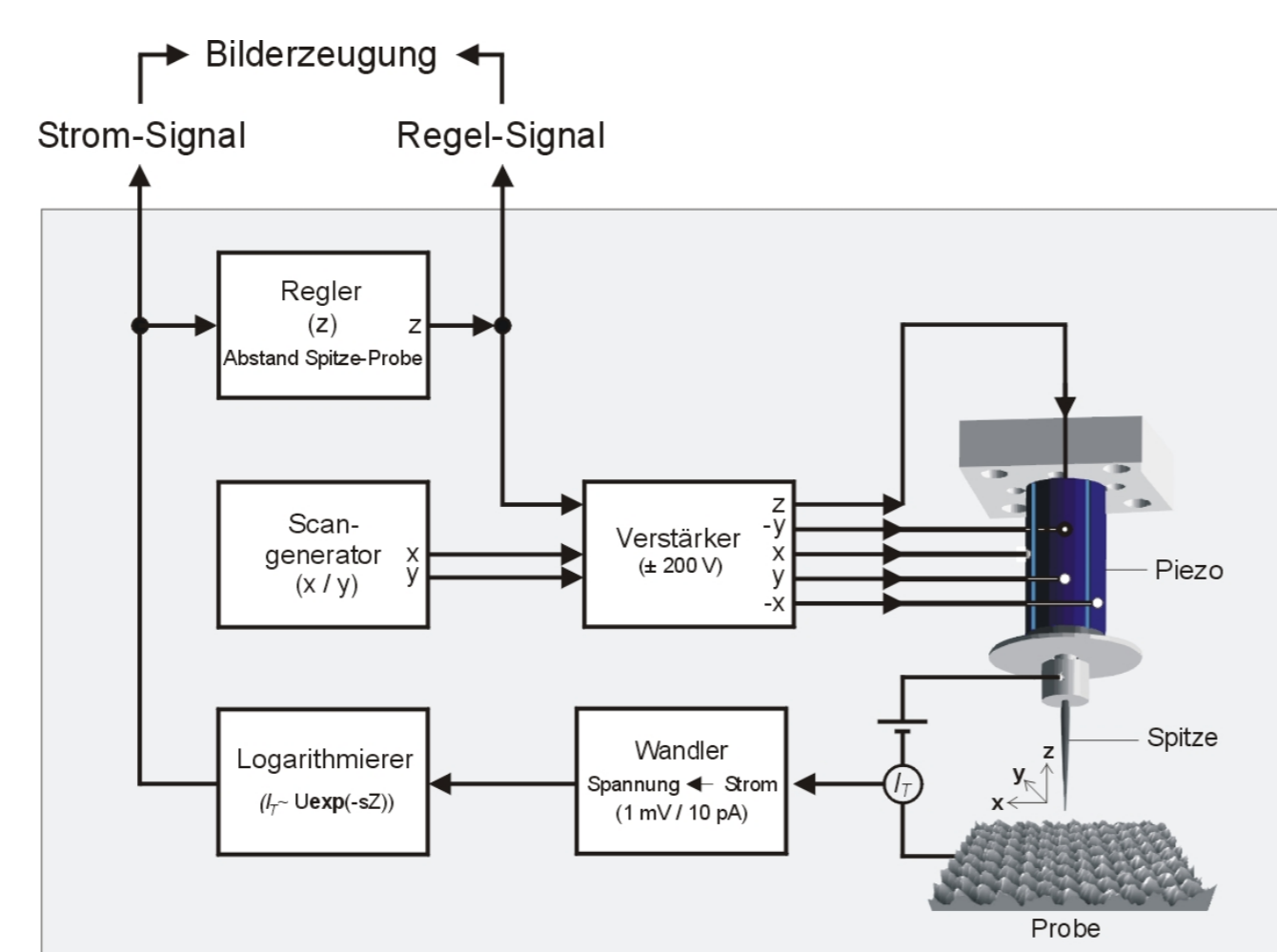


Abbildung 3: Aufbau eines Rastertunnelmikroskops.

Die Positionierung der Spitze erfolgt mit mehreren Piezo-Kristallen wie in Abb. 3 angedeutet.

C | Festkörperphysik und Charge Density Waves

Die Festkörperphysik beschreibt die elektronischen Eigenschaften von Materie durch die Superposition durch periodische Potentiale gestörter Elektronenwellen (\rightarrow Blochwellen). Diese werden mit Wellenvektoren K indiziert und bestimmen durch ihre Energie $\epsilon(K)$ die *Dispersionsrelation* (Bsp. Abb. 4).

- Die **Fermienergie** ϵ_F bzw. die zgh. Kreiswellenzahl k_F beschreiben bei $T = 0K$ die höchste Energie besetzter Zustände.
- Die **Zustandsdichte** $D(\epsilon)$ gibt die Anzahl der Zustände pro Volumen im Energieintervall $[\epsilon, \epsilon + d\epsilon]$ an.
- Beim STM wird die **räumliche Variation** von $D(\epsilon_F) \equiv \rho_F^P$ abgebildet.
- Diese ist i.d.R. *gitterperiodisch* mit Gitterkonstante a , kann aber durch tieferliegende Atom-schichten manipuliert werden (\rightarrow HOPG).

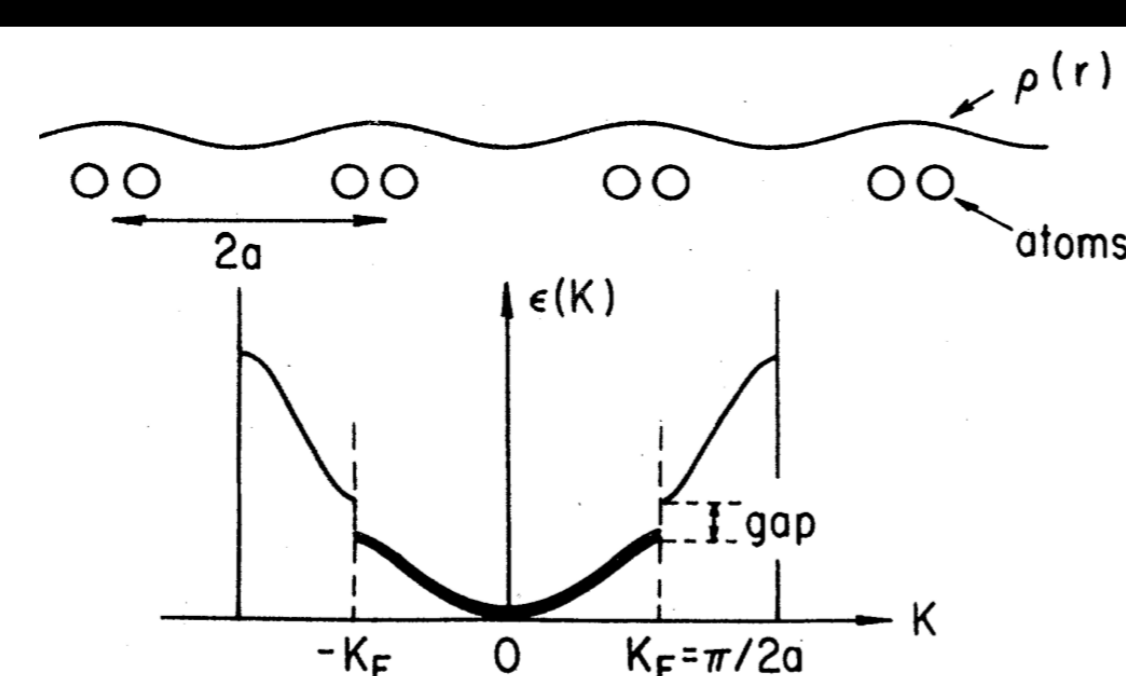


Abbildung 4: Dispersionsrelation bei Materialien mit CDWs.

- In niedrigdimensionalen Materialien ($D=1,2$) kann es für $T \rightarrow 0K$ zu einem **Phasenübergang** kommen \rightarrow **Charge Density Waves** [2].
- Der CDW Grundzustand erzeugt eine Bandlücke an der Fermikante K_F (siehe Abb. 4).
- Die CDW erzeugt eine **Modulation der Zustandsdichte** $D(\epsilon)$ mit Wellenvektor $q = 2K_F$ (bei TaS_2 nachweisbar) sowie eine Deformation des Atomgitters.

D | Bildanalyse

Die Bildanalyse spielt bei der Auswertung von STM Rohdaten eine entscheidende Rolle. Hierbei gilt es **Raumfrequenzen**, wie sie durch gitterperiodische Strukturen hervorgerufen werden, in Verrauschten Bildern zu identifizieren. Dies gelingt mit der 2D diskreten Fouriertransformation: (Bildgröße $M \times N$ Pixel, Helligkeitswerte $a_{m,n}$)

$$\hat{a}_{k,l} = \sum_{m=0}^{M-1} \sum_{n=0}^{N-1} a_{m,n} \cdot e^{-2\pi i \cdot \frac{mk}{M}} e^{-2\pi i \cdot \frac{nl}{N}} \quad (4)$$

In der folgenden Auswertung werden die im Fourierraum bereinigten und anschließend zurücktransformierten Bilder mit den Rohdaten verglichen. Dabei wird $|\hat{a}_{k,l}|$ dargestellt.

1 | Abbildung des Eichgitters

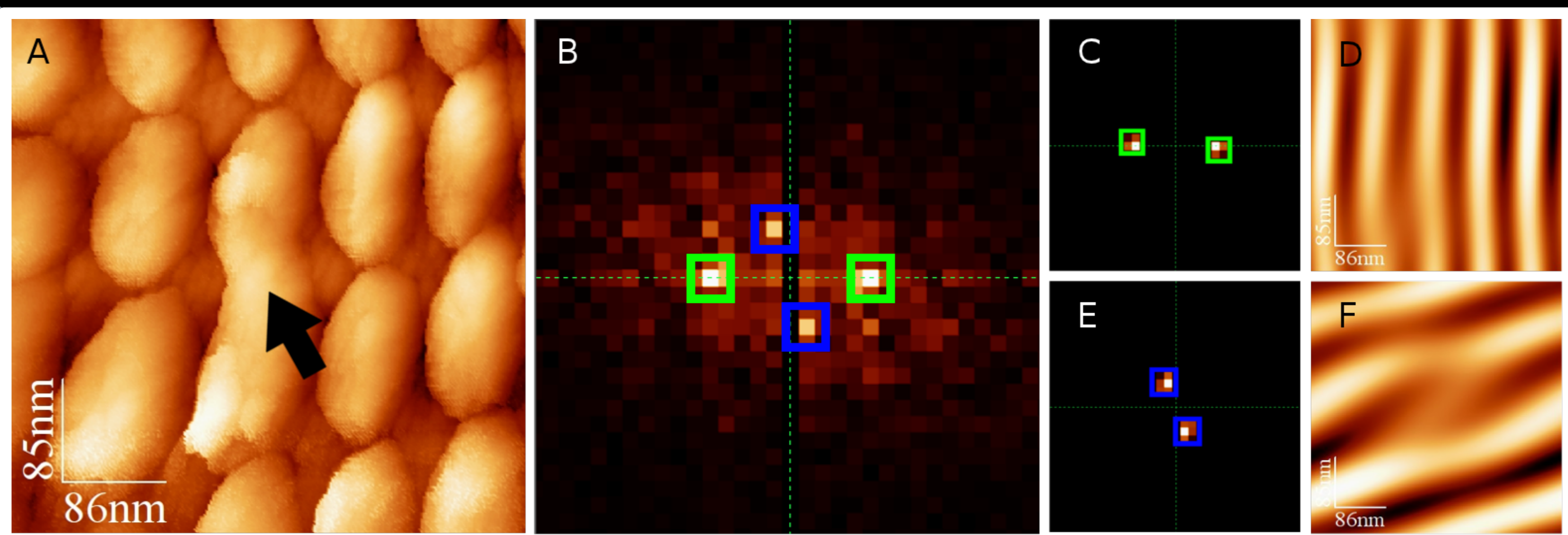


Abbildung 5: Topographie des Eichgitters im Ortsraum (A) und Fourierraum (B) sowie manipulierte Kopien davon (C-F).

- A** zeigt die Topographie eines 100nm-Eichgitters im Ortsraum. Offensichtlich wurde hier eine Zelle mit fehlendem Steg abgebildet (siehe Pfeil).
- B** zeigt die dieselbe Grafik im Fourierraum.
- D** zeigt die dominante waagerechte Raumfrequenz im Ortsraum (**C** im Fourierraum).
- F** zeigt die dominante senkrechte Raumfrequenz im Ortsraum (**E** im Fourierraum).

2 | Die Gitterkonstante von Graphit

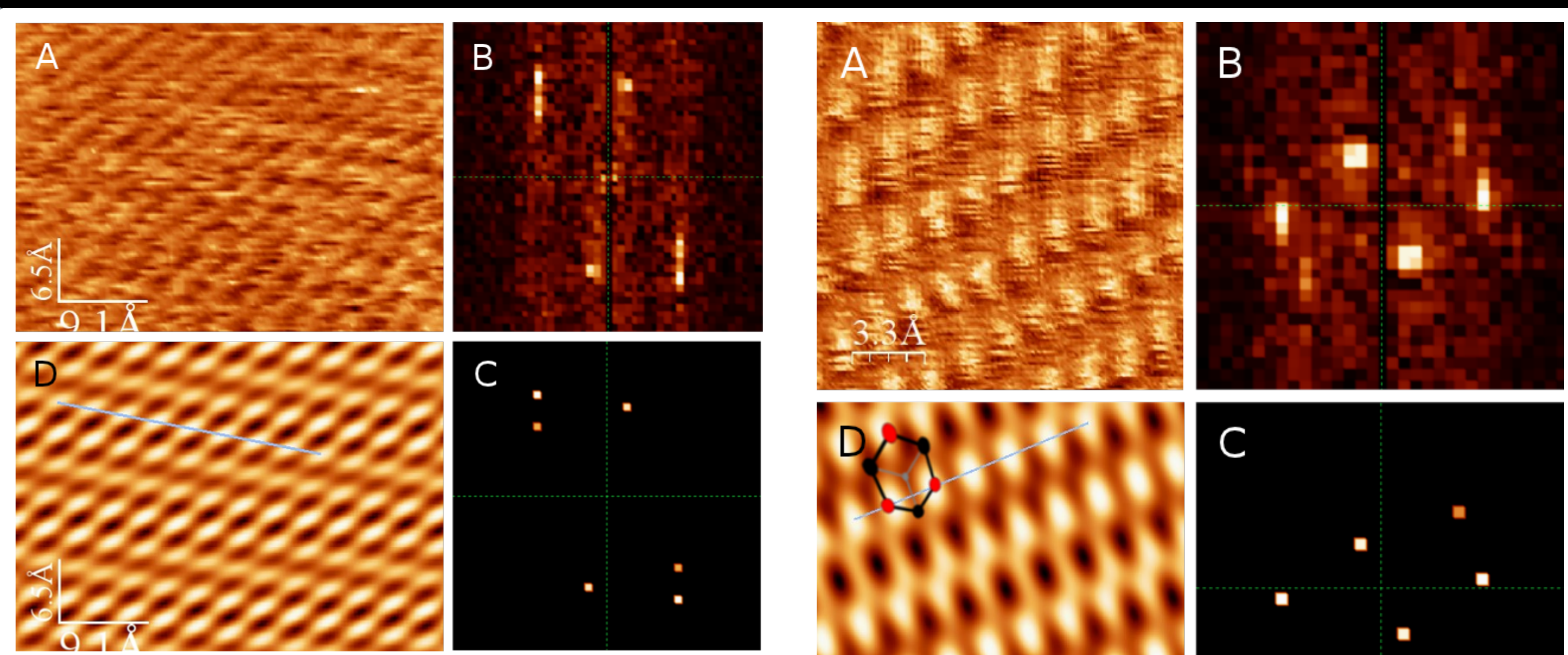


Abbildung 6: Topographie des HOPG im Ortsraum (A,D) und Fourierraum (B,C) aufgenommen im CCM.

- A** zeigt die originale CCM Aufnahme von HOPG.
- D** zeigt die im Ortsraum gefilterte Aufnahme. Die graue Linie dient zur Messung der Abstände zweier Maxima (hell, z groß). Für die Gitterkonstante ergibt sich $a_1[\text{HOPG}] = \frac{0.33}{\sqrt{3}} \text{ nm} = 1.9 \text{ \AA}$.
- Der Faktor $3^{-1/2}$ ergibt sich aus der Lage des Hexagons bezüglich der abgebildeten Kontrastlandschaft (vgl. Abb. 7 D).

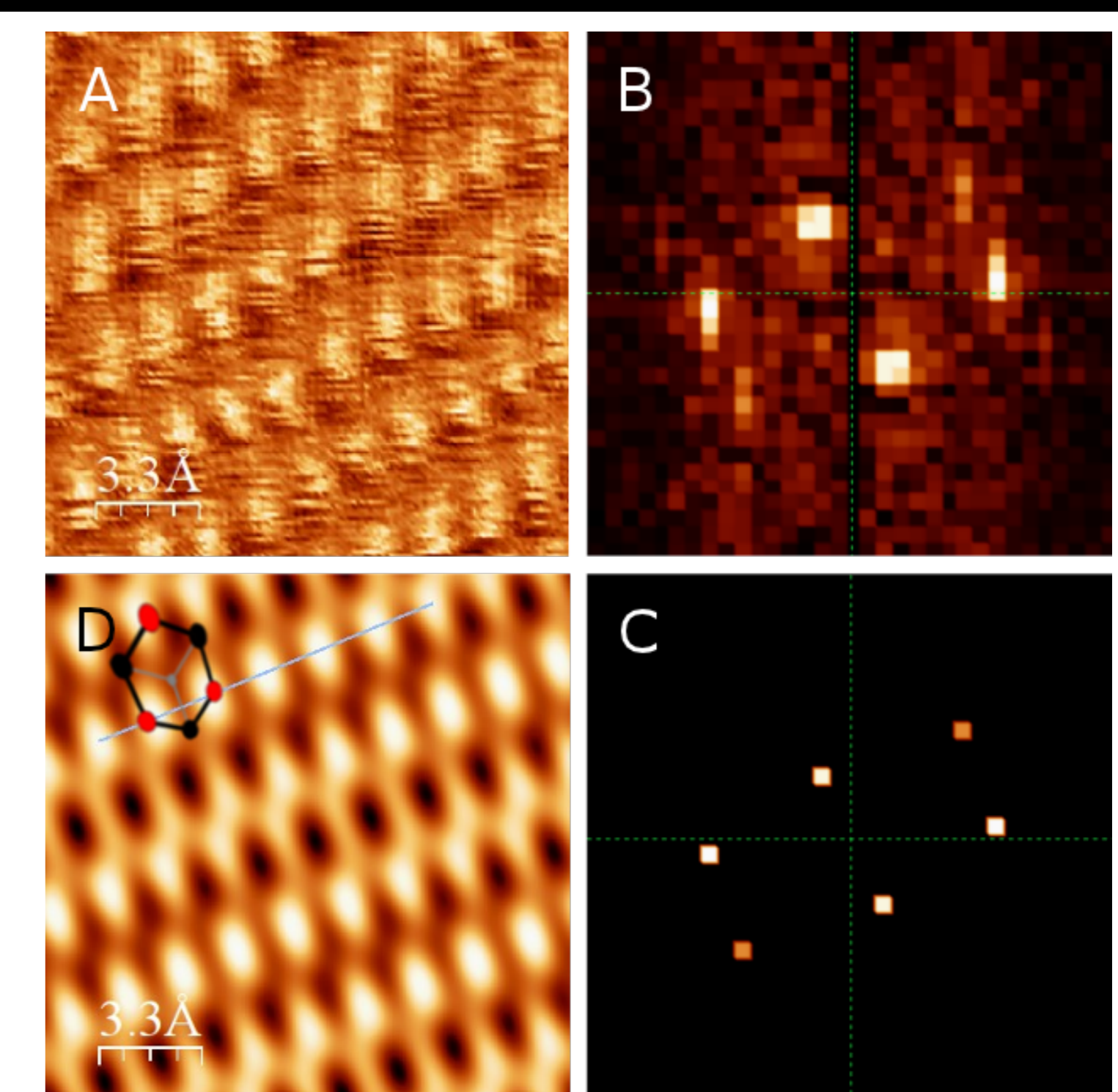


Abbildung 7: Topographie des HOPG im Ortsraum (A,D) und Fourierraum (B,C) aufgenommen im CHM.

- A** zeigt die originale CHM Aufnahme von HOPG.
- D** zeigt die viergefilterte Aufnahme. Vom (verzerrt) abgebildeten hexagonalen Gitter des HOPG erscheinen nur die Atome *ohne* nächsten Nachbarn in der darunterliegenden Schicht heller (rot) $\rightarrow a_2[\text{HOPG}] = \frac{0.21}{\sqrt{3}} \text{ nm} = 1.2 \text{ \AA}$

3 | Charge Density Waves bei Tantaldisulfid

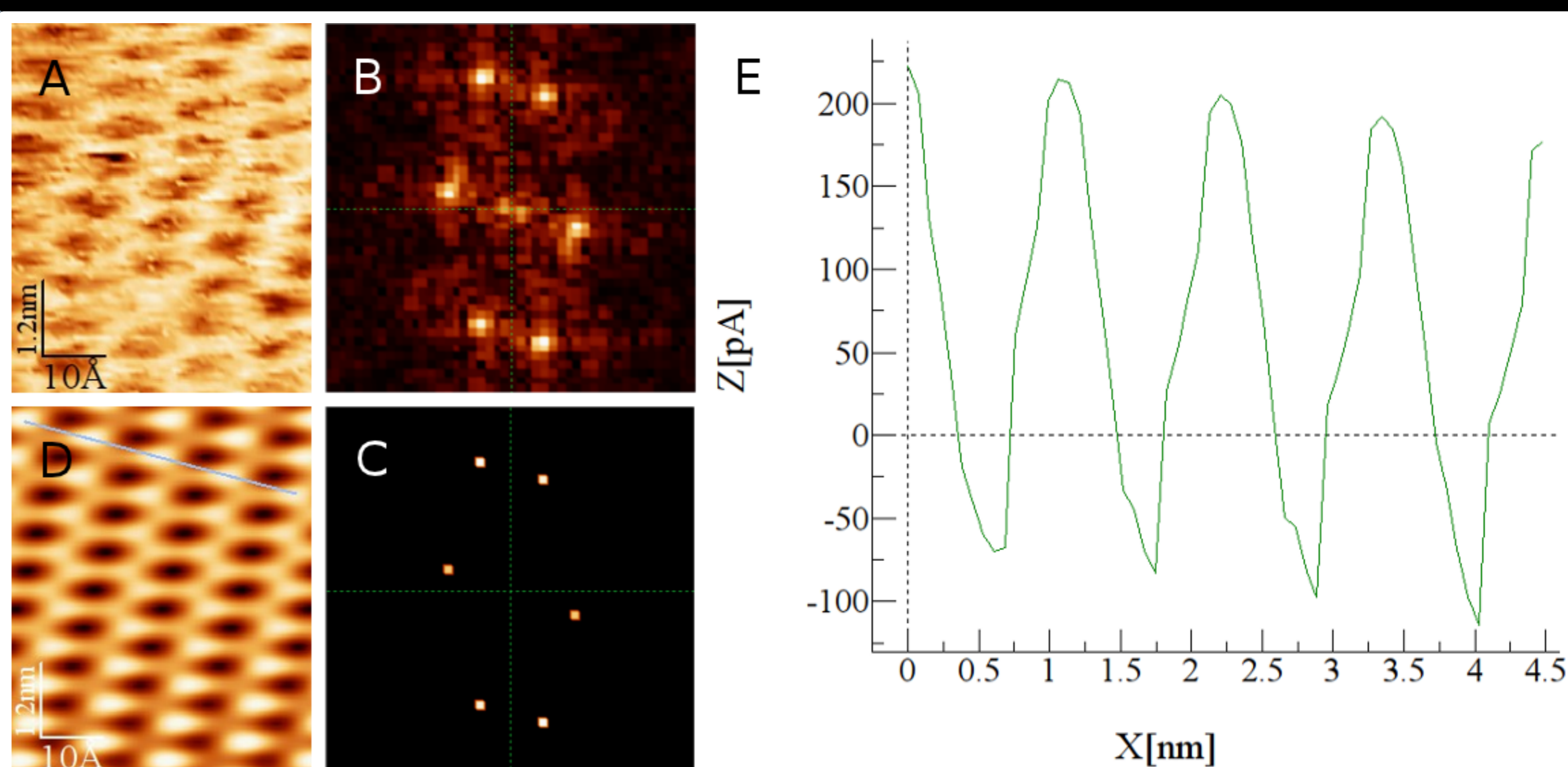


Abbildung 8: Die CDW von TaS_2 im Orts- (A,D) und Fourierraum (B,C) und das Intensitätsprofil (E) (vgl. graue Linie in D).

- A** zeigt die unbearbeitete CHM-Aufnahme der CDW in TaS_2 . Das atomare Gitter ist hier nicht zu erkennen.
- B** zeigt die unbearbeitete Aufnahme im Fourierraum. Diese wird bereinigt (**C**) und zurücktransformiert (**D**).
- E** zeigt das Intensitätsprofil (und damit das Profil der elektronischen Zustandsdichte) entlang der grauen Linie in (**D**).
- Dieses erlaubt die Berechnung der Gitterkonstanten der CDW zu $a_{CDW}[\text{TaS}_2] = \frac{1}{4} \cdot 4.48 \text{ nm} = 11.2 \text{ \AA}$.
- Da uns die Abbildung der atomaren Struktur (Literaturwert: $a_0 = 0.33 \text{ nm}$) *nicht* gelang, können wir aus den experimentellen Daten weder auf die Orientierung des Übergitters der CDW zum atomaren Gitter schließen noch Aussagen über deren Komensurabilität treffen.

Zusammenfassung & Literatur

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurde

- die **Gitterkonstante von HOPG** als Mittelwert je einer CHM und CCM Messung zu $\bar{a}[\text{HOPG}] = 1.6 \text{ \AA}$ bestimmt (vgl. Literaturwert: $a[\text{HOPG}] = 1.415 \text{ \AA}$).
 - die **Gitterkonstante von TaS_2** nicht bestimmt, da kein atomar auflösendes Bild erstellt werden konnte. Dies lässt sich auf die schwierige Präparation der Tunnelspitzen zurückführen.
 - die **Gitterkonstante der CDW von TaS_2** zu $a_{CDW}[\text{TaS}_2] = 11.2 \text{ \AA}$ bestimmt. (vgl. Literaturwert: $a_{CDW}[\text{TaS}_2] = 3.5 \cdot 0.33 \text{ nm} = 11.55 \text{ \AA}$).
- Zu diesem Zweck wurden atomare Lagen der Substrate mit einem Rastertunnelmikroskop abgetastet.

Literatur:

- I. Horcas, R. Fernandez, J. M. Gomez-Rodriguez, J. Colchero, J. Gomez-Herrero, and A. M. Baro. Wsxn: A software for scanning probe microscopy and a tool for nanotechnology. *Review of Scientific Instruments*, 78(1):8, 2007.
- H. Mutka, L. Zuppiroli, P. Molinié, and J. C. Bourgoin. Charge-density waves and localization in electron-irradiated $1t - \text{tas}_2$. *Phys. Rev. B*, 23(10):5030–5037, May 1981.
- J. Tersoff and D. R. Hamann. Theory of the scanning tunneling microscope. *Phys. Rev. B*, 31(2):805–813, Jan 1985.