# SPA-LEED-Untersuchungen zur Wachstumsmorphologie ultradünner Magnetitschichten auf $SrTiO_3(001)$

MASTERARBEIT

vorgelegt im Rahmen der Prüfung für den Studiengang Master Physik am Fachbereich Physik der Universität Osnabrück

Autor: Matrikelnummer: Erstprüfer: Zweitprüfer:

Tim Kleideiter 963887 Prof. Dr. Joachim Wollschläger Dr. Florian Bertram

Osnabrück, 28.2.2023

## Inhaltsverzeichnis

1	Einl	eitung	1
2	The	oretische Grundlagen	3
	2.1	Grundlagen der Oberflächenphysik	3
	2.2	LEED – Beugung niederenergetischer Elektronen	5
		2.2.1 Prinzipien der Elektronenbeugung	5
		2.2.2 Kinematische Beugungstheorie	8
		2.2.3 Vertikale Rauheit	12
		2.2.4 Laterale Rauheit	13
		2.2.5 Zweidimensionale Profile	16
		2.2.6 Instrumentelle Verbreiterung	18
		2.2.7 Domänen	19
		2.2.8 Positionsabweichungen	20
		2.2.9 Inhomogenitäten	22
	2.3	XRR – Röntgenreflektometrie	23
3	Mat	erialien	27
	3.1	$SrTiO_3$ – Strontiumtitanat	27
	3.2	$\operatorname{Fe}_3\operatorname{O}_4$ – Magnetit	27
4	Ехр	erimentelle Grundlagen	29
	4.1	Vakuumkammer	29
	4.2	Propenpräparation	30
	4.3	SPA-LEED-Instrument	31
	4.4	XRR-Aufbau	32
F	Μο	serengebnisse	22
5	5.1	SPA-LEED-Messungen an den SrTiO <sub>s</sub> (001)-Substraten	<b>3</b> 3
	0.1	5.1.1 Beugungshilder	33
		5.1.2 Profilanalyse	30 34
		513 Terrassenlängenverteilung	רק 10
		5.1.6 for a spectrum generation and generation a	$\frac{10}{43}$
		515 Inhomogenitäten	16 16
	52	XBR-Ergebnisse	10 19
	5.2	SPA-LEED-Messungen an den Magnetitschichten	10 51
	0.0	5.3.1 Beugungshilder	51
		5.3.2 Profilanalyse	54
		5.3.3 Integrierte Intensität	55
		5.3.4 Halbwertsbreite	50 64
			~ 1

6	Zusammenfassung und Ausblick	71
7	Summary	73
Lit	eraturverzeichnis	75

## 1 Einleitung

Dünne Eisenoxidschichten sind aufgrund ihrer vielfältigen physikalischen und chemischen Eigenschaften von großem Interesse [1–3]. Zu den Eisenoxiden gehört Magnetit (Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>), welches als bekanntestes ferrimagnetisches Material gilt [4]. In letzter Zeit ist das Interesse an Magnetit aufgrund möglicher Anwendungen im Bereich der Spintronik gestiegen, da ihm eine Spinpolarisation von 100 % vorhergesagt wird [5, 6]. In der Spintronik werden spinabhängige Ströme ausgenutzt, die unter anderem in der Form von magnetischen Tunnelkontakten in Sensoren oder Datenspeichern zur Anwendung kommen können [7, 8]. Die spinabhängigen Eigenschaften von Magnetit sind jedoch in spintronischen Bauteilen bisher hinter den Erwartungen zurückgeblieben, was vermutlich auf Grenzflächeneffekte zurückzuführen ist [9, 10]. Für die Spintronik werden dünne Schichten benötigt, deren magnetische und elektronische Eigenschaften sich von denen im Volumen unterscheiden [7]. Daher ist ein weiteres Verständnis und eine Kontrolle des Wachstums und der Oberflächeneigenschaften von Magnetit notwendig [2, 10].

Zur Untersuchung der Struktur und des Wachstums dünner Schichten werden oberflächensensitive Methoden verwendet [11]. Während mikroskopische Methoden eine bessere Abbildung der Einzelheiten der Oberfläche ermöglichen, können mit Elektronenbeugung einfacher statistische Aussagen über die Struktur getroffen werden [12, 13]. Die Analyse der Profile der Beugungsreflexe mittels SPA-LEED (*Spot Profile Analysis Low-Energy Electron Diffraction*) liefert dabei Erkenntnisse über die Oberflächenmorphologie, welche über die Ergebnisse einer einfachen Analyse des Beugungsmusters hinausgehen [14].

Für die Herstellung dünner Magnetitschichten bietet sich MgO(001) mit einer Gitterfehlanpassung von -0.32% als Substrat an [15]. Dessen Verwendung führt jedoch ab Temperaturen von 250 °C zu einer Interdiffusion des Magnesiums in die Magnetitschicht, weshalb unter anderem auch Strontiumtitanat (SrTiO<sub>3</sub>) trotz der hohen Gitterfehlanpassung von 7,51 % als Substrat verwendet wird [2, 15, 16]. Zudem konnten mittels reaktiver Molekularstrahlepitaxie auf SrTiO<sub>3</sub>(001) bei niedrigen Temperaturen bereits Schichten mit einer besseren Ordnung im Vergleich zu bei ähnlichen Bedingungen auf MgO(001) hergestellten Schichten gebildet werden [17]. Zur Untersuchung mittels SPA-LEED gibt es jedoch bei Eisenoxiden bisher wenig systematische Studien [15].

Aus diesem Grund wird in dieser Arbeit das Wachstum von  $Fe_3O_4$  auf  $SrTiO_3(001)$ mittels reaktiver Molekularstrahlepitaxie anhand von SPA-LEED-Messungen untersucht. In Kapitel 2 werden die theoretischen Grundlagen zu den verwendeten Messmethoden dargestellt. Kapitel 3 stellt die untersuchten Materialien vor, während die experimentellen Grundlagen zur Herstellung der Proben und Durchführung der Messungen in Kapitel 4 beschrieben werden. Die Auswertung der Messergebnisse

## 1 EINLEITUNG

wird in Kapitel 5 dargestellt. Zum Abschluss folgen in Kapitel 6 eine Zusammenfassung der Ergebnisse und ein Ausblick auf mögliche weiterführende Untersuchungen. Die Zusammenfassung wird in Kapitel 7 in englischer Sprache wiederholt.

## 2 Theoretische Grundlagen

In diesem Kapitel werden die theoretischen Grundlagen der verwendeten Messmethoden erläutert. Dazu wird zunächst das Gebiet der Oberflächenphysik vorgestellt, um danach genauer auf die Beugung niederenergetischer Elektronen und die Profilanalyse von Beugungsreflexen zur Bestimmung der Morphologie von Oberflächen einzugehen. Des Weiteren wird das Prinzip der Röntgenreflektometrie zur Untersuchung von Schichtsystemen erklärt.

## 2.1 Grundlagen der Oberflächenphysik

An der Oberfläche eines Kristalls wird seine dreidimensionale Periodizität in einer Raumrichtung aufgehoben. Dadurch ergeben sich Phänomene, welche die Oberfläche vom Volumenkristall unterscheiden. Dieses Kapitel stellt einige Grundlagen der Oberflächenphysik vor und wurde anhand von [18, 19] erstellt.

Aus dem Volumengitter ergibt sich an der Oberfläche ein zweidimensionales Gitter, das mit zwei Basisvektoren  $\vec{a_1}$  und  $\vec{a_2}$  beschrieben werden kann. Aus ganzzahligen Vielfachen der Basisvektoren ergeben sich die Translationsvektoren

$$\vec{T} = n_1 \vec{a_1} + n_2 \vec{a_2} \quad \text{mit } n_1, n_2 \in \mathbb{Z}.$$
 (2.1)

Mit diesen lassen sich von einem beliebigen Ort  $\vec{r_0}$  aus durch die Operation

$$\vec{r} = \vec{r_0} + \vec{T} \tag{2.2}$$

Orte  $\vec{r}$  erreichen, an denen das Gitter identisch aussicht. Wenn sich dabei mit den möglichen  $\vec{T}$  alle identisch ausschenden Orte erreichen lassen, werden die Basisvektoren als primitiv bezeichnet.

An der Oberfläche können sich Überstrukturen durch Adsorbate und Rekonstruktionen bilden [20]. Eine Rekonstruktion der Oberfläche kann durch ungesättigte Bindungen hervorgerufen werden. Diese treten bei Oberflächenatomen auf, da nicht alle üblichen Nachbarn des Volumengitters vorhanden sind. Dadurch formen sich neue Bindungen, die zu einer Verschiebung der Atome führen können, sodass Änderungen des Kristallgitters im Vergleich zur Volumenstruktur entstehen. Die neue Struktur wird dann als Überstruktur bezeichnet und analog zu Gleichung 2.1 mit den beiden primitiven Basisvektoren  $\vec{b_1}$  und  $\vec{b_2}$  beschrieben. Wenn diese um den gleichen Winkel  $\varphi$  zu den beiden aus dem Volumengitter resultierenden primitiven Basisvektoren  $\vec{a_1}$ und  $\vec{a_2}$  rotiert sind, kann zur Beschreibung die Notation nach Wood [21] verwendet werden, die vereinfacht

$$\left(\frac{|\vec{b_1}|}{|\vec{a_1}|} \times \frac{|\vec{b_2}|}{|\vec{a_2}|}\right) R\varphi \tag{2.3}$$

lautet. R $\varphi$  steht für die Rotation um den Winkel  $\varphi$  in Grad und wird bei  $\varphi = 0^{\circ}$  üblicherweise weggelassen.

Die in dieser Arbeit verwendete Epitaxie bezeichnet das Wachstum eines Kristallfilms auf einem Kristallsubstrat mit einheitlicher Orientierung. Weiterhin wird in Homoepitaxie und Heteroepitaxie unterteilt, je nachdem ob Film und Substrat aus dem gleichen oder aus verschiedenen Materialien bestehen. Beim heteroepitaktischen Wachstum unterscheidet sich die Gitterkonstante  $a_s$  des Substrats von der Gitterkonstanten  $a_f$  des Films, was mit der Gitterfehlanpassung

$$\varepsilon = \frac{(a_{\rm f} - a_{\rm s})}{a_{\rm s}} \tag{2.4}$$

ausgedrückt werden kann. Es sind zwei Wachstumsarten möglich, welche in Abbildung 2.1 dargestellt sind.



**Abbildung 2.1:** Schematische Darstellung des heteroepitaktischen Wachstums. (a) Beim pseudomorphen Wachstum passt sich der laterale Gitterparameter des Films dem Gitterparameter  $a_s$  des Substrats an. Der vertikale Gitterparameter ändert sich zu  $a_{ps}$ . (b) Durch den Einbau von Versetzungen relaxiert der Film zu seinem Volumengitterparameter  $a_f$ . Adaptiert aus [22].

Der Film kann pseudomorph wachsen, indem er die laterale Gitterkonstante des Substrats übernimmt. Auch die vertikale Gitterkonstante ändert sich üblicherweise, damit das Volumen der Einheitszelle erhalten bleibt. Dieses Wachstum herrscht für kleine Gitterfehlanpassungen und geringe Schichtdicken vor, bei denen die Verzerrung im Vergleich zum Einbau von Versetzungen, die zu fehlenden Bindungen führen, energetisch günstiger ist. Ab einer kritischen Schichtdicke ist jedoch das Volumen des Films groß genug, dass Versetzungen, mit denen der Film zur eigenen Volumeneinheitszelle relaxieren kann, bevorzugt werden. Die kritische Schichtdicke ist umso kleiner, je größer die Gitterfehlanpassung ist, weil mit ihr die Verzerrung des Films ansteigt.

## 2.2 LEED – Beugung niederenergetischer Elektronen

Zur Untersuchung der Morphologie von Oberflächen eignet sich die Beugung niederenergetischer Elektronen (*Low-Energy Electron Diffraction*, LEED). Die Prinzipien der Elektronenbeugung werden in Kapitel 2.2.1 erklärt, das mit Informationen aus [11, 14, 18, 23, 24] zusammengestellt wurde. In den weiteren Kapiteln wird die Analyse des Intensitätsprofils von Beugungsreflexen erläutert. Die Kapitel 2.2.2 bis 2.2.5 orientieren sich an [25] und erklären die kinematische Beugungstheorie sowie die Ermittlung von vertikalen und lateralen Rauheiten aus der Verbreiterung durch Stufen, wobei auch auf zweidimensionale Profile eingegangen wird. Kapitel 2.2.6 behandelt die instrumentelle Verbreiterung und beruht auf der Grundlage von [26]. In Kapitel 2.2.7 wird die Reflexverbreiterung durch Domänen mit Informationen aus [14, 27–29] betrachtet. In Kapitel 2.2.8 werden die Auswirkungen von Positionsabweichungen anhand von [14, 30] beschrieben. Kapitel 2.2.9 geht auf Inhomogenitäten ein und folgt den Ausführungen in [31].

## 2.2.1 Prinzipien der Elektronenbeugung

Beim LEED-Experiment wird ein Strahl aus Elektronen im niederenergetischen Bereich zur Untersuchung von Oberflächen verwendet. Um die Beugung durch elastische Streuung im Material zu untersuchen, werden die wieder aus der Oberfläche austretenden Elektronen detektiert.

## Beugung durch elastische Streuung

Bei der elastischen Streuung wird das Elektron vom elektrischen Potential der Atome abgelenkt, wobei seine Energie erhalten bleibt. Aufgrund der Welleneigenschaften von Elektronen kann dies zu einem Beugungsmuster führen. Weil die Wellenlänge von niederenergetischen Elektronen im Bereich der Atomabstände liegt, müssen sich dazu Elektronen überlagern, die an unterschiedlichen Atomen elastisch gestreut wurden.

Neben dieser Streuung können die Elektronen mit kollektiven Anregungen von z. B. Plasmonen oder Phononen im Kristall wechselwirken. Dies geht mit einer Änderung der Energie der Elektronen einher, sodass es sich um inelastische Streuung handelt. Dabei kann es auch zu einer Änderung der Richtung durch Impulsübertrag kommen. Weil die inelastische Streuung so das Beugungsbild beeinträchtigt, werden üblicherweise nur die elastisch gestreuten Elektronen betrachtet. Bei Phononenanregungen besteht die Besonderheit, dass sich die Energie nur minimal ändert, während eine signifikante Änderung der Richtung erfolgen kann. Die auf diese Weise gestreuten Elektronen sind schwierig von den elastisch gestreuten Elektronen zu trennen. Darum können sie das Beugungsbild beeinflussen, worauf in Kapitel 2.2.8 genauer eingegangen wird.

Die inelastische Streuung kann mit einer inelastischen mittleren freien Weglänge berücksichtigt werden. Sie gibt die Länge des Weges an, den ein Elektron durch-

schnittlich zurücklegen kann, bevor es inelastisch gestreut wird. Für die verwendeten niederenergetischen Elektronen liegt sie im Bereich mit den geringsten Werten von wenigen Atomlagen. Damit lässt sich die Oberflächenempfindlichkeit der Messmethode erklären, da der Anteil ausschließlich elastisch gestreuter Elektronen mit der Eindringtiefe abnimmt. Die Streuzentren tragen somit umso stärker zur Messung bei, je näher sie sich an der Oberfläche befinden.

#### Modifizierte Ewald-Konstruktion beim SPA-LEED

Beim sogenannten SPA-LEED (Spot-Profile-Analysis-LEED) werden die Intensitätsprofile der Beugungsreflexe untersucht, um Informationen über die Oberflächenmorphologie zu erhalten. Dazu wird im Allgemeinen eine spezielle Versuchsanordnung verwendet, die in Kapitel 4.3 genauer beschrieben wird. Dabei wird der Winkel  $\alpha$ zwischen einfallendem und vom Detektor beobachteten ausfallenden Strahl konstant gehalten. Das Beugungsbild wird durch Variation der Richtung der beiden Strahlen gegenüber der Oberfläche aufgenommen.

Dieses Prinzip ist mit einer modifizierten Form der Ewaldkonstruktion nachzuvollziehen, die in Abbildung 2.2 gezeigt wird. Als Grundlage wird dafür das reziproke Gitter verwendet. Dabei ist zu beachten, dass sich aus dem zweidimensionalen Gitter der Oberfläche im dreidimensionalen reziproken Raum sogenannte Beugungsstangen bilden. Dies liegt daran, dass senkrecht zur Oberfläche keine Periodizität vorhanden ist, was einer in dieser Richtung gegen unendlich laufenden Periodenlänge entspricht. Dies führt im reziproken Raum dazu, dass die Abstände der Gitterpunkte senkrecht zur Oberfläche verschwinden, sodass sie in Stangen übergehen. Die Position der reziproken Gitterstangen ist durch die Komponente

$$\vec{G}_{\parallel} = h\vec{a_1^*} + k\vec{a_2^*} \quad \text{mit } h, k \in \mathbb{Z}$$

$$(2.5)$$

des reziproken Gittervektors  $\vec{G}$  parallel zur Oberfläche gegeben, wobei sich die reziproken Basisvektoren  $\vec{a_1^*}$  und  $\vec{a_2^*}$ über

$$\vec{a_1^*} = 2\pi \frac{\vec{a_2} \times \vec{e_\perp}}{|\vec{a_1} \times \vec{a_2}|} \quad \text{und} \quad \vec{a_2^*} = 2\pi \frac{\vec{e_\perp} \times \vec{a_1}}{|\vec{a_1} \times \vec{a_2}|}$$
(2.6)

aus den Basisvektoren  $\vec{a_1}$  und  $\vec{a_2}$  des Oberflächengitters im Realraum und dem Einheitsvektor  $\vec{e_{\perp}}$  senkrecht zur Oberfläche ergeben. Der reziproke Raum wird dabei üblicherweise in Einheiten der Brillouinzone (BZ) dargestellt, sodass sich die Stangen eines quadratischen Gitters mit der Gitterkonstanten *a* bei Vielfachen von  $100 \,\%\text{BZ} = \frac{2\pi}{a}$  in Richtung der reziproken Basisvektoren befinden.

Da nur die elastische Streuung betrachtet wird, besitzt der Wellenvektor  $\vec{k_r}$  des ausfallenden Strahls den gleichen Betrag wie der Wellenvektor  $\vec{k_e}$  des einfallenden Strahls. Weil zudem der Winkel  $\alpha$  zwischen einfallendem und ausfallendem Strahl konstant gehalten wird, muss der Betrag  $|\vec{K}|$  des Streuvektors  $\vec{K} = \vec{k_r} - \vec{k_e}$  konstant bleiben. Er wird gemäß  $|\vec{K}| \propto |\vec{k_e}| \propto \sqrt{E}$  von der Energie E der Elektronen festgelegt. Durch Variation des Winkels  $\varepsilon$  gegenüber der Oberflächensenkrechten ändert



Abbildung 2.2: Modifizierte Ewaldkonstruktion für ein SPA-LEED-Instrument. Der Winkel  $\alpha$  zwischen einfallendem Strahl  $\vec{k_{\rm e}}$  und ausfallendem Strahl  $\vec{k_{\rm r}}$  bleibt konstant. Die möglichen Streuvektoren  $\vec{K} = \vec{k_{\rm r}} - \vec{k_{\rm e}}$  bilden eine Kugel um den Ursprung des reziproken Gitters. Es zeigen sich Beugungsreflexe für die Winkel  $\varepsilon$ gegenüber der Oberflächensenkrechten, bei denen die Kugel die Beugungsstangen des reziproken Gitters der Oberfläche schneidet. Erstellt nach [14, 32, 33].

sich die Richtung von  $\vec{K}$  und die möglichen Streuvektoren bilden eine Kugel mit dem Radius  $|\vec{K}|$ . Für konstruktive Interferenz muss die Lauebedingung  $\vec{K} = \vec{G}$  erfüllt sein. Um diese Bedingung zu konstruieren, wird der Startpunkt des Streuvektors und damit das Zentrum der Kugel auf den Ursprung des reziproken Raums am Ort (000) gesetzt. Dann ergeben sich Beugungsreflexe für Schnittpunkte der Beugungsstangen des reziproken Gitters mit der Kugel. Da die Beugungsstangen des Oberflächengitters senkrecht zur Oberfläche verlaufen, ist nur die Bedingung  $\vec{K_{\parallel}} = \vec{G_{\parallel}}$  für die parallelen Komponenten relevant. Die Reflexe werden daher als (hk)-Reflexe mit den entsprechenden Werten für h und k aus Gleichung 2.5 gekennzeichnet, wobei zu (hk) symmetrisch äquivalente Reflexe durch  $\{hk\}$  zusammengefasst werden.

Weil die Elektronen in das Material eindringen, bildet die Elektronenbeugung nicht nur das zweidimensionale Oberflächengitter ab, sondern wird auch von der Periodizität senkrecht zur Oberfläche beeinflusst. Allerdings wird dieser Einfluss durch die Eindringtiefe aufgrund der inelastischen freien Weglänge begrenzt, sodass sich für diesen Fall im reziproken Raum eine Mischung aus Stangen und Punkten ergibt. Damit hängt die Intensität der Beugungsreflexe von der senkrechten Komponente  $K_{\perp}$  des Streuvektors ab, die durch seinen Betrag, d. h. durch die Energie E, festgelegt wird. Außerdem besitzt der Streuprozess eine stark durch Mehrfachstreuung beeinflusste Energieabhängigkeit. Dadurch ergibt sich eine weitere Änderung der Intensität entlang der Stangen.

Wenn die parallele Komponente  $K_{\parallel}$  des Streuvektors bekannt ist, kann  $K_{\perp}$  aus der Energie E berechnet werden. Wie sich anhand von Abbildung 2.2 nachvollziehen lässt, gilt

$$|\vec{K}| = 2 \,|\vec{k_{\rm e}}| \cos\left(\frac{\alpha}{2}\right) = \frac{4\pi}{\lambda} \cos\left(\frac{\alpha}{2}\right) \,. \tag{2.7}$$

Mit der Relation  $\lambda/\text{\AA}\approx\sqrt{\frac{150,4}{E/\text{eV}}}$ der De-Broglie-Wellenlänge $\lambda$ zur Energie führt dies zu

$$|\vec{K}|/\text{\AA}^{-1} \approx \frac{4\pi}{\sqrt{150,4}} \cos\left(\frac{\alpha}{2}\right) \sqrt{E/\text{eV}}.$$
 (2.8)

Weiterhin lässt sich sehen, dass

$$K_{\perp} = \sqrt{|\vec{K}|^2 - K_{\parallel}^2}$$
(2.9)

gilt, sodass sich zusammen mit der Relation zur Energie aus Gleichung 2.8

$$K_{\perp}/\text{\AA}^{-1} \approx \sqrt{\left(\frac{4\pi}{\sqrt{150,4}}\cos\left(\frac{\alpha}{2}\right)\sqrt{E/\text{eV}}\right)^2 - \left(K_{\parallel}/\text{\AA}^{-1}\right)^2}$$
(2.10)

ergibt. Für den (00)-Reflex vereinfacht sich dies zu

$$K_{\perp}/\text{\AA}^{-1} \approx \frac{4\pi}{\sqrt{150,4}} \cos\left(\frac{\alpha}{2}\right) \sqrt{E/\text{eV}},$$
(2.11)

da  $K_{\parallel} = 0$  gilt.

#### 2.2.2 Kinematische Beugungstheorie

Für die exakte Beschreibung der Beugung ist die dynamische Theorie notwendig, welche die Streuprozesse mitsamt Mehrfachstreuungen an allen Streuzentren im Material berücksichtigt. Weil sie jedoch mit einem hohen Rechenaufwand verbunden ist, wird für die Auswertung von Reflexprofilen die kinematische Beugungstheorie verwendet.

In der kinematischen Beugungstheorie wird die Oberfläche anhand der auftretenden Periodizität in ein Gitter aus Einheitszellen eingeteilt, die aus Säulen senkrecht zur Oberfläche bestehen, wie in Abbildung 2.3 dargestellt ist. Aufgrund der großen



**Abbildung 2.3:** Mögliche Einteilungen der Oberfläche in Säuleneinheitszellen für die kinematische Beugungstheorie. (a) Bei Höhenunterschieden treten Terrassen und Stufen auf. (b) Überstrukturen führen zu größeren Einheitszellen. Erstellt nach [12, 34].

Abstände von Elektronenquelle, Probe und Detektor im Vergleich zu den Atomabständen werden die Elektronen nach der Fraunhoferschen Näherung als ebene Wellen beschrieben. Die Wellenfunktion eines gestreuten Elektrons kann unter Berücksichtigung aller Säuleneinheitszellen durch

$$\Psi(\vec{K}, \vec{k_{\rm e}}) = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{\vec{n}} f_{\vec{n}}(\vec{K}, \vec{k_{\rm e}}) \, \mathrm{e}^{\mathrm{i}\vec{K}\vec{r_{\vec{n}}}} \tag{2.12}$$

dargestellt werden, wobei  $\mathcal{N}$  eine Normierungskonstante,  $\vec{r}_{\vec{n}}$  die Position der  $\vec{n}$ -ten Einheitszelle und  $f_{\vec{n}}$  ihre Streuamplitude ist. Letztere gibt die Amplitude der gestreuten Welle an, die von der entsprechenden Einheitszelle kommt [31, 34]. Dabei werden auch Anteile von Elektronen berücksichtigt, die zuvor mehrfach innerhalb der Säule oder in anderen Säulen gestreut wurden [34]. Die Intensität, welche experimentell gemessen werden kann, ergibt sich aus

$$I(\vec{K}, \vec{k_{\rm e}}) = \left|\Psi(\vec{K}, \vec{k_{\rm e}})\right|^2 = \left|\frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{\vec{n}} f_{\vec{n}}(\vec{K}, \vec{k_{\rm e}}) \, \mathrm{e}^{\mathrm{i}\vec{K}\vec{r}_{\vec{n}}}\right|^2 \,.$$
(2.13)

In einem idealen Kristall mit glatter Oberfläche liegen alle Säuleneinheitszellen auf einer Höhe und besitzen die gleiche Streuamplitude  $f_{\vec{n}}$ . Bei Höhenunterschieden durch Stufen in der Oberfläche treten unterschiedliche Streuamplituden auf, denn im Bereich der Stufen ist die Atomanordnung anders als innerhalb von Terrassen, in denen die Einheitszellen auf gleicher Höhe liegen [14]. Je seltener ein Wechsel zwischen Terrassen sowie verschiedenen Stufen erfolgt, desto seltener treten Unterschiede in der Streuamplitude auf [12, 14, 28]. Anderweitig hervorgerufene Variationen der Streuamplitude werden als Inhomogenitäten zusammengefasst und in Kapitel 2.2.9 erläutert.

In der einfachen kinematischen Näherung wird angenommen, dass die Streuamplitude für alle Einheitszellen gleich ist, sodass  $f_{\vec{n}}(\vec{K}, \vec{k_e}) = f(\vec{K}, \vec{k_e})$  gilt. Damit lässt sich Gleichung 2.13 zu

$$I(\vec{K}, \vec{k_{\rm e}}) = F(\vec{K}, \vec{k_{\rm e}}) \cdot G(\vec{K})$$
(2.14)

mit dem dynamischen Formfaktor

$$F(\vec{K}, \vec{k_{\rm e}}) = \left| f(\vec{K}, \vec{k_{\rm e}}) \right|^2$$
 (2.15)

und dem Gitterfaktor

$$G(\vec{K}) = \frac{1}{N} \left| \sum_{\vec{n}} e^{i\vec{K}\vec{r}_{\vec{n}}} \right|^2 = \frac{1}{N} \sum_{\vec{n}} \sum_{\vec{m}} e^{i\vec{K}(\vec{r}_{\vec{n}} - \vec{r}_{\vec{m}})}$$
(2.16)

separieren. Der Formfaktor bestimmt als Betragsquadrat der Streuamplitude die Intensität der gestreuten Welle, die von einer Einheitszelle kommt, wobei er dabei auch Mehrfachstreuung und inelastische freie Weglänge berücksichtigt, während der Gitterfaktor die Anordnung von identischen Einheitszellen beschreibt [11, 12, 29, 34, 35].

Der Formfaktor hängt stark von  $|\vec{K}|$ , also der Energie, aber schwach von  $\vec{K}_{\parallel}$  ab [29]. Deswegen werden relative Intensitäten in lateraler Richtung, wie die Anordnung der Beugungsstangen oder die Reflexprofile, vom Gitterfaktor bestimmt, sodass sich die Profilanalyse zur Auswertung der Anordnung der Einheitszellen eignet. Dahingegen muss für die Auswertung der absoluten Intensität in Abhängigkeit von der Energie

auch der Formfaktor und somit die Struktur innerhalb der Einheitszellen in Betracht gezogen werden [11, 14].

Für den Gitterfaktor sind die Abstände zwischen den Einheitszellen relevant. Um über jedes mögliche Paar aus Einheitszellen zu summieren, kann er auch so dargestellt werden, dass über jede Differenz  $\vec{n}$  zwischen Einheitszellen und über jede Einheitszelle  $\vec{m}$  summiert wird. In einem weiteren Schritt kann die Summe über  $\vec{m}$  gemittelt werden, sodass sich insgesamt die Umformung

$$G(\vec{K}) = \frac{1}{N} \sum_{\vec{n}} \sum_{\vec{m}} e^{i\vec{K}(\vec{r}_{\vec{n}} - \vec{r}_{\vec{m}})}$$
  
=  $\frac{1}{N} \sum_{\vec{n}} \sum_{\vec{m}} e^{i\vec{K}(\vec{r}_{\vec{m} + \vec{n}} - \vec{r}_{\vec{m}})}$   
=  $\sum_{\vec{n}} \langle e^{i\vec{K}(\vec{r}_{\vec{m} + \vec{n}} - \vec{r}_{\vec{m}})} \rangle_{\vec{m}}$  (2.17)

ergibt. Die Positionen der Einheitszellen können mit den Basisvektoren  $\vec{a_1}$  und  $\vec{a_2}$  des Gitters und der Verschiebung senkrecht zur Oberfläche angegeben werden. Atomare Stufen stellen eine derartige senkrechte Verschiebung der Einheitszellen dar. Wenn die Oberfläche aufgrund der Stufen aus Schichten mit dem Abstand d besteht, wird die Position der  $\vec{n}$ -ten Einheitszelle durch

$$\vec{r}_{\vec{n}} = n_1 \vec{a_1} + n_2 \vec{a_2} + h d\vec{e_\perp} \tag{2.18}$$

mit  $\vec{n} = (n_1, n_2)$  und  $n_1, n_2, h \in \mathbb{Z}$ angegeben, wobe<br/>i $\vec{e_{\perp}}$  der Einheitsvektor in senkrechter Richtung ist. Für den Gitterfaktor ergibt sich

$$G(\vec{K}_{\parallel}, K_{\perp}) = \sum_{\vec{n}} \langle e^{iK_{\perp}d(h_{\vec{m}+\vec{n}}-h_{\vec{m}})} \rangle_{\vec{m}} e^{i\vec{K}_{\parallel}(n_{1}\vec{a_{1}}+n_{2}\vec{a_{2}})}$$
  
$$= \sum_{\vec{n}} \phi(\vec{n}, K_{\perp}) e^{i\vec{K}_{\parallel}(n_{1}\vec{a_{1}}+n_{2}\vec{a_{2}})}, \qquad (2.19)$$

wobei sich  $\vec{n}$  hier auf den lateralen Abstand von Einheitszellen bezieht, wie oben eingeführt wurde. Das gemessene Profil entspricht somit der Fouriertransformierten der Phasenkorrelation  $\phi(\vec{n}, K_{\perp})$ , die mit der Paarkorrelation  $C(\vec{n}, h)$  über

$$\phi(\vec{n}, K_{\perp}) = \sum_{h=-\infty}^{\infty} C(\vec{n}, h) e^{iK_{\perp}hd}$$
(2.20)

zusammenhängt. Diese gibt die Wahrscheinlichkeit an, zwei Einheitszellen im Abstand  $\vec{r}_{\vec{n}}(\vec{n}, h)$  voneinander zu finden, wobei sich h hier dementsprechend auf den vertikalen Abstand bezieht.

Für ideale Oberflächen ohne Höhenunterschiede gilt  $\phi = 1$  und es ergibt sich gemäß

$$G_{\text{ideal}}(\vec{K_{\parallel}}) = \sum_{\vec{n}} e^{i\vec{K_{\parallel}}(n_1\vec{a_1} + n_2\vec{a_2})} = \sum \delta(\vec{K_{\parallel}} - \vec{G_{\parallel}})$$
(2.21)

eine Summe aus  $\delta$ -Funktionen. Diese bilden die Beugungsstangen ab, die durch die parallele Komponente  $\vec{G}_{\parallel}$  des reziproken Gittervektors bestimmt sind.

#### Atomare Stufen

Für die Beschreibung von Schichten mit atomaren Stufen kann die Schichtverteilung  $p_l$  verwendet werden, welche jeweils den Anteil der *l*-ten Schicht an der Oberfläche angibt. Bei der Betrachtung von Säuleneinheitszellen ist dies äquivalent zum Anteil an Einheitszellen, die um *l* Schichtabstände vertikal verschoben wurden. Nach [36] kann die Paarkorrelation für eine endliche Anzahl von Schichten als

$$C(\vec{n},h) = \begin{cases} C_h [1 - \varphi_h(\vec{n})] & \text{für } h \neq 0\\ 1 - \sum_{h \neq 0} C(\vec{n},h) & \text{für } h = 0 \end{cases}$$
(2.22)

mit 
$$\varphi_h(\vec{n} = \vec{0}) = 1$$
 und  $\lim_{|\vec{n}| \to \infty} \varphi_h(\vec{n}) = 0$  (2.23)

dargestellt werden. Die Bedingungen in Gleichung 2.23 ergeben sich, da die Paarkorrelation von  $C(\vec{n} = \vec{0}, h \neq 0) = 0$  bis  $C(|\vec{n}| \rightarrow \infty, h \neq 0) = C_h$  laufen muss, wobei sich  $C_h$  über

$$C_h = \sum_l p_l \cdot p_{l+h} \tag{2.24}$$

aus der Schichtverteilung berechnet. Der genaue Verlauf wird durch die Funktion  $\varphi_h(\vec{n})$  festgelegt, welche von der Terrassenlängenverteilung der einzelnen Schichten bestimmt wird.

Diese Paarkorrelation führt dazu, dass sich der Gitterfaktor in zwei Anteile aufspaltet, die jeweils zu einer zentralen Spitze bzw. einer Schulter führen, wie in Abbildung 2.4 dargestellt ist. Die Anteile variieren mit  $K_{\perp}$ , wobei sich die Abhängigkeit an der Streuphase

$$S = \frac{K_{\perp}d}{2\pi} \tag{2.25}$$

orientiert. In der sogenannten In-Phase bei ganzzahligen Werten von S interferieren die von unterschiedlichen Schichten kommenden Elektronen konstruktiv, sodass wie bei der idealen Oberfläche nur  $\delta$ -Funktionen zu sehen sind [14]. Bei anderen Werten von S führt die Interferenz dazu, dass die Beugungsreflexe eine diffuse Schulter erhalten [37]. Der genaue Verlauf der Anteile wird durch

$$G(\vec{K}_{\parallel}, S) = G_0(S)\delta(\vec{K}_{\parallel}) + [1 - G_0(S)]\Phi_{\text{Stufe}}(\vec{K}_{\parallel}, S)$$
(2.26)

mit

$$G_0(S) = \left| \sum_h p_h \, e^{i2\pi hS} \right|^2 = \sum_h C_h \cos(2\pi hS) \,, \qquad (2.27)$$

$$[1 - G_0(S)] \Phi_{\text{Stufe}}(\vec{K_{\parallel}}, S) = \sum_{h \neq 0} C_h [1 - \cos(2\pi hS)] \Phi_h(\vec{K_{\parallel}})$$
(2.28)



Abbildung 2.4: Beispielhafter Verlauf des aus Spitze und Schulter bestehenden Profils eines Beugungsreflexes in Abhängigkeit von der Streuphase S für ein System aus zwei Schichten. In der In-Phase ist nur die Spitze zu sehen, während in der Out-Phase die Intensität der Schulter maximal ist. Wenn die Schichten gleich besetzt sind ( $p_0 = p_1 = \frac{1}{2}$ ), verschwindet die Spitze in der Out-Phase vollständig. Adaptiert aus [14].

beschrieben, wobei  $\Phi_h(\vec{K}_{\parallel})$  die Fouriertransformierte von  $\varphi_h(\vec{n})$  ist. Aus der Analyse der Intensitätsvariation  $G_0(S)$  lässt sich über  $C_h$  die vertikale Rauheit oder die Schichtverteilung  $p_l$  bestimmen, wie in Kapitel 2.2.3 beschrieben wird. Das Profil  $\Phi_{\text{Stufe}}(\vec{K}_{\parallel}, S)$  der Schulter liefert mittels  $\varphi_h(\vec{n})$  Aussagen über die laterale Rauheit, also die Terrassenlängenverteilung, wie in Kapitel 2.2.4 beschrieben wird. Bei einem Zweischichtsystem oszillieren die Intensitäten von Spitze und Schulter gegenphasig mit der Streuphase. Wenn die beiden Schichten gleich besetzt sind, d. h.  $p_0 = p_1 = \frac{1}{2}$ , verschwindet die Spitze in der halbzahligen Out-Phase vollständig [14].

#### 2.2.3 Vertikale Rauheit

Bei atomaren Stufen kann die vertikale Rauheit in der einfachen kinematischen Näherung nach Gleichung 2.27 aus dem Verlauf von  $G_0(S)$  bestimmt werden. Die Ermittlung der  $G_0(S)$ -Werte erfolgt durch Analyse des Intensitätsprofils  $I(\vec{K_{\parallel}})$  bei den entsprechenden Streuphasen, welche anhand von Gleichung 2.25 über  $K_{\perp}$  durch die Energie der Elektronen festgelegt werden können. Aus Gleichung 2.26 folgt, dass  $G_0(S)$  gemäß

$$G_0(S) = G_{\text{Spitze}}(S) = \frac{\int_{\text{BZ}} d^2 \vec{K_{\parallel}} I_{\text{Spitze}}(\vec{K_{\parallel}})}{\int_{\text{BZ}} d^2 \vec{K_{\parallel}} I_{\text{Gesamt}}(\vec{K_{\parallel}})}$$
(2.29)

den Anteil der integrierten Intensität der zentralen Spitze an der Gesamtintensität aus Schulter und Spitze in einer Brillouinzone (BZ) festlegt. Die integrierte Intensität der Spitze lässt sich bestimmen, weil sie im realen Experiment auch eine Ausdehnung in  $\vec{K}_{\parallel}$ -Richtung besitzt, wie in den Kapiteln 2.2.6 bis 2.2.8 beschrieben wird. Die Schichtverteilung  $p_l$  kann nur für ein System aus zwei Schichten exakt aus der  $G_0(S)$ -Kurve ermittelt werden [14]. Für ein Mehrschichtsystem lässt sich allerdings die Rauheit

$$\Delta = d \cdot \sqrt{\langle h^2 \rangle - \langle h \rangle^2} \tag{2.30}$$

ermitteln [38]. Dazu wird die  $G_0(S)$ -Kurve nach [31] in der Nähe einer In-Phase mit einer Taylorreihe entwickelt. Die ersten Glieder haben die Form

$$G_0(S) = 1 - \left(\frac{2\pi\Delta}{d}\right)^2 (\delta S)^2, \qquad (2.31)$$

wobei  $\delta S$  die Abweichung in S von der In-Phase bezeichnet. Dies entspricht wieder rum den ersten Gliedern der Taylornäherung der Gaußfunktion

$$G_0(S) = e^{-\left(\frac{2\pi\Delta}{d}\right)^2 (\delta S)^2}, \qquad (2.32)$$

welche daher als Näherung in der Umgebung einer In-Phase verwendet werden kann. Mit zunehmender Rauheit der Oberfläche verschwindet die zentrale Spitze mehr und mehr, sodass bei einer unendlichen Anzahl von Schichten außer bei der exakten In-Phase nur die Schulter zu sehen ist.

Um den gesamten Verlauf von  $G_0(S)$  mit einer Funktion anzunähern, muss die Periodizität entlang der Streuphase dargestellt werden. Da die ersten Glieder des Kosinus in der Reihenentwicklung  $\cos(2\pi S) = \cos(2\pi \delta S) = 1 - \frac{1}{2}(2\pi \delta S)^2$  lauten, kann der gesamte Verlauf mit der Funktion

$$G_0(S) = e^{-2 \cdot \left(\frac{\Delta}{d}\right)^2 [1 - \cos(2\pi S)]}$$
(2.33)

beschrieben werden, welche somit vor allem in der Umgebung der In-Phasen eine gute Näherung ist. Da die Abweichung des Kosinus von der Näherung bei größeren Abständen zur In-Phase zu breiteren Peaks führt, ergeben sich aus dieser Näherung etwas zu große Rauheiten. Die Periodizität und die Höhe der Werte in der In-Phase, welche die anderen Parameter bestimmen, werden allerdings korrekt wiedergegeben.

#### 2.2.4 Laterale Rauheit

Aus dem Schulterprofil lassen sich weitere Aussagen über die Morphologie wie die Terrassenlängenverteilung und die Stufenhöhenverteilung treffen. Mit der verwendeten Konstruktion der Schulter aus der Korrelationsfunktion lässt sich die Terrassenlängenverteilung allerdings nicht direkt erkennen. Für die eindimensionale Betrachtung mit der Gitterkonstanten a kann die Schulter jedoch direkt aus der Terrassenlängenverteilung  $P(\Gamma)$  berechnet werden. Sie gibt die relative Häufigkeit an, mit der Terrassen auftreten, die aus Einheitszellen mit einer Anzahl von  $\Gamma$  bestehen.

#### Zwei Schichten

Für ein Zweischichtsystem ergibt sich nach [37] das von  $K_{\perp}$ unabhängige Schulterprofil

$$\Phi_{\text{Stufe}}(K_{\parallel}) = \frac{1}{\langle \Gamma_0 \rangle \langle \Gamma_1 \rangle} \frac{1}{2 \left[ 1 - \cos(aK_{\parallel}) \right]} \left[ \frac{(1 - \beta_0)(1 - \beta_1)}{1 - \beta_0 \beta_1} + \text{c.c.} \right]$$
(2.34)

mit den Fouriertransformierten

$$\beta_0(K_{\parallel}) = \sum_{\Gamma_0} P_0(\Gamma_0) \,\mathrm{e}^{\mathrm{i}aK_{\parallel}\Gamma_0} \tag{2.35}$$

und

$$\beta_1(K_{\parallel}) = \sum_{\Gamma_1} P_1(\Gamma_1) \,\mathrm{e}^{\mathrm{i}aK_{\parallel}\Gamma_1} \tag{2.36}$$

der Terrassenlängenverteilungen  $P_0(\Gamma_0)$  und  $P_1(\Gamma_1)$  der unteren und oberen Schicht, wobei die mittleren Terrassenlängen mit  $\langle \Gamma_0 \rangle$  und  $\langle \Gamma_1 \rangle$  bezeichnet werden. Zur Auswertung des Schulterprofils wird demnach eine Beschreibung der Terrassenlängenverteilungen benötigt. Oft verwendete Verteilungen sind die geometrische und die Gammaverteilung.

Geometrische Verteilung: Die geometrische Terrassenlängenverteilung ergibt sich, wenn die Stufen zufällig auftreten [39]. Sie wird in kontinuierlicher Form durch

$$P_{\text{geometrisch}}(\Gamma) = \frac{1}{\langle \Gamma \rangle} e^{-\frac{\Gamma}{\langle \Gamma \rangle}}$$
(2.37)

ausgedrückt. Das resultierende Profil der Schulter folgt der Lorentzfunktion

$$G(K_{\parallel}) \propto \frac{1}{\kappa^2 + (aK_{\parallel})^2} \qquad \text{mit } \kappa = \frac{1}{\langle \Gamma_0 \rangle} + \frac{1}{\langle \Gamma_1 \rangle},$$
 (2.38)

wobei die Halbwertsbreite

$$a\Delta K_{\parallel} = 2\kappa = \frac{2}{\langle \Gamma_0 \rangle} + \frac{2}{\langle \Gamma_1 \rangle}$$
(2.39)

beträgt.

**Gammaverteilung:** Bei der Gammaverteilung ist die Terrassenlänge um einen bestimmten Wert verteilt. Mit der mittleren Terrassenlänge  $\langle \Gamma \rangle$  und der Standardabweichung  $\sigma = \sqrt{\langle \Gamma^2 \rangle - \langle \Gamma \rangle^2}$  lautet die Terrassenlängenverteilung

$$P_{\text{Gamma}}(\Gamma) = \Gamma^{\frac{\langle \Gamma \rangle^2}{\sigma^2} - 1} e^{-\frac{\langle \Gamma \rangle}{\sigma^2} \Gamma}.$$
(2.40)

Für  $\frac{\sigma}{\langle \Gamma \rangle} = 1$  ergibt sich die geometrische Verteilung. Kleinere Standardabweichungen haben ein Profil zur Folge, das sehr gut durch zwei Lorentzfunktionen dargestellt

werden kann, die den gleichen Abstand  $\delta$  zum Ursprung und die gleiche Halbwertsbreite  $\Delta K_{\parallel}$  besitzen. Das Profil wird somit durch

$$G(K_{\parallel}) \approx \frac{1}{\left(\frac{\Delta K_{\parallel}}{2}\right)^2 + \left(K_{\parallel} - \delta\right)^2} + \frac{1}{\left(\frac{\Delta K_{\parallel}}{2}\right)^2 + \left(K_{\parallel} + \delta\right)^2}$$
(2.41)

angenähert.

#### Mehrere Schichten

Für mehr als zwei Schichten variiert das Schulterprofil mit  $K_{\perp}$ , da es nach Gleichung 2.28 aus mehreren Schultern  $\Phi_h(\vec{K}_{\parallel})$  mit unterschiedlichen Intensitätsvariationen besteht [40]. Dadurch wird die Berechnung des Profils für alle Streuphasen komplex. In der Out-Phase kann die Berechnung jedoch vereinfacht werden, indem das System auf ein Zweischichtsystem übertragen wird, wie in Abbildung 2.5 gezeigt ist [14]. Wegen der Periodizität hat der Kosinus in Gleichung 2.28 bei halbzahligem



**Abbildung 2.5:** Darstellung der Projektion der Schichten auf ein Zweischichtsystem bei der Out-Phase. Bei geraden Höhenunterschieden h nimmt der Kosinus den Wert 1 und bei ungeraden h den Wert -1 an. Dies entspricht der Situation in dem projizierten Zweischichtsystem. Erstellt nach [14].

S für alle geraden Höhenunterschiede h den Wert 1 und für alle ungeraden Werte von h den Wert -1. Dies entspricht einem Zweischichtsystem, das durch Projektion der geraden und der ungeraden Schichten auf jeweils eine Schicht entsteht. Dabei ist zu beachten, dass Stufen mit geradzahligem Höhenunterschied h in dem resultierenden Zweischichtsystem nicht zu sehen sind. Wenn aber nur Einfachstufen vorhanden sind und die Terrassenlängenverteilung in jeder Schicht gleich ist, wird das Profil in der Out-Phase weiterhin durch Gleichung 2.34 bestimmt [41].

#### Unendlich viele Schichten

Bei einer unendlichen Anzahl an Schichten ist, wie in Kapitel 2.2.3 erwähnt, keine zentrale Spitze zu sehen. Bei gleicher Terrassenlängenverteilung in jeder Schicht lässt sich nach [37] eine Gleichung für das Schulterprofil angeben, die für alle Streuphasen gilt. Zudem lässt sich auch eine Verteilung der Stufenhöhen berücksichtigen. Mit der Fouriertransformierten

$$\beta_{\rm S}(K_{\perp}) = \sum_{h} P(h) \, \mathrm{e}^{\mathrm{i}K_{\perp}hd} \tag{2.42}$$

der Stufenhöhenverteilung P(h) und der Fouriertransformierten

$$\beta_{\mathrm{T}}(K_{\parallel}) = \sum_{\Gamma} P(\Gamma) \, \mathrm{e}^{\mathrm{i}aK_{\parallel}\Gamma} \tag{2.43}$$

der Terrassenlängenverteilung  $P(\Gamma)$  ergibt sich

$$G_{\text{Schulter}}(K_{\parallel}) = \frac{1}{2\left[1 - \cos(aK_{\parallel})\right]} \left[\frac{(1 - \beta_{\text{T}})(1 - \beta_{\text{S}})}{1 - \beta_{\text{T}}\beta_{\text{S}}} + \text{c.c.}\right].$$
 (2.44)

Eine geometrische Terrassenlängenverteilung und eine symmetrische Stufenhöhenverteilung resultieren in einem Schulterprofil, das der Lorentzfunktion

$$G(K_{\parallel}) \propto \frac{1}{\left(\frac{1-\beta_{\rm S}(K_{\perp})}{\langle \Gamma \rangle}\right)^2 + \left(aK_{\parallel}\right)^2} \tag{2.45}$$

mit der Halbwertsbreite

$$a\Delta K_{\parallel} = \frac{2\left(1 - \beta_{\rm S}(K_{\perp})\right)}{\langle \Gamma \rangle} \tag{2.46}$$

folgt. Wenn nur Einfachstufen vorhanden sind, oszilliert die Halbwertsbreite mit der Periode der Streuphase gemäß

$$a\Delta K_{\parallel} = \frac{2\left[1 - \cos(K_{\perp}d)\right]}{\langle \Gamma \rangle}.$$
(2.47)

#### 2.2.5 Zweidimensionale Profile

Weil die Oberfläche zweidimensional ist, wird eine Erweiterung der bisherigen eindimensionalen Modelle benötigt. Die Oberfläche besitzt eine zweidimensionale Korrelationsfunktion  $\phi(\vec{r})$ , welche ein 2D-Profil zur Folge hat. Eine Möglichkeit der Erweiterung besteht in der Annahme einer Rotationssymmetrie, sodass die Korrelationsfunktion nur vom Radius  $r = |\vec{r}|$  abhängt. Dann gilt

$$\phi(\vec{r}) = \phi(r) \tag{2.48}$$

und das 2D-Profil lässt sich mit der 2D-Fouriertransformation

$$G(\vec{K}_{\parallel}) = \int r \, \mathrm{d}r \, \phi(r) \, J_0(|\vec{K}_{\parallel}|r)$$
(2.49)

erhalten. Dabei ist  $J_0(x)$  die Besselfunktion erster Gattung nullter Ordnung.

#### Geometrische Verteilung

Eine geometrische Terrassenlängenverteilung mit der Korrelationsfunktion

$$\phi(r) \propto \mathrm{e}^{-\kappa r} \tag{2.50}$$

führt in diesem Fall zu der zweidimensionalen Lorentzfunktion

$$G(\vec{K}_{\parallel}) \propto \frac{1}{\left[\kappa^2 + \left(a|\vec{K}_{\parallel}|\right)^2\right]^{\frac{3}{2}}}$$
(2.51)

mit der Halbwertsbreite

$$a\Delta K_{\parallel} = 2\kappa \sqrt{2^{2/3} - 1} \,. \tag{2.52}$$

Im Gegensatz zur eindimensionalen Betrachtung in Kapitel 2.2.4 muss also die Lorentzfunktion durch eine 2D-Lorentzfunktion mit dem Exponenten  $\frac{3}{2}$  ersetzt und bei der Halbwertsbreite der zusätzliche Faktor  $\sqrt{2^{2/3}-1}$  berücksichtigt werden. Das Integral des 2D-Lorentzprofils, welches für die Erstellung der  $G_0(S)$ -Kurve in Gleichung 2.29 benötigt wird, kann über

$$\int d^2 \vec{K}_{\parallel} I(\vec{K}_{\parallel}) = \frac{\pi}{2 \left(2^{2/3} - 1\right)} I_0 \left(\Delta K_{\parallel}\right)^2 \approx 2.67 \cdot I_0 \left(\Delta K_{\parallel}\right)^2 \tag{2.53}$$

berechnet werden. Dabei ist  $I_0$  die Intensität im Maximum.

#### Gammaverteilung

Auch die Gammaverteilung kann mit dieser Methode auf zwei Dimensionen erweitert werden, solange  $\frac{\sigma}{\langle \Gamma \rangle} \geq 0.7$  gilt, d. h. die Terrassenlängenverteilung nicht zu scharf ist. Für  $\frac{\sigma}{\langle \Gamma \rangle} = 1$  ergibt sich eine 2D-Lorentzfunktion. Bei kleinerem  $\frac{\sigma}{\langle \Gamma \rangle}$  sieht das Profil ringartig aus, wobei die Ringstruktur mit abnehmendem  $\frac{\sigma}{\langle \Gamma \rangle}$  ausgeprägter sichtbar wird. Das Profil lässt sich wie im Eindimensionalen mit verschobenen Lorentzfunktionen annähern. Dabei wird ein zusätzlicher Exponent  $\nu$  eingefügt, sodass sich die Beschreibung

$$G(\vec{K}_{\parallel}) \approx \frac{1}{\left[\kappa^2 + a^2 \left(|\vec{K}_{\parallel}| - \delta\right)^2\right]^{\nu}} + \frac{1}{\left[\kappa^2 + a^2 \left(|\vec{K}_{\parallel}| + \delta\right)^2\right]^{\nu}}$$
(2.54)

ergibt. Neben diesem Exponenten werden die Lorentzfunktionen durch den Radius  $\delta$  ihrer Verschiebung und die Halbwertsbreite  $\Delta K_{\parallel}$  festgelegt.

Die drei Parameter zeigen bei festgehaltener durchschnittlicher Terrassenlänge  $\langle \Gamma \rangle$ eine Abhängigkeit von  $\frac{\sigma}{\langle \Gamma \rangle}$ , die in Abbildung 2.6 für eine durchschnittliche Terrassenlänge von  $\langle \Gamma \rangle = 100$  dargestellt ist. Bei festgehaltenem  $\frac{\sigma}{\langle \Gamma \rangle}$  verhalten sich Halbwertsbreite und Radius antiproportional zur durchschnittlichen Terrassenlänge  $\langle \Gamma \rangle$ .



Abbildung 2.6: Parameter der verschobenen Lorentzfunktionen zur Beschreibung der aus Gammaverteilungen auf zwei Dimensionen erweiterten Profile. Es sind Halbwertsbreite (HWB)  $\Delta K_{\parallel}$ , Radius  $\delta$  und Exponent  $\nu$  abhängig von der skalierten Standardabweichung  $\frac{\sigma}{\langle \Gamma \rangle}$  für die durchschnittliche Terrassenlänge  $\langle \Gamma \rangle = 100$  dargestellt. Adaptiert aus [25].

Dadurch lässt sich aus einem gemessenes Profil, das mit den zwei Lorentzfunktionen aus Gleichung 2.54 angepasst wurde, näherungsweise die zugrunde liegende Gammaverteilung bestimmen. Dazu kann zunächst das Verhältnis  $\frac{\sigma}{\langle \Gamma \rangle}$  aus dem Verhältnis von Halbwertsbreite und Radius ermittelt werden. Aus dem absoluten Wert der Halbwertsbreite oder des Radius bei entsprechendem  $\frac{\sigma}{\langle \Gamma \rangle}$  folgt dann  $\langle \Gamma \rangle$  und somit auch die Standardabweichung  $\sigma$ . Wie sich in Abbildung 2.6 sehen lässt, stellen dafür die Beziehungen

$$\Delta K_{\parallel} \approx 0.5 \cdot \frac{100 \,\% \text{BZ}}{\langle \Gamma \rangle} \tag{2.55}$$

für die Halbwertsbreite und

$$\delta \approx \frac{8}{5} \cdot \frac{100 \,\% \text{BZ}}{\langle \Gamma \rangle} \left( 1 - \frac{\sigma}{\langle \Gamma \rangle} \right) \tag{2.56}$$

für den Radius eine gute Näherung da.

Für  $\nu = \frac{3}{2}$  ist eine Berechnung des Integrals des Profils über

$$\int d^2 \vec{K_{\parallel}} I(\vec{K_{\parallel}}) = \frac{2\pi}{\sqrt{2^{2/3} - 1}} I_0 \Delta K_{\parallel} \sqrt{\delta^2 + \frac{\left(\Delta K_{\parallel}\right)^2}{4\left(2^{2/3} - 1\right)}}$$
(2.57)

möglich, während es z. B. für  $\nu = 1$  divergent ist.

#### 2.2.6 Instrumentelle Verbreiterung

Das tatsächlich gemessene Beugungsprofil wird neben den Auswirkungen der Oberfläche zusätzlich vom Messinstrument beeinflusst, weil dieses die Annahmen der Beugungstheorie nicht exakt erfüllen kann. Dies liegt an verschiedenen Ursachen wie der Ausdehnung von Elektronenquelle und Detektor, der Strahlbreite und der Energieunschärfe [23, 42].

Es ergibt sich eine Verbreiterung, die mit einer Instrumentfunktion  $T(\vec{K})$  beschrieben wird, welche typischerweise die Form einer Gaußfunktion besitzt. Aus dem Beugungsprofil  $I(\vec{K})$  ohne Instrumenteinfluss ergibt sich durch Faltung mit  $T(\vec{K})$  das gemessene Profil

$$J(\vec{K}) = I(\vec{K}) * T(\vec{K}).$$
(2.58)

Dies entspricht der Anwendung der Fouriertransformierten  $t(\vec{r})$  der Instrumentfunktion  $T(\vec{K})$  auf die Korrelationsfunktion  $\phi(\vec{r})$  der Oberfläche, welche die Fouriertransformierte des Profils  $I(\vec{K})$  ist [11]. Die Halbwertsbreite  $h_t$  der sogenannten Transferfunktion  $t(\vec{r})$  wird als Transferweite bezeichnet. Bei einer gaußförmigen Instrumentfunktion ist sie auch gaußförmig und hängt über

$$h_{\rm t} = \frac{2\pi}{\Delta K_{\rm t}} \tag{2.59}$$

mit der Halbwertsbreite  $\Delta K_t$  der instrumentellen Verbreiterung zusammen. Sie kann als effektive Kohärenzlänge des Instruments angesehen werden, auch wenn die Korrelation über größere Abstände wegen der Form der Transferfunktion ebenfalls zu kleinen Teilen berücksichtigt wird [23, 35, 42]. Mit steigender Energie wird die Transferweite im Allgemeinen geringer [42].

Um das tatsächliche Beugungsprofil zu erhalten, muss das gemessene Profil von der instrumentellen Verbreiterung entfaltet werden. Bei der Faltung von zwei Lorentzfunktionen ergibt sich eine Lorentzfunktion, deren Halbwertsbreite der Summe der Halbwertsbreiten der beiden zugrundeliegenden Funktionen entspricht [43]. Bei der Faltung anderer Verteilungsfunktionen kann dieser Zusammenhang für die Ermittlung der Halbwertsbreiten als Näherung verwendet werden.

#### 2.2.7 Domänen

Neben der Bildung von Terrassen kann das Beugungsbild durch weitere Änderungen des Gitters beeinflusst werden. Dazu gehört die Bildung von anderweitigen Domänen, die zu einer Verbreiterung des Profils führt.

Ein Kristall kann Korngrenzen enthalten, an denen die Periodizität des Gitters aufgehoben wird. In den von den Korngrenzen umfassten Körnern, die auch Kristallite genannt werden, bleibt die Periodizität bestehen, sodass sich das Beugungsbild aus einer inkohärenten Überlagerung der einzelnen Körner zusammensetzt. Dies führt zu einer Verbreiterung des Profils, die wie bei der Instrumentfunktion durch Faltung mit einer Verbreiterungsfunktion beschrieben werden kann [25]. Die Halbwertsbreite hängt dabei im zweidimensionalen Fall über

$$\Delta K_{\parallel} = \frac{2\sqrt{2^{2/3} - 1}}{D_{\text{lat}}} \tag{2.60}$$

von der mittleren Korngröße $D_{\rm lat}$  in lateraler Richtung ab.

Weiterhin können die Körner um kleine Winkel gegen die Oberfläche gekippt sein, sodass sich eine Mosaikstruktur bildet. Die jeweils zugehörigen Beugungsstangen stehen senkrecht auf diesen verkippten Bereichen. In der Summe aus unterschiedlich verkippten Bereichen ergibt sich eine zum vertikalen Streuvektor  $K_{\perp}$  proportionale Verbreiterung, die zur konstanten Verbreiterung durch die Korngröße addiert wird. Eine Gaußverteilung der Verkippungen der einzelnen Körner resultiert in der zusätzlichen Verbreiterung

$$\Delta K_{\parallel} = \sigma K_{\perp} \,, \tag{2.61}$$

wobei  $\sigma$  die Standardabweichung der Gaußverteilung ist.

Auch Überstrukturen können Domänen ausbilden. Bei sogenannten Antiphasendomänen bleibt die periodische Struktur innerhalb der Domänen bestehen, während sie an den Domänengrenzen erst nach einer Verschiebung um einen Vektor  $\vec{l}$  fortgesetzt wird [18]. Die Domänen der Überstruktur sind gegeneinander verrückt, sodass sie nicht in Phase zueinander liegen, wenn die Verschiebung  $\vec{l}$  kein Translationsvektor der Überstruktur ist. Dies führt zu einer Verbreiterung, deren Ausprägung von den Domänengrößen, den Verschiebungen und dem Reflex abhängt. Wenn die Domänen um Translationsvektoren des Gitters ohne Überstruktur verschoben sind, werden nur Überstrukturreflexe verbreitert. Die Antiphasendomänen haben dann keine Auswirkungen auf die Fundamentalreflexe des nicht rekonstruierten Gitters.

#### 2.2.8 Positionsabweichungen

Neben großflächigen Domänen beeinflussen auch Veränderungen von Einheitszellen das Beugungsbild. Einzelne Einheitszellen können in ihrer Streuamplitude und ihrer Position vom grundsätzlichen Gitter abweichen. Prinzipiell führen zufällig auftretende Defekte zu einem homogenen Hintergrund auf Kosten der Intensität der Reflexe, während eine Korrelation der Defekte eine Modulation dieses Hintergrunds bewirkt und somit Schultern herbeiführen kann [12]. Positionsveränderungen von einzelnen Einheitszellen können durch statische Unordnung entstehen oder dynamisch durch thermische Effekte geschehen [11].

Bei zufällig auf dem Gitter verteilten Positionsabweichungen wird die Intensität der Reflexe um den Debye-Waller-Faktor  $\exp(-2 |\vec{K}|^2 \langle u_K \rangle^2)$  verringert, wobei  $\langle u_K \rangle$ die mittlere Abweichung in Richtung von  $\vec{K}$  ist [29]. Daran ist zu sehen, dass die Intensität mit höherer Energie  $E \sim |\vec{K}|^2$  abnimmt. Dies ist ein Grund dafür, dass Beugungsbilder bei hohen Energien schwieriger zu messen sind [11]. Außerdem wird der (00)-Reflex wegen der fehlenden parallelen Komponente des Streuvektors nicht von Abweichungen parallel zur Oberfläche beeinflusst wird, sodass er für Messungen anderer Oberflächeneigenschaften wie der Morphologie gut geeignet ist [28].

Bei der Wechselwirkung mit thermischen Gitterschwingungen handelt es sich um Streuung an Phononen. Bei dieser ändern sich die Energie und der Impuls der Elektronen. Da der Energieübertrag der Phononenstreuung gering ist, sind die auf diese Weise inelastisch gestreuten Elektronen schwierig von den ausschließlich elastisch gestreuten Elektronen zu unterscheiden. Der Impulsübertrag, der den Wellenvektor ändert, kann aber signifikante Größenordnungen annehmen und damit Einfluss auf die Profilform haben. Der Gitterfaktor kann in drei Beiträge aufgeteilt werden, die mit Energie und Temperatur variieren. Die Nullphononenstreuung erzeugt das Beugungsbild  $I_0(\vec{K_{\parallel}})$  der elastisch gestreuten Elektronen. Dessen Intensität wird durch den bereits erwähnten Debye-Waller-Faktor gesenkt, wobei die mittlere Abweichung  $\langle u_K \rangle$  von der Temperatur bestimmt wird. Die Einphononenstreuung erzeugt ein Profil, das durch die Faltung von

$$I_1(K_{\parallel}) \approx \frac{1}{K_{\parallel}} \arctan\left(\frac{\pi}{aK_{\parallel}}\right)$$
 (2.62)

mit dem elastischen Beugungsbild  $I_0(\vec{K_{\parallel}})$  angenähert werden kann [44]. Die Multiphononenstreuung erzeugt einen homogenen Hintergrund, wie er durch zufällige Positionsabweichungen entsteht.

Positionsabweichungen können auch Auswirkungen auf die  $G_0(S)$ -Kurve in Gleichung 2.27 haben, da diese nur für atomare Schichten mit den in Gleichung 2.18 vorgegebenen vertikalen Positionen definiert ist. Laut [45] können Abweichungen von diesen Höhen mit einer Integration über die Häufigkeitsverteilung  $P_h(z)$  der Positionen in vertikaler z-Richtung berücksichtigt werden, indem Gleichung 2.27 zu

$$G_0(K_\perp) = \left| \sum_h p_h \int \mathrm{d}z \ P_h(z) \ \mathrm{e}^{\mathrm{i}K_\perp z} \right|^2 \tag{2.63}$$

erweitert wird. Wenn die Schichten alle den gleichen in Gleichung 2.18 festgelegten Abstand besitzen, indem die Einheitszellen der jeweils *h*-ten Schicht alle in der Höhe z = hd liegen, gilt die Häufigkeitsverteilung  $P_h^{\text{fest}}(z) = \delta(z - hd)$ , sodass sich durch Einsetzen in Gleichung 2.63 wieder Gleichung 2.27 erhalten lässt. Wird hingegen angenommen, dass die Höhe z in den Schichten einer Gaußverteilung

$$P_h^{\text{Gauß}}(z) = \frac{1}{\sqrt{2\pi\sigma_z}} e^{-\frac{(z-hd)^2}{2\sigma_z^2}}$$
(2.64)

um diese vorgesehenen Positionen folgt, wobei die Standardabweichung  $\sigma_z$  auf jeder Ebene gleich ist, ergibt sich

$$G_0^{\text{Gauß}}(K_{\perp}) = \left| \sum_h p_h \int dz \frac{1}{\sqrt{2\pi\sigma_z}} e^{-\frac{(z-hd)^2}{2\sigma_z^2}} e^{iK_{\perp}z} \right|^2$$
$$= \left| \sum_h p_h e^{-\frac{\sigma_z^2 K_{\perp}^2}{2}} e^{iK_{\perp}hd} \right|^2$$
$$= e^{-\sigma_z^2 K_{\perp}^2} G_0^{\text{fest}}(K_{\perp}).$$
(2.65)

Die Höhenunterschiede bewirken somit, dass die ursprüngliche  $G_0(S)$ -Kurve von einer Gaußfunktion eingehüllt wird, die mit größerer Standardabweichung der Höhen schmaler wird.

#### 2.2.9 Inhomogenitäten

Variationen der Streuamplituden von Einheitszellen werden als Inhomogenitäten bezeichnet. Eine zufällige Verteilung der Inhomogenitäten als Punktdefekte führt zur Bildung eines homogenen Hintergrunds und Verringerung der Reflexintensität, während eine korrelierte Verteilung zur Bildung von Schultern führt [11, 29].

Um Änderungen der Streuamplitude f zu ermöglichen, muss die einfache kinematische Näherung aus Gleichung 2.14 erweitert werden. Wenn angenommen wird, dass es nur zwei mögliche Streuamplituden  $f_A$  und  $f_B$  gibt und die Korrelation dieser Inhomogenitäten unabhängig von den Stufen in der Oberfläche ist, lässt sich die Intensität mit dem Faltungsoperator \* durch

$$I(\vec{K}, \vec{k_{\rm e}}) = |\langle f \rangle|^2 G(\vec{K}) + \Theta_{\rm A} \Theta_{\rm B} |\Delta f|^2 G(\vec{K}) * \Phi_{\rm Inh}(\vec{K_{\parallel}})$$
(2.66)

beschreiben. Hier bezeichnet  $\Delta f$  die Differenz der beiden Streuamplituden und  $\langle f \rangle = \Theta_{\rm A} f_{\rm A} + \Theta_{\rm B} f_{\rm B}$  die mittlere Streuamplitude, wobei die Bedeckungen  $\Theta_{\rm A}$  und  $\Theta_{\rm B}$  den Anteil des Auftretens der beiden Streuamplituden über die gesamte Oberfläche angeben. Die Funktion  $\Phi_{\rm Inh}(\vec{K_{\parallel}})$  hängt von der Korrelation der Inhomogenitäten ab und hat eine ähnliche Bedeutung wie  $\Phi_{\rm Stufe}(\vec{K_{\parallel}}, S)$  in Gleichung 2.26. Das Profil besteht aus zwei Teilen. Der erste Teil erzeugt das homogene Beugungsbild, welches die Oberfläche erzeugen würde, wenn sie keine Inhomogenitäten, sondern nur die mittlere Streuamplitude  $\langle f \rangle$  aufweisen würde. Der zweite Teil entsteht aus einer Faltung des homogenen Profils mit  $\Phi_{\rm Inh}$ .

Eine Oberfläche mit Stufen und Inhomogenitäten erzeugt somit vier Teile. Wenn der Gitterfaktor für atomare Stufen aus Gleichung 2.26 in Gleichung 2.66 eingesetzt wird, ergibt sich

$$I(\vec{K}, \vec{k_{e}}) = |\langle f \rangle|^{2} \left[ G_{0}(S)\delta(\vec{K_{\parallel}}) + [1 - G_{0}(S)] \Phi_{\text{Stufe}} \right] + \Theta_{\text{A}}\Theta_{\text{B}} |\Delta f|^{2} \left[ G_{0}(S)\Phi_{\text{Inh}} + [1 - G_{0}(S)] \Phi_{\text{Stufe}} * \Phi_{\text{Inh}} \right] .$$
(2.67)

Aus dem ersten Teil in 2.66 bildet sich das aus der zentralen Spitze und der Schulter  $\Phi_{\text{Stufe}}$  bestehende homogene Beugungsbild, während die Faltung dieses Profils mit  $\Phi_{\text{Inh}}$  im zweiten Teil die Schultern  $\Phi_{\text{Inh}}$  und  $\Phi_{\text{Stufe}} * \Phi_{\text{Inh}}$  erzeugt.

Das Verhalten der Schultern ist im Allgemeinen aufgrund der Energieabhängigkeit der Streuamplituden schwierig auszuwerten. Unter der Annahme von  $f_A \gg f_B$ , d. h. stark unterschiedlichen Streuamplituden, kann Gleichung 2.66 jedoch zu

$$I(\vec{K}, \vec{k_{\rm e}}) = \Theta_A \left| f_{\rm A} \right|^2 \left[ \Theta_{\rm A} G(\vec{K}) + \Theta_{\rm B} G(\vec{K}) * \Phi_{\rm Inh}(\vec{K_{\parallel}}) \right]$$
(2.68)

vereinfacht werden. Wenn sich zudem die Schultern  $\Phi_{\text{Stufe}}$  und  $\Phi_{\text{Inh}}$  stark in ihrer Breite unterscheiden, reproduziert die Faltung  $\Phi_{\text{Stufe}} * \Phi_{\text{Inh}}$  nur die breitere Schulter. Bei einer deutlich breiteren aus Inhomogenitäten resultierenden Schulter  $\Phi_{\text{Inh}}$  ergibt sich damit die Intensität

$$I(\vec{K}, \vec{k_{e}}) = \Theta_{A} |f_{A}|^{2} [\Theta_{A}G_{0}(S)\delta(\vec{K_{\parallel}}) + \Theta_{A} [1 - G_{0}(S)] \Phi_{Stufe}(\vec{K_{\parallel}}, S) + \Theta_{B}\Phi_{Inh}(\vec{K_{\parallel}})], \qquad (2.69)$$

wobei Gleichung 2.26 eingesetzt wurde. Der einzige Unterschied zu einer homogenen Oberfläche ist, dass ein durch die Bedeckung  $\Theta_{\rm B}$  festgelegter energieunabhängiger Teil der Intensität in die breite Schulter  $\Phi_{\rm Inh}(\vec{K_{\parallel}})$  übergeht.

Ist die durch Stufen entstehende Schulter  $\Phi_{Stufe}$  deutlich breiter, ergibt sich

$$I(\vec{K}, \vec{k_{e}}) = \Theta_{A} |f_{A}|^{2} \left[ \Theta_{A} G_{0}(S) \delta(\vec{K_{\parallel}}) + [1 - G_{0}(S)] \Phi_{Stufe}(\vec{K_{\parallel}}, S) + \Theta_{B} G_{0}(S) \Phi_{Inh}(\vec{K_{\parallel}}) \right].$$

$$(2.70)$$

Hier variiert auch die Intensität der Inhomogenitätsschulter  $\Phi_{\text{Inh}}(\vec{K}_{\parallel})$  mit der Energie, wobei sie sich gleichphasig zur Variation der Spitze verhält. Die Verhältnisse der Intensitäten der einzelnen Teile zur Gesamtintensität werden hier analog zu Gleichung 2.29 als G(S)-Kurven mit  $G_{\text{Spitze}}(S) = \Theta_{\text{A}}G_0(S), G_{\text{Stufe}}(S) = 1 - G_0(S)$  und  $G_{\text{Inh}}(S) = \Theta_{\text{B}}G_0(S)$  bezeichnet.

### 2.3 XRR – Röntgenreflektometrie

Zur Bestimmung der Schichtdicken wurde in dieser Arbeit die Messmethode der Röntgenreflektometrie (X-Ray Reflectometry, XRR) verwendet. Dabei wird die Interferenz von an unterschiedlichen Grenzflächen reflektierten Röntgenstrahlen genutzt. Dieses Prinzip wird in diesem Kapitel erläutert, wobei die allgemeinen Informationen auf den Ausführungen in [46–48] beruhen.

Das grundsätzliche Schema des XRR-Prinzips ist in Abbildung 2.7 dargestellt. Es wird ein Modell angewendet, bei dem die Probe aus Schichten mit jeweils homogener Elektronendichte und somit homogenem Brechungsindex n zusammengesetzt ist. Wenn ein Strahl auf eine Grenzfläche der Schichten trifft, teilt er sich in einen reflektierten und einen gebrochenen Anteil auf. Weil der Ausfallswinkel des reflektierten Strahls  $\vec{k_r}$  dem Einfallswinkel  $\alpha_e$  des einfallenden Strahls  $\vec{k_e}$  entspricht, steht der Streuvektor  $\vec{q} = \vec{k_r} - \vec{k_e}$  senkrecht zur Grenzfläche, sodass

$$q = |\vec{q}| = 2k \sin \alpha_{\rm e} = \frac{4\pi}{\lambda} \sin \alpha_{\rm e}$$
(2.71)

mit  $k = |\vec{k_r}|$  gilt, wobei  $\lambda$  die Wellenlänge der Röntgenstrahlen ist. Die Reflektivität *R*, welche das Verhältnis von der Intensität  $I_r$  des reflektierten Strahls zur Intensität  $I_e$  des einfallenden Strahls angibt, folgt gemäß

$$I_{\rm r}/I_{\rm e} = R = |r|^2 \tag{2.72}$$



Abbildung 2.7: Schematische Darstellung der Röntgenreflektometrie. Der einfallende Strahl  $\vec{k_{e,Luft}}$  aus der Luft wird an jeder Grenzfläche reflektiert und gebrochen. Die Überlagerung der einzelnen Anteile kann mit einer hoch- und einer herunterlaufenden Welle (bezeichnet mit + und –) in jeder Schicht beschrieben werden. Der in die Luft reflektierte Strahl  $\vec{k_{e,Luft}}$  zeigt Interferenz durch die Überlagerung von Strahlen unterschiedlicher Weglänge. Die Pfeile geben nicht den genauen Strahlengang wieder, sondern sollen nur die Richtung der Wellenvektoren anzeigen. Erstellt nach [49–51].

dem Reflexionskoeffizienten r. Dieser hängt vom einfallenden Strahl und vom Brechungsindex

$$n = 1 - \delta + \mathrm{i}\beta \tag{2.73}$$

der Materialien ab, wobei  $\delta$  die Dispersion und  $\beta$  die Absorption bezeichnet. Deren Werte befinden sich für Röntgenstrahlen in der Größenordnung von  $10^{-5}$  bzw.  $10^{-6}$ , weshalb sich unterhalb eines kritischen Winkels

$$\alpha_{\rm c} \approx \sqrt{2\delta} \tag{2.74}$$

Totalreflexion an der Oberfläche zeigt. Zudem trifft für sehr kleine Winkel nicht der gesamte Strahl auf die Probe, sodass die reflektierte Intensität mit dem Winkel und dem damit zunehmenden auf die Probe treffenden Anteil ansteigt. Dieser Anstieg im Bereich der Totalreflexion wird als *Footprint* bezeichnet.

Der an der Oberfläche gebrochene Anteil wird wiederum an den Grenzflächen innerhalb der Probe in mehrere Teile zerlegt, die jeweils unterschiedlich reflektiert und gebrochen werden. Dadurch besteht der Strahl, der letztendlich von der Probe zurückgeworfen wird, aus Anteilen, die unterschiedliche Wegstrecken zurückgelegt haben. Dies resultiert bei genügender Kohärenz in einem Interferenzmuster. Für ein System mit zwei Grenzflächen zeigt die reflektierte Intensität eine Oszillation mit Minima und Maxima in Abhängigkeit vom Winkel  $\alpha_e$ , also von q, welche als *Kiessig-Fringes* bezeichnet werden. Ihre Ausprägung hängt von den Brechungsindizes und den Rauheiten sowie der Dicke d der Zwischenschicht ab, wobei letztere die Periode  $\Delta q$  der Oszillation über  $\Delta q = \frac{2\pi}{d}$  bestimmt. Für mehr Schichten ergibt sich eine Überlagerung von Oszillationen, sodass die Schichtdicken schwieriger aus dem Intensitätsverlauf abzulesen sind. Für die Berechnung der Reflexion von mehreren Schichten, gibt es zwei Methoden, welche die Stetigkeitsbedingungen des elektromagnetischen Feldes an den Grenzflächen ausnutzen. Neben einer von Parratt [52] beschriebenen rekursiven Methode wurde eine Matrixmethode von Abelès [53] mit äquivalentem Ergebnis entwickelt. Die Messungen in dieser Arbeit wurden mit dem Programm "Reflex" [50] ausgewertet, das auf Grundlage der Matrixmethode arbeitet.

Die Berechnung mit der Matrixmethode kann nach [49, 50] anhand von Abbildung 2.7 nachvollzogen werden, in der sich die Wellen in der yz-Ebene fortbewegen. Weil die Polarisation bei der in dieser Arbeit verwendeten Energie der Röntgenstrahlung keine Auswirkungen auf das Reflexionsverhalten hat, wird von s-polarisierten Wellen ausgegangen. Die reflektierten und gebrochenen Wellen überlagern sich an jeder Grenzfläche, sodass das elektrische Feld in jeder Schicht j aus einer hoch- und einer herunterlaufenden ebenen Welle mit den Komponenten  $k_{z,j}$  und  $k_{y,j}$  des Wellenvektors  $k_j$  besteht. Da die y-Komponente nach dem Snelliusschen Brechungsgesetz erhalten bleibt, kann das Feld über

$$E_{j} = [A_{j}^{+} \mathrm{e}^{\mathrm{i}k_{z,j}z} + A_{j}^{-} \mathrm{e}^{-\mathrm{i}k_{z,j}z}] \cdot \mathrm{e}^{-\mathrm{i}(\omega t - k_{y,j}y)}$$
(2.75)

mit der Kreisfrequenz  $\omega$  beschrieben werden.  $A_j^+$  und  $A_j^-$  sind die Amplituden des elektrischen Feldes, deren hochgestelltes Vorzeichen auf die Laufrichtung der Welle hinweist. Zur Vereinfachung wird

$$u_{j}^{\pm}(z) = A_{j}^{\pm} \mathrm{e}^{\pm \mathrm{i}k_{z,j}z} \tag{2.76}$$

eingeführt. Aus den Stetigkeitsbedingungen der tangentialen Komponenten des elektrischen und magnetischen Feldes folgt, dass der Übergang an einer Grenzfläche j, j+1 in der zugehörigen Höhe  $z_j$  über

$$\begin{pmatrix} u_{j+1}^+(z_j) \\ u_{j+1}^-(z_j) \end{pmatrix} = R_{j,j+1} \begin{pmatrix} u_j^+(z_j) \\ u_j^-(z_j) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} p_{j,j+1} & m_{j,j+1} \\ m_{j,j+1} & p_{j,j+1} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} u_j^+(z_j) \\ u_j^-(z_j) \end{pmatrix}$$
(2.77)

beschrieben werden kann. Dabei setzt sich die Reflexionsmatrix  $R_{j,j+1}$  aus

$$p_{j,j+1} = \frac{k_{z,j+1} + k_{z,j}}{2k_{z,j+1}} \quad \text{und} \quad m_{j,j+1} = \frac{k_{z,j+1} - k_{z,j}}{2k_{z,j+1}}$$
(2.78)

zusammen. Die Koeffizienten stehen mit dem Fresnelschen Reflexionskoeffizienten  $r_{j,j+1}$  in Zusammenhang. Dieser ergibt sich aus dem Verhältnis der elektrischen Felder des einfallenden und des reflektierten Strahls in der Schicht j+1, wenn die Grenzfläche j, j+1 isoliert von ihrer Umgebung betrachtet wird. Weil dann keine Reflexion von der nächsten Grenzfläche zu berücksichtigen ist, gibt es keine zurücklaufende Welle in Schicht j, womit  $u_j^+ = 0$  gilt. Insgesamt ergibt sich mithilfe von Gleichung 2.77 die Beziehung

$$r_{j,j+1} = \frac{u_{j+1}^+(z_j)}{u_{j+1}^-(z_j)} = \frac{m_{j,j+1}}{p_{j,j+1}} = \frac{k_{z,j+1} - k_{z,j}}{k_{z,j+1} + k_{z,j}}.$$
(2.79)

Dabei ist zu beachten, dass die in Gleichung 2.79 verwendeten  $u_{j+1}^{\pm}(z_j)$  nicht den realen Komponenten im Mehrfachschichtsystem entsprechen, weil die zurücklaufenden Wellen nicht berücksichtigt werden. Damit handelt es sich in diesem Fall bei  $r_{j,j+1}$ um einen abstrakten Koeffizienten für die isolierte Betrachtung der Grenzfläche.

Zusätzlich ändert sich das Feld nach der Translationsmatrix  $T_j$  gemäß

$$\begin{pmatrix} u_j^+(z_{j+1}) \\ u_j^-(z_{j+1}) \end{pmatrix} = T_j \begin{pmatrix} u_j^+(z_j) \\ u_j^-(z_j) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} e^{ik_{z,j}d_j} & 0 \\ 0 & e^{-ik_{z,j}d_j} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} u_j^+(z_j) \\ u_j^-(z_j) \end{pmatrix}$$
(2.80)

innerhalb einer Schicht mit der Dicke  $d_j = z_{j+1} - z_j$ .

Für den Übergang vom Substrat in der Höhe $z_{\rm S}$ zur Oberfläche bei $z_N$ muss folglich die Matrix ${\bf M}$ 

$$\mathbf{M} = R_{\mathrm{Luft},N} T_N R_{N,N-1} \dots T_1 R_{1,\mathrm{Substrat}}$$

$$(2.81)$$

entsprechend

$$\begin{pmatrix} u_{\text{Luft}}^+(z_N) \\ u_{\text{Luft}}^-(z_N) \end{pmatrix} = \mathbf{M} \begin{pmatrix} u_{\text{Substrat}}^+(z_S) \\ u_{\text{Substrat}}^-(z_S) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} M_{11} & M_{12} \\ M_{21} & M_{22} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} u_{\text{Substrat}}^+(z_S) \\ u_{\text{Substrat}}^-(z_S) \end{pmatrix}$$
(2.82)

angewendet werden. Weil Röntgenstrahlen nur wenige Mikrometer in das Substrat eindringen, wird angenommen, dass sie das Substrat nicht durchdringen. Demzufolge gibt es keine vom Substratende reflektierte Welle, sodass  $u_{\text{Substrat}}^+ = 0$  gilt. Der Gesamtreflexionskoeffizient der Probe, welcher sich aus dem Verhältnis von einfallendem und reflektiertem Strahl an der Oberfläche bildet und aus dem die reflektierte Intensität mit Gleichung 2.72 ermittelt werden kann, ist demnach analog zu Gleichung 2.79 durch

$$r = \frac{u_{\text{Luft}}^+(z_N)}{u_{\text{Luft}}^-(z_N)} = \frac{M_{12}}{M_{22}}$$
(2.83)

gegeben. Die benötigten  $k_z$  lassen sich entsprechend des Snelliusschen Gesetzes über

$$k_{z,j} = -n_j k_{\text{Luft}} \sin(\alpha_j) = -k_{\text{Luft}} \sqrt{n_j^2 - \cos^2(\alpha_e)}$$
(2.84)

bestimmen, wobei  $k_{\text{Luft}}$  der Betrag des Wellenvektors in der Luft ist.

Die obige Betrachtung gilt nur für glatte Grenzflächen. Raue Grenzflächen können berücksichtigt werden, indem der Fresnelsche Reflexionskoeffizient um den sogenannten Névot-Croce-Faktor [54] mit der Rauheit  $\Delta_j$  zu

$$r_{j,j+1}^{\text{rau}} = r_{j,j+1}^{\text{glatt}} e^{-2k_{z,j}k_{z,j+1}\Delta_j^2}$$
(2.85)

erweitert wird.

## 3 Materialien

In dieser Arbeit soll Magnetit auf Strontiumtitanat aufgebracht werden. Beide Materialien werden in diesem Kapitel mit Schwerpunkt auf den für das heteroepitaktische Wachstum und die LEED-Messungen wichtigen Gittereigenschaften vorgestellt. Die grundlegenden Informationen stammen dabei aus [15].

## $3.1 \operatorname{SrTiO}_3$ – Strontiumtitanat

Als Substrat wird in dieser Arbeit Strontiumtitanat (SrTiO<sub>3</sub>) verwendet. Dieses kristallisiert in einer Perowskitstruktur mit einer Gitterkonstante von a = 3,905 Å, die in Abbildung 3.1 dargestellt ist. In [001]-Richtung besteht der Kristall aus alternieren-



Abbildung 3.1: Schematische Darstellung der Position der verschiedenen Ionen in der kubischen Einheitszelle der Perowskitstruktur von  $SrTiO_3$  mit der Gitterkonstante *a*. Adaptiert aus [22].

den SrO- und TiO<sub>2</sub>-Lagen [55]. Bei SrTiO<sub>3</sub> handelt sich um einen diamagnetischen Halbleiter, dessen Leitfähigkeit durch Dotierung erhöht werden kann [56, 57]. Um im Experiment Aufladungseffekte durch den Elektronenstrahl zu vermeiden, sind die in dieser Arbeit verwendeten Proben zu einem Massenanteil von 0,05% mit Niob dotiert.

### $3.2 \text{ Fe}_3O_4$ – Magnetit

Auf das Substrat wird in dieser Arbeit Magnetit (Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>) aufgebracht. Dieses ist ein ferrimagnetisches Material mit einer Curietemperatur von 860 K. Aus der Theorie wird erwartet, dass es sich um ein sogenanntes *Half-metal* mit einer Spinpolarisation von 100 % bei der Fermienergie handelt, sodass eine Spinorientierung halbleitend und die andere metallisch ist [4, 6, 10]. Bei Raumtemperatur besitzt es die in Abbildung 3.2 gezeigte inverse Spinellstruktur mit einer kubischen Einheitszelle, welche

#### **3 MATERIALIEN**



Abbildung 3.2: Schematische Darstellung der kubischen Einheitszelle von Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> mit der Gitterkonstanten *a*. Die O<sup>2-</sup>-Ionen formen ein kubisch flächenzentriertes Gitter. Die von Fe<sup>3+</sup>-Ionen besetzten Tetraederplätze sind durch Fe<sup>3+</sup><sub>tet</sub> und die gleichermaßen von Fe<sup>2+</sup>- und Fe<sup>3+</sup>-Ionen besetzten Oktaederplätze durch Fe<sup>2+/3+</sup><sub>okt</sub> gekennzeichnet. Die rote, gestrichelte Linie zeigt die Einheitszelle der (001)-Oberfläche ohne Überstruktur mit der Gitterkonstanten  $a_{(001)} = \frac{a}{\sqrt{2}}$ . Adaptiert aus [59].

die Gitterkonstante a = 8,396 Å hat [58]. Dabei formen die Sauerstoffionen ein kubisch flächenzentriertes Gitter, welches Tetraeder- und Oktaederlücken aufweist. Ein Achtel der Tetraederlücken wird von Fe<sup>3+</sup>-Ionen besetzt, während je eine Viertel der Oktaederlücken von Fe<sup>2+</sup>- und Fe<sup>3+</sup>-Ionen besetzt wird. Die Verteilung der beiden Eisenionenarten auf die vorgegebenen Oktaederplätze ist dabei zufällig [60]. Für die (001)-Oberfläche ergibt sich eine im Vergleich zur Volumeneinheitszelle um 45° gedrehte Einheitszelle mit der Gitterkonstanten  $a_{(001)} = \frac{a}{\sqrt{2}}$ . Zusätzlich bildet sich auf einer gut geordneten (001)-Oberfläche eine  $(\sqrt{2} \times \sqrt{2})$  R45°-Überstruktur, die für diese Oberfläche im Vergleich mit anderen Eisenoxiden charakteristisch ist [61]. Für das Wachstum von Magnetit auf SrTiO<sub>3</sub>(001) ergibt sich eine Gitterfehlanpassung von 7,51 %, wenn mit der halben Volumengitterkonstante von Magnetit gerechnet wird.

## 4 Experimentelle Grundlagen

In dieser Arbeit wurde bei verschiedenen Temperaturen sukzessiv Magnetit auf Strontiumtitanat aufgedampft, wobei jede Probe nach den einzelnen Aufdampfschritten mittels SPA-LEED untersucht wurde. Die Herstellung der Proben und die durchgeführten Messungen sowie die dazu nötigen Versuchsaufbauten werden in diesem Kapitel erklärt.

## 4.1 Vakuumkammer

Um möglichst reine Proben herzustellen, deren Oberfläche nicht von unerwünschten Absorbaten kontaminiert wird, ist ein Ultrahochvakuum (UHV) notwendig, mit dem ein Druckbereich von unter 10<sup>-8</sup> mbar bezeichnet wird [11]. Je geringer der Umgebungsdruck ist, desto länger dauert die Besetzung der Oberfläche mit Absorbaten [18]. Auch die LEED-Messungen können nur unter Vakuumbedingungen durchgeführt werden, bei denen die Beeinträchtigung der Elektronen durch die Luft verringert ist. Mit sinkendem Druck werden die LEED-Messungen weniger verrauscht.

Daher wird die in Abbildung 4.1 dargestellte UHV-Kammer verwendet, welche die Herstellung der Proben und die SPA-LEED-Messung ermöglicht. Das Ultrahoch-



Abbildung 4.1: Schematischer Aufbau der verwendeten UHV-Kammer, bestehend aus Manipulator mit Heizung, SPA-LEED-Instrument, Eisenverdampfer, Sauerstoffeinlass und Pumpen sowie einer Vorkammer zur Einschleusung der Probe. Erstellt nach [62].

vakuum wird mithilfe einer Turbomolekularpumpe mit vorangehender Drehschieberpumpe, einer Ionengetterpumpe und einer Titansublimationspumpe erzeugt. Die

#### 4 EXPERIMENTELLE GRUNDLAGEN

Probe wird auf einen Probenhalter montiert und kann mit einem Transferstab über eine Vorkammer eingeschleust werden, die mit einer Kombination aus Drehschieberpumpe und Turbomolekularpumpe abgepumpt werden kann. Die Probe kann in der Hauptkammer mit einem Manipulator durch Verschiebung in alle Richtungen und Drehung um zwei Achsen frei ausgerichtet werden. Der Manipulator ist zusätzlich mit einer Probenheizung ausgestattet. Des Weiteren befindet sich ein Sauerstoffeinlass in der Kammer, mit dem eine Atmosphäre aus molekularem Sauerstoff erzeugt werden kann. Darüber hinaus sind ein Eisenverdampfer für den Aufdampfprozess der Magnetitschichten und ein SPA-LEED-Instrument angeschlossen.

## 4.2 Propenpräparation

Im Rahmen dieser Arbeit wurde auf vier Substrate von  $SrTiO_3(001)$  bei unterschiedlichen Temperaturen sukzessiv Magnetit aufgedampft.

Dazu wurden handelsübliche Substrate mit einer Niob-Dotierung zu einem Massenanteil von 0,05 % verwendet. Diese wurden zunächst durch Heizen auf eine Temperatur von 450 °C bei einem durch den Sauerstoffeinlass geregelten Sauerstoffdruck von  $1 \times 10^{-4}$  mbar für eine Stunde gereinigt. Die Sauerstoffatmosphäre dient dazu, Adsorbate von der Oberfläche zu entfernen und die Entstehung von Sauerstoffvakanzen in der Probe zu verhindern. Das Heizen erfolgt durch einen Heizdraht am Manipulator, der durch Stromfluss erwärmt wird. Zusätzlich wird eine Hochspannung von 1 kV angelegt. Dadurch werden aus dem Draht austretende Elektronen zur Probe beschleunigt, um eine weitere Erwärmung beim Auftreffen zu erzielen. Die Messung der Temperatur erfolgt mit einem Thermoelement, das am Manipulator in der Nähe der Probe angebracht ist, weshalb sie von der tatsächlichen Probentemperatur abweichen und auch an verschiedenen Orten auf der Probe unterschiedlich sein kann.

Nach einer SPA-LEED-Untersuchung des Strontiumtitanats wurden die Magnetitschichten mittels reaktiver Molekularstrahlepitaxie aufgedampft. Dazu wird ein Eisenstab erhitzt, sodass durch Sublimation Eisenatome freigesetzt werden, die als Molekularstrahl auf die Probe treffen. Dies findet in einer Sauerstoffatmosphäre statt, damit die Eisenatome bei der Absorption auf der Probe zu Magnetit reagieren. Die Erhitzung des Eisens im Verdampfer erfolgt wie bei der Probe durch einen Heizdraht mit zusätzlich angelegter Hochspannung. Die Aufdampfrate kann mit einem Fluxmeter kontrolliert werden, das im Verdampfer auf dem Weg des Eisenstrahls angebracht ist und einen durch auftreffende Eisenionen erzeugten Strom misst. Zusätzlich ermöglicht ein *Shutter* die Unterbrechung des Strahls.

Während des Aufdampfens wurden die Proben geheizt, wobei in diesem Fall keine Hochspannung angewendet wurde. Bei den vier Proben wurden mit 150 °C, 200 °C, 250 °C bzw. 350 °C unterschiedliche Probentemperaturen eingestellt, während die anderen Bedingungen gleich gelassen wurden. Es wurde jeweils bei einem Sauerstoffdruck von  $5 \times 10^{-6}$  mbar und einem Fluxmeterstrom von 100 nA sukzessiv für insgesamt 50 min aufgedampft. Bei jedem Aufdampfschritt wurde die Probe nach dem Schließen des *Shutters* zunächst weiter für 5 Minuten in der Sauerstoffatmosphäre geheizt. Der Sauerstoff wurde abgepumpt, sobald die Probe auf 120 °C abgekühlt war, woraufhin bei erreichtem Druck von unter  $1 \times 10^{-8}$  mbar eine SPA-LEED-Untersuchung durchgeführt wurde.

## 4.3 SPA-LEED-Instrument

Für die Messungen mittels Elektronenbeugung wird ein SPA-LEED-Instrument verwendet, das in [24] vorgestellt wurde. In dieser Arbeit wurde ein Omicron-System eingesetzt, dessen Aufbau in Abbildung 4.2 dargestellt ist.



Abbildung 4.2: Schematische Darstellung des SPA-LEED-Instruments. Zwischen Elektronenkanone und detektierendem *Channeltron* besteht ein Winkel von  $\alpha = 8^{\circ}$ . Einfallender und ausfallender Strahl werden durch die Oktopolplatten um den gleichen Winkel  $\varepsilon$  abgelenkt. Adaptiert aus [63].

Der Elektronenstrahl wird von einer Elektronenkanone erzeugt, die aus einem Filament als Kathode, einem Wehneltzylinder, einer Anode und elektrostatischen Linsen besteht. Die Elektronenenergie wird über die Kathodenspannung eingestellt. Vor der Probe befindet sich eine sogenannte Kristalllinse zur weiteren Fokussierung. Die zurückgestreuten Elektronen werden mithilfe eines *Channeltrons* detektiert, das im Winkel  $\alpha = 8^{\circ}$  zur Elektronenkanone angebracht ist. Elektrostatische Oktopolplatten können die Elektronen auf ihrem Weg mittels elektrischer Felder ablenken, sodass die Winkel von einfallendem und detektiertem Strahl um einen Winkel  $\varepsilon$  variiert werden. Die Ansteuerung der Oktopolplatten geschieht mit einer in [64] entwickelten Software. Dadurch kann, wie in Kapitel 2.2.1 beschrieben, der reziproke Raum abgefahren werden. Wenn die Probe so ausgerichtet ist, dass in neutraler Stellung der spekulare (00)-Reflex zu sehen ist, stimmt  $\varepsilon$  mit dem Winkel des Streuvektors gegenüber der Oberflächensenkrechten aus Abbildung 2.2 überein. Vor dem *Channeltron* befindet sich ein *Suppressor*, der mithilfe eines negativen Potentials möglichst nur

### 4 EXPERIMENTELLE GRUNDLAGEN

die elastisch gestreuten Elektronen passieren lassen soll. Elektronen mit geringen Energieverlusten können jedoch aufgrund der Ungenauigkeit des Potentials nicht ausgeschlossen werden, sodass das Beugungsbild, wie in Kapitel 2.2.8 beschrieben, durch Phononenanregungen beeinflusst werden kann. Die Intensität des Elektronenstrahls wird so hoch eingestellt, wie es ohne Sättigungseffekte im *Channeltron* möglich ist.

Der Vorteil des SPA-LEED-Systems gegenüber einem konventionellen LEED-System ist grundsätzlich, dass das Beugungsbild durch elektronische Ablenkung und nicht durch einen festen Schirm entsteht. Dadurch ist der Beugungswinkel genauer einstellbar und eine höhere Auflösung möglich. Zur Auswertung von Reflexprofilen können sogenannte *Linescans* durchgeführt werden. Dabei wird die Intensität gemessen, während der reziproke Raum in einer bestimmten Richtung durchfahren wird. Aufgrund der Geometrie kann auch der (00)-Reflex untersucht werden, der bei konventionellem LEED durch die Elektronenkanone verdeckt wird. Allerdings bewirken Inhomogenitäten der elektrischen Felder der Oktopolplatten beim SPA-LEED eine Tonnenverzerrung des Beugungsbildes, bei der weiter außen liegende Reflexe stärker nach innen verschoben sind [65].

## 4.4 XRR-Aufbau

Die XRR-Messungen wurden am Diffraktometer der *Beamline* P08 [66] der Synchrotronstrahlungsquelle PETRA III am Deutschen Elektronen-Synchrotron (DESY) in Hamburg durchgeführt. Dabei wurde ein Röntgenstrahl mit einer Energie von 18 keV verwendet, die einer Wellenlänge  $\lambda$  von 0,689 Å entspricht. Die Messung erfolgte an Luft in der  $\theta$ -2 $\theta$ -Geometrie, die in Abbildung 4.3 dargestellt ist. Dabei wird der



**Abbildung 4.3:** Schema der  $\theta$ - $2\theta$ -Geometrie des Diffraktometers an P08 für die XRR-Messungen. Der eintreffende Röntgenstrahl  $\vec{k_e}$  trifft im Winkel  $\theta$  auf die Probe und wird im gleichen Winkel reflektiert. Der reflektierte Strahl  $\vec{k_r}$  wird im Winkel  $2\theta$  zum einfallenden Strahl detektiert. Adaptiert aus [67].

Winkel  $\theta$  von der Probenoberfläche zum einfallenden Röntgenstrahl  $\vec{k_e}$  durch Drehung der Probe variiert und die Intensität des reflektierten Strahls  $\vec{k_r}$  gemessen. Da der Strahl im gleichen Winkel reflektiert wird, muss der Detektor stets auf den doppelten Winkel  $2\theta$  zum Röntgenstrahl gedreht werden.
# 5 Messerergebnisse

In diesem Kapitel werden die Messergebnisse vorgestellt und ausgewertet. Dabei wird zuerst auf die SPA-LEED-Messungen am Substrat eingegangen. Danach wird zu den aufgedampften Magnetitschichten übergegangen, wobei zunächst die XRR-Ergebnisse behandelt werden, um sich an den Dicken der Schichten orientieren zu können. Anschließend werden die SPA-LEED-Messungen an den Magnetitschichten betrachtet.

### 5.1 SPA-LEED-Messungen an den $SrTiO_3(001)$ -Substraten

Nach dem in Kapitel 4.2 beschriebenen Reinigungsprozess des  $SrTiO_3(001)$ -Substrats wurde jede Probe vor dem Aufdampfen mittels SPA-LEED untersucht. Da die Substrate vor dem Aufdampfen alle gleich behandelt wurden, werden die Proben mit den späteren Aufdampftemperaturen von 150 °C, 200 °C, 250 °C bzw. 350 °C in diesem Kapitel als Probe A, B, C bzw. D bezeichnet. Für die Auswertung werden zunächst die Beugungsbilder betrachtet, bevor die Profilform des (00)-Reflex genauer untersucht wird, aus der sich die Terrassenlängenverteilung berechnen lässt. Weiterhin wird die  $G_0(S)$ -Kurve betrachtet, wobei ebenfalls auf Inhomogenitäten eingegangen wird.

### 5.1.1 Beugungsbilder

Beugungsbilder sind geeignet, um einen Überblick über die Oberflächenstruktur zu erhalten. Abbildung 5.1 zeigt die SPA-LEED-Bilder für die Substrate der vier Proben bei einer Elektronenenergie von 100 eV. In allen Bildern ist die  $(1 \times 1)$ -Struktur der SrTiO<sub>3</sub>(001)-Oberfläche zu erkennen. Einige Reflexe sind in mehrere kleine Reflexe aufgespalten. Dabei handelt es sich vermutlich um Messartefakte, die z. B. auf Ungenauigkeiten in der Fokussierung durch das Linsensystem zurückzuführen sein könnten. Des Weiteren ist eine Tonnenverzerrung der Reflexe sichtbar.

Um die Positionen im reziproken Raum festzulegen und im Zuge dessen auch die Verzerrung aufzuheben, wird eine Kalibrierung benötigt. In dieser Arbeit werden dafür die Substratreflexe als Referenzpunkte verwendet, wobei davon ausgegangen wird, dass sie sich an den durch die Gitterkonstante von SrTiO<sub>3</sub> festgesetzten Positionen befinden. Zu diesem Zweck wurden bei Probe C für jede Energie, die auch bei den weiteren Messungen verwendet wurde, die in Abbildung 5.1(c) dargestellten *Linescans* aufgenommen. Auch wenn die Reflexe wegen der Verzerrung nicht auf einer perfekten Gerade liegen, lassen sich mit dem *Linescan* in horizontaler Richtung die Reflexe ( $\overline{10}$ ), (00) und (10) und mit dem *Linescan* in diagonaler Richtung



**Abbildung 5.1:** 2D-SPA-LEED-Bilder der SrTiO<sub>3</sub>-Substrate nach dem Reinigungsprozess bei 100 eV. In (a) ist die Einheitszelle der  $(1 \times 1)$ -Struktur und in (c) sind die durchgeführten *Linescans* eingezeichnet.

die Reflexe ( $\bar{1}\bar{1}$ ), (00) und (11) betrachten. Anschließend wurde jeder *Linescan* mit einer Funktion so entzerrt, dass die Reflexe auf ihre vorgesehenen Positionen für die parallele Komponente  $K_{\parallel}$  des Streuvektors gesetzt werden. Da die vorhandenen Referenzpunkte nicht ausreichen, um die Form der Verzerrung abzubilden, können die Messungen nicht vollkommen korrekt entzerrt werden. Nur im Bereich der Referenzpunkte sollten die Positionen richtig sein. Nichtsdestotrotz wurde diese Kalibrierung für alle anderen *Linescans* dieser Arbeit verwendet, indem jeweils die Entzerrungsfunktion der entsprechenden Richtung und Energie angewendet wurde.

### 5.1.2 Profilanalyse

Wie bereits in Kapitel 2.2.8 ausgeführt, eignet sich der (00)-Reflex gut für die Analyse der Morphologie, da er nicht von lateralen Positionsabweichungen beeinflusst wird. Bei den Substraten wurde zusätzlich das Intensitätsprofil des (00)-Reflex im Energiebereich von 80 bis 160 eV mit Schritten von 2 eV in den beiden Richtungen aus Abbildung 5.1(c) in einem kleineren Ausschnitt mit größerer Auflösung gemessen, wobei anschließend die im vorigen Kapitel beschriebene Kalibrierung angewendet wurde. Nur bei der zuerst hergestellten Probe C fehlt die Messung in diagonaler Richtung, weil mit dieser Messrichtung im kleineren Ausschnitt erst ab der zweiten Probe begonnen wurde. Abbildung 5.2 zeigt exemplarisch das Profil der Probe A in diagonaler Richtung für eine In- und eine Out-Phase. Das Profil setzt sich aus einer Spitze und einer



**Abbildung 5.2:** Intensitätsprofil des (00)-Reflexes des Substrats der Probe A in diagonaler Richtung (a) bei der Energie E = 118 eV in der Nähe der In-Phase und (b) bei E = 102 eV in der Nähe der Out-Phase. Das Profil lässt sich mit je einer zweidimensionalen Lorentzfunktion für Spitze und Schulter anpassen.

Schulter zusammen. In der In-Phase tritt die Spitze am stärksten und die Schulter am schwächsten in Erscheinung, während es in der Out-Phase umgekehrt ist. Dieses Verhalten tritt auch bei den anderen Proben auf und lässt grundsätzlich eine aus wenigen Lagen bestehende Oberfläche vermuten. Das Profil wird zur Analyse mit Fitfunktionen angepasst. Dabei wird stets ein linearer, nahezu konstanter, Untergrund verwendet. Beim Reflex wurde in diesem Fall für die Spitze und die Schulter jeweils eine zweidimensionale Lorentzfunktion gewählt, da diese die gemessenen Profile gut wiedergeben.

Die Parameter der Fitfunktionen können bezüglich ihrer Energieabhängigkeit untersucht werden. Die Energie E wird dabei über Gleichung 2.11 in die vertikale Komponente  $K_{\perp}$  des Streuvektors umgerechnet, da diese proportional zur Streuphase ist. Als Ungenauigkeit für die Parameter wurde anhand einiger typischer Messungen der Bereich abgeschätzt, innerhalb dessen die Änderung eines Parameters weiterhin ein für die Messdaten plausibel erscheinendes Ergebnis der Funktionsanpassung zur Folge hat. Dabei wird nicht berücksichtigt, dass breite Reflexe überlagern können, wodurch sich vor allem bei schwachen Reflexen die Zuordnung der Fitfunktionen erschwert, sodass die Funktionsanpassung ungenauer wird. Außerdem kann der Untergrund nicht ohne Weiteres ermittelt werden, da die Schulter über den Bildausschnitt hinausreicht. Dadurch ergibt sich eine weitere Ungenauigkeit, da der Untergrund so angepasst wird, dass er mit der vorgegebenen Profilform zu einer optimalen Annäherung an die Messwerte führt. Bei einer Abweichung des Untergrunds

vom tatsächlichen Wert ändert sich die Intensität, aber auch die Halbwertsbreite der Reflexe.

In Abbildung 5.3 ist die Halbwertsbreite der Spitze in Abhängigkeit von der vertikalen Komponente  $K_{\perp}$  des Streuvektors gezeigt. Dabei sind zum einen die vier Proben in horizontaler Richtung und zum anderen ein Vergleich von horizontaler zu diagonaler Richtung dargestellt. Während bei Probe A nur ein abnehmender Trend



**Abbildung 5.3:** Halbwertsbreite der Spitze des (00)-Reflexes der Substrate in Abhängigkeit von der vertikalen Komponente  $K_{\perp}$  des Streuvektors (a) in horizontaler Richtung für die vier Proben und (b) im Vergleich zwischen horizontaler und diagonaler Richtung für die Proben A und D.

zu erkennen ist, weisen die Kurven bei allen anderen Proben eine Oszillation der Halbwertsbreite auf. Der Verlauf ist dabei jeweils in horizontaler und diagonaler Richtung ähnlich, wobei die Halbwertsbreite in diagonaler Richtung durchgehend etwas größer ist.

Abbildung 5.4 zeigt die Halbwertsbreite der Schulter in Abhängigkeit von  $K_{\perp}$  für die vier Proben in horizontaler Richtung sowie im Vergleich zwischen horizontaler und diagonaler Richtung. Aufgrund der geringen Intensität der Schulter sowie der vielen Parameter bei der Funktionsanpassung ist der absolute Fehler der Schulterparameter bei den einzelnen *Linescans* groß. Der qualitative Verlauf der Parameter in Abhängigkeit von  $K_{\perp}$ , also der relative Unterschied der Parameter aus verschiedenen *Linescans*, sollte aber nahezu korrekt wiedergegeben werden. Daher werden die geschätzten absoluten Fehler in den Darstellungen für die Schulter und die auf der Schulter beruhenden Werte der G(S)-Kurven in den Kapiteln 5.1.4 und 5.1.5 zur besseren Übersicht nicht eingezeichnet. Für die vier Proben ist eine mehr oder weniger stark ausgeprägte Oszillation der Halbwertsbreite der Schulter mit  $K_{\perp}$  zu sehen. Wie bei der Spitze sind die Verläufe für beide Richtungen ähnlich, aber die Werte in diagonaler Richtung etwas höher.

Der Vergleich der Richtungen zeigt, dass die Profile annähernd rotationssymmetrisch sind. Im Rahmen der nicht eingezeichneten großen Messungenauigkeiten stimmen die



**Abbildung 5.4:** Halbwertsbreite der Schulter des (00)-Reflexes der Substrate in Abhängigkeit von der vertikalen Komponente  $K_{\perp}$  des Streuvektors in horizontaler Richtung für (a) die Proben A und B und (b) die Proben C und D sowie im Vergleich zwischen horizontaler und diagonaler Richtung für (c) Probe A und (d) Probe D.

Halbwertsbreiten weitestgehend überein. Die etwas größere Halbwertsbreite in diagonaler Richtung ist möglicherweise darauf zurückzuführen, dass der Bildausschnitt bei der Messung in diagonaler Richtung etwas größer war. Dadurch berücksichtigt die Funktionsanpassung auch die weiter außen liegenden Anteile der Schulter. Leichte Abweichungen des Profils von der 2D-Lorentzform können dazu führen, dass die Anpassung dann eine andere Breite für die Fitfunktionen als optimal angibt. Dadurch hängt die Breite vom Bildausschnitt ab und ist in diesem Fall bei der diagonalen Messung mit dem größeren Bildausschnitt größer.

Die Oszillation der Halbwertsbreite der Schulter mit Minima in den In-Phasen und

Maxima in den Out-Phasen könnte sich durch atomare Stufen an der Oberfläche erklären lassen und würde darauf hindeuten, dass die Oberfläche aus mehreren Schichten besteht. Die Form der Spitze kann nach der Theorie durch die instrumentelle Verbreiterung, die thermische Verbreiterung und die Verbreiterung durch anderweitige Domänen wie z. B. Körner erzeugt werden, wobei sich jedoch keine oszillierende Halbwertsbreite ergeben sollte.

Eine Erklärung für die Oszillation könnte die oszillierende Schulter sein. Aus dem Vergleich der beobachteten Oszillationen der Halbwertsbreite wird ersichtlich, dass diese bei der Schulter und der Spitze gleichphasig ablaufen. Dies könnte darauf hindeuten, dass die Fitfunktion der Spitze von der Schulter beeinflusst wird, indem sie die Oszillation übernimmt. Bei der Überlagerung von Lorentzfunktionen ist die Identifikation der einzelnen Funktionen schwieriger als bei z. B. Gaußfunktionen, da die starken Flanken bei Lorentzfunktionen einen glatten Übergang ermöglichen [36]. Auch bei Probe A in Abbildung 5.2 ist der Übergang in den Messwerten schwierig zu erkennen. Außerdem ist die Oszillation der Schulter bei Probe A mit am stärksten ausgeprägt, während sie vor allem bei Probe D schwächer ist. Dies könnte darauf basieren, dass die Lorentzfunktion der Spitze einen Teil von der Oszillation der Lorentzfunktion der Schulter abnimmt. Um weiterhin ein plausibles Fitergebnis zu erhalten, würde die Oszillation der Schulter dann geringer ausgeprägt sein. Bei Probe A wäre dies hingegen nicht der Fall, sodass die Oszillation bei der Schulter weiterhin stärker ausgeprägt bleiben würde. Demnach würde die Halbwertsbreite der Spitze an sich nicht oszillieren, sondern es wäre eher ein Problem, das durch die Zuweisung der Lorentzfunktionen bei der Funktionsanpassung entsteht. Aufgrund des glatten Übergangs zwischen den Funktionen lässt sich die tatsächliche Aufteilung jedoch nicht eindeutig bestimmen, weshalb für die weitere Analyse des Schulterprofils die Schulterfunktion aus der Anpassung verwendet wird.

Der nicht oszillierende Anteil der Halbwertsbreite der Spitze ist mit den aus der Theorie bekannten Verbreiterungen zu erklären. Weil das SPA-LEED-Instrument erst vor Beginn der Messungen an der Kammer angebracht wurde, ist die instrumentelle Verbreiterung nicht bekannt. Sie ist allerdings typischerweise gaußförmig und nimmt mit der Energie zu, wie in Kapitel 2.2.6 beschrieben wurde, weshalb die Verbreiterung eventuell weitere Ursachen besitzt. Während die Multiphononenstreuung nicht zu einer Änderung der Profilform führt, erzeugt die Einphononenstreuung eine energieabhängige Verbreiterung nach Gleichung 2.62. Dieser zusätzliche Einfluss könnte die andere gemessene Profilform und die Abnahme der Halbwertsbreite mit der Energie erklären. Um die beiden Arten der Verbreiterung voneinander zu trennen, wäre eine bessere Energieauflösung nötig, mit der die an Phononen gestreuten Elektronen aufgrund ihres geringen Energieunterschieds aussortiert werden können. Wie in Kapitel 4.3 erläutert, ist dies jedoch mit dem verwendeten Messinstrument nicht möglich. Die thermische Verbreiterung kann für die Analyse aber in die instrumentelle Verbreiterung inkludiert werden, sodass sich die gemeinsame Profilform aus der Zusammensetzung beider Verbreiterungen ergibt. Zu diesem Zweck wurde bei Messungen an Al(111) bereits eine Kombination aus Gauß und Lorentz als Form der resultierenden instrumentellen Verbreiterung für plausibel erachtet [30]. Auch Domänen können die Ursache für eine Verbreiterung sein. Diese lässt sich ebenfalls mit der instrumentellen Verbreiterung zu einer gemeinsamen Funktion zusammenfassen [25]. Insgesamt können die verschiedenen Einflüsse also durch eine allgemeine Verbreiterung berücksichtigt werden, mit der das Beugungsprofil gefaltet wird. Es lässt sich annehmen, dass die Zusammensetzung in diesem Fall zu der 2D-Lorentzform des gemessenen Profils der Spitze führt. Wie groß die Anteile der verschiedenen Einflüsse auf die allgemeine Verbreiterung sind, lässt sich allerdings nicht sagen. Die jeweiligen Verbreiterungen können aber höchstens so groß wie die allgemeine Verbreiterung sein, die nach Abbildung 5.3 unter 1 %BZ liegt. Deswegen muss die durchschnittliche laterale Domänengröße nach Gleichung 2.60 mindestens etwa 10 nm und die Transferweite nach Gleichung 2.59 mindestens etwa 40 nm betragen, sodass beide eine Vielzahl an Einheitszellen einnehmen.

Bei einigen Messungen der Proben A und B ist auch eine eher ringartige Form der Schulter zu erkennen. Da bei den Messungen in horizontaler Richtung die Auflösung etwas größer und der Bildausschnitt etwas kleiner ist, lässt sich das Phänomen in dieser Richtung besser beobachten. In Abbildung 5.5 sind die Profile in der Out-Phase bei der Energie von 102 eV abgebildet, bei der die Form am deutlichsten sichtbar ist. Dort wurde zusätzlich zu der vorherigen Funktionsanpassung eine al-



**Abbildung 5.5:** Funktionsanpassung des Intensitätsprofils des (00)-Reflexes der Substrate (a) der Probe A und (b) der Probe B in horizontaler Richtung bei der Energie E = 102 eV mit zwei gekoppelten zweidimensionalen Lorentzfunktionen für die Schulter.

ternative Anpassung mit zwei verschobenen zweidimensionalen Lorentzfunktionen für die Schulter vorgenommen. Dabei wurden die Halbwertsbreiten und Intensitäten der beiden Schulterfunktionen so gekoppelt, dass sie gleich groß sind.

Die Spitze zeigt bei dieser Anpassung das gleiche Verhalten wie bei der einfachen Anpassung mit einer Schulterfunktion. Der Verlauf von Halbwertsbreite und Radius der Schulterfunktionen in Abhängigkeit von  $K_{\perp}$  ist in Abbildung 5.6 dargestellt. Da

die Position der Schulterfunktionen bei der Funktionsanpassung nicht festgehalten oder gekoppelt wurde und sich die beiden Funktionen deswegen im Abstand zur Spitze unterscheiden können, wurde der Radius  $\delta$  aus beiden Schulterfunktionen gemittelt. Bei Probe A ist die Ringstruktur größtenteils nicht sichtbar und der Radius



Abbildung 5.6: (a) Halbwertsbreite und (b) Radius  $\delta$  aus der Anpassung mit zwei gekoppelten zweidimensionalen Lorentzfunktionen für die Schulter des (00)-Reflexes der Substrate der Proben A und B in horizontaler Richtung in Abhängigkeit von der vertikalen Komponente  $K_{\perp}$  des Streuvektors.

weicht nur in den Out-Phasen stärker von 0 ab. Die Halbwertsbreite zeigt eine Oszillation, die ähnlich zu der Oszillation bei der einfachen Anpassung abläuft. Probe B weist hingegen eine ausgeprägtere Ringstruktur auf und der Verlauf des Radius zeigt eine deutliche Oszillation, während die Halbwertsbreite keinen Trend aufweist. Die Variation des Schulterprofils mit der Streuphase wird also mit zunehmender Ausprägung der Ringstruktur mehr durch eine Änderung des Radius als durch eine Änderung der Halbwertsbreite erzeugt.

### 5.1.3 Terrassenlängenverteilung

Aus den vorliegenden Funktionsanpassungen für die Schulter kann die Terrassenlängenverteilung bestimmt werden. Unter der Annahme von Rotationssymmetrie, die durch den Richtungsvergleich der Halbwertsbreiten annähernd gezeigt wurde, entspricht die einfache Anpassung mit einer 2D-Lorentzfunktion dabei einer geometrischen Verteilung. Die ringartige Struktur mit den zwei Schulterfunktionen kann einer Gammaverteilung der Terrassen zugeordnet werden. Dabei ist zu beachten, dass der Exponent  $\nu$  der Lorentzfunktionen nach Abbildung 2.6 für eine optimale Näherung von der Schärfe der Gammaverteilung abhängen sollte. Aufgrund der Verwendung der 2D-Lorentzfunktionen beträgt der Exponent jedoch konstant  $\frac{3}{2}$ , sodass es sich nicht um eine perfekte Gammaverteilung handelt. Weil diese Anpassung aber gut mit den Messwerten übereinstimmt und das Integral, welches im weiteren Verlauf für die Berechnung der  $G_0(S)$ -Kurve benötigt wird, bei Verwendung von 2D-Lorentzfunktionen einfach zu berechnen ist, wird auf eine Änderung des Exponenten verzichtet. Dennoch wird diese Funktionsanpassung im weiteren Verlauf als Anpassung mit einer Gammaverteilung bezeichnet.

Die Parameter der Verteilungen können aus Halbwertsbreite und Radius der angepassten Funktionen bei der Out-Phase ermittelt werden. Für die Auswertung müssen die Halbwertsbreiten der Schulter von der allgemeinen Verbreiterung bereinigt werden. Da die gemessene Spitze der Probe A insgesamt die geringste Halbwertsbreite besitzt und die Minima der oszillierenden Kurven an den entsprechenden Stellen nahezu die gleichen Werte annehmen, wird sie der Einfachheit halber für alle Substratmessungen als allgemeine Verbreiterung verwendet. Die Entfaltung von der allgemeinen Verbreiterung kann durch die Subtraktion der Halbwertsbreiten angenähert werden, sodass bei den Halbwertsbreiten für die weitere Berechnung jeweils die Halbwertsbreite der Spitze der Probe A bei der entsprechenden Energie und Richtung aus Abbildung 5.3(b) abgezogen wurde. Für die Auswertung des Substrats ist es dabei nicht wichtig, wodurch die allgemeine Verbreiterung zustande kommt, da diese auch auf die Schulter wirkt und somit zu korrigieren ist. Bei den Magnetitschichten kann die allgemeine Verbreiterung aber anders sein, da andere Domänen auftreten und die thermischen Effekte aufgrund des unterschiedlichen Materials andere Auswirkungen haben könnten. Deshalb wird dort bei der Auswertung keine Korrektur durch Entfaltung vorgenommen.

Bei der geometrischen Verteilung können die Gleichungen 2.38 und 2.52 angewendet werden, um die mittlere Terrassenlänge  $\langle \Gamma \rangle$  zu berechnen. Bei der Gammaverteilung wird nach dem in Kapitel 2.2.5 beschriebenen Näherungsverfahren vorgegangen. Dabei ist eine Bestimmung von  $\langle \Gamma \rangle$  und der Standardabweichung  $\sigma$  über zwei Wege möglich. Der erste Weg führt über die Halbwertsbreite mithilfe von Gleichung 2.55, während der zweite Weg mithilfe von Gleichung 2.56 über den Radius führt. Für die nötige grafische Abschätzung von  $\frac{\sigma}{\langle \Gamma \rangle}$  wurde ein Fehler von 0,05 angenommen, um zusätzlich auch die Ungenauigkeit der Näherungen zu berücksichtigen. Die aus den Parametern in den Out-Phasen berechneten Werte für  $\langle \Gamma \rangle$  und  $\sigma$  sind in Tabelle 5.1 aufgeführt, wobei für die beiden sichtbaren Out-Phasen die Energien  $E = 102 \,\text{eV}$  mit  $K_{\perp} = 10,3 \,\text{Å}^{-1}$  und  $E = 136 \,\text{eV}$  mit  $K_{\perp} = 11,9 \,\text{Å}^{-1}$  gewählt wurden. Es sei nochmals erwähnt, dass die Größen die entsprechende Anzahl an Einheitszellen angeben.

Für die geometrische Verteilung stimmen die ermittelten mittleren Terrassenlängen  $\langle \Gamma \rangle$  aus allen Messungen im Rahmen der Fehlergrenzen nahezu überein. Aus der horizontalen Messung ergeben sich größere Werte, da die verwendeten Halbwertsbreiten, wie bereits erwähnt, etwas kleiner sind. Weiterhin lassen sich die Parameter aus den beiden Funktionsanpassungen miteinander vergleichen. Die Standardabweichung kann mit der geometrischen Verteilung verglichen werden, da diese einen Spezialfall der Gammaverteilung mit  $\frac{\sigma}{\langle \Gamma \rangle} = 1$  darstellt. Im Vergleich der entsprechenden Messungen ergeben sich für die Gammaverteilung höhere mittlere Terrassenlängen  $\langle \Gamma \rangle$ . Der Unterschied ist bei Probe B mit der ausgeprägteren Ringstruktur größer

Energie	Probe	geometrische Verteilung		Gammaverteilung			
				über Halbwertsbreite		über Radius	
		diagonal horizontal		horizontal		horizontal	
		$\langle \Gamma \rangle = \sigma$	$\langle \Gamma \rangle = \sigma$	$\langle \Gamma \rangle$	$\sigma$	$\langle \Gamma \rangle$	$\sigma$
$102\mathrm{eV}$	А	$2,8\pm0,4$	$3,2\pm0,5$	$3,9\pm0,9$	$3,5\pm1,0$	$4,9\pm2,\!6$	$4{,}4\pm2{,}6$
	В	$2,8\pm0,3$	$3,1\pm0,4$	$5,3\pm1,1$	$4,\!2\pm1,\!1$	$5,8\pm1,4$	$4{,}5\pm1{,}3$
	С		$2,7\pm0,2$				
	D	$2,5\pm0,3$	$2,9\pm0,4$				
$136\mathrm{eV}$	А	$3,2\pm0,8$	$3,3\pm0,7$	$4,1\pm1,4$	$3,7\pm1,5$	$5,1\pm4,2$	$4{,}6\pm4{,}0$
	В	$3,2\pm0,5$	$3,3\pm0,5$	$5,1\pm1,7$	$4,1\pm1,\!6$	$5,7\pm2,3$	$4{,}6\pm2{,}2$
	С		$3,3\pm0,3$				
	D	$3,1\pm0,5$	$3,5\pm0,6$				

**Tabelle 5.1:** Vergleich der ermittelten mittleren Terrassenlängen  $\langle \Gamma \rangle$  und Standardabweichungen  $\sigma$  der Substrate aus der einfachen Anpassung für die geometrische Verteilung in beiden Richtungen und aus der Anpassung mit zwei 2D-Lorentzfunktionen für die Gammaverteilung in horizontaler Richtung bei den Energien der beiden sichtbaren Out-Phasen. Für die geometrische Verteilung gilt  $\langle \Gamma \rangle = \sigma$ . Die Berechnung der Parameter der Gammaverteilung kann mit Gleichung 2.55 über die Halbwertsbreite oder mit Gleichung 2.56 über den Radius erfolgen.

als bei Probe A. Außerdem sinkt das Verhältnis  $\frac{\sigma}{\langle \Gamma \rangle}$  zu ungefähr 0,9 bei Probe A und 0,8 bei Probe B, wie es mit ausgeprägterer Ringstruktur zu erwarten ist.

Zur Anpassung mit der Gammaverteilung ist allerdings zu sagen, dass der Fehler der berechneten Parameter aufgrund des komplizierten Näherungsverfahrens sehr groß ist. Außerdem fällt der Fehler beim Weg über den Radius größer aus, da dieser ungenauer als die Halbwertsbreite zu bestimmen ist. Zudem entsteht durch den geänderten Exponenten ein Fehler in der Näherung, der nicht in die Fehlerrechnung miteinbezogen werden konnte. Außerdem ergibt sich bei den beiden Anpassungsarten ein unterschiedlicher linearer Untergrund, da er mit der vorgegebenen Profilform zu einer optimalen Annäherung an die Messwerte führen muss, wie bereits in Kapitel 5.1.2 beschrieben wurde. Dies beeinflusst auch die Halbwertsbreiten.

Die quantitative Auswertung stellt sich somit durch die hohen Ungenauigkeiten als schwierig dar, sodass im Grunde genommen nur qualitative Aussagen über die Terrassenlängenverteilung getroffen werden können. Weil die geometrische Verteilung ein Spezialfall der Gammaverteilung ist, lässt sich damit insgesamt sagen, dass die Terrassenlängenverteilung näherungsweise durch eine Gammaverteilung beschrieben werden kann, die im Bereich von 0,8 bis 1,0 für  $\frac{\sigma}{\langle \Gamma \rangle}$  liegt. Für die Proben ohne ausgeprägte Ringstruktur scheint zudem eine mittlere Terrassenlänge von ungefähr 3 Einheitszellen, also etwa 12 Å, plausibel.

### 5.1.4 $G_0(S)$ -Kurve

Indem die integrierten Intensitäten von Spitze und Schulter berechnet werden, lässt sich mittels Gleichung 2.29 die  $G_0(S)$ -Kurve bestimmen. In Abbildung 5.7 sind die  $G_0$ -Werte für die verschiedenen Proben und Messrichtungen in Abhängigkeit von  $K_{\perp}$  dargestellt. Aufgrund der angenommenen Rotationssymmetrie lässt sich die integrierte Intensität bei einem 2D-Lorentz als Schulterfunktion gemäß der geometrischen Verteilung über Gleichung 2.53 berechnen, während sie sich bei der Anpassung mit der Gammaverteilung über Gleichung 2.57 erhalten lässt. Wie zu erwarten zeigt sich eine Oszillation mit hohen  $G_0$ -Werten in den In-Phasen und niedrigen  $G_0$ -Werten in den Out-Phasen. Deren Position bestätigt die zur Berechnung der Terrassenlängenverteilung gewählten Out-Phasen. Die Verläufe sind bei den verschiedenen Proben ähnlich, wobei anhand des Vergleichs von Probe A mit den anderen Substraten zu sehen ist, dass sich die Unterschiede in der Oszillation der Halbwertsbreite der Spitzenfunktion nicht signifikant auswirken. Aus den diagonalen Messungen ergeben sich generell etwas niedrigere Werte als aus den horizontalen Messungen, da die Halbwertsbreiten in diagonaler Richtung etwas größer sind. Bei der Gammaverteilung sind die  $G_0$ -Werte in den Out-Phasen, in denen die Ringstruktur zu sehen ist, größer als bei der geometrischen Anpassung. Vor allem bei Probe B mit der ausgeprägteren Ringstruktur ist ein deutlicher Unterschied zu sehen. Dieser ist erneut auf den unterschiedlichen Untergrund bei der Anpassung zurückzuführen, der die integrierten Intensitäten verändert.

Da die Kurven einen zu erwartenden Verlauf zeigen, wurde zudem eine Funktionsanpassung der  $G_0(S)$ -Kurven auf Basis der Gleichungen 2.33 und 2.65 angefertigt. Die Werte in den Maxima weichen jedoch vom theoretischen Wert von 1 aus Gleichung 2.33 ab, was nicht allein mit der Dämpfungsfunktion durch Positionsabweichungen aus Gleichung 2.65 dargestellt werden konnte. Deshalb musste ein zusätzlicher Vorfaktor c eingefügt werden, sodass sich

$$G_0(K_\perp) = c \cdot \mathrm{e}^{-\sigma_z^2 K_\perp^2} \cdot \mathrm{e}^{-2 \cdot \left(\frac{\Delta}{d}\right)^2 (1 - \cos(K_\perp d))}$$
(5.1)

als Anpassungsfunktion ergibt. Obwohl die Anpassungsfunktion mehrfache Näherungen ausnutzt, lässt sich so eine gute Übereinstimmung mit den Messwerten erreichen. Die erhaltenen Fitfunktionen sind ebenfalls in Abbildung 5.7 eingezeichnet, während ihre Parameter in Tabelle 5.2 aufgeführt sind. Als Fehler wurden die 95%-Konfidenzintervalle der Funktionsanpassung verwendet.

Die erhaltenen Schichtabstände d stimmen innerhalb der Messungenauigkeit überein. Lediglich bei der Kurve aus der Anpassung mit der Gammaverteilung bei Probe B ist der Wert etwas größer. Hier ist jedoch auch die Amplitude der Oszillation der  $G_0(S)$ -Kurve geringer, sodass die durch den Schichtabstand beeinflusste Periode schwieriger zu bestimmen ist. Die Werte liegen alle leicht über dem Literaturwert der Gitterkonstanten a = 3,905 Å von Strontiumtitanat. Da der Kristall jedoch in [001]-Richtung aus alternierenden SrO- und TiO<sub>2</sub>-Lagen mit jeweils einer Lage pro Einheitszelle besteht, passt der Schichtabstand eher zu dem Abstand zwischen gleich aufgebauten Lagen. Demnach handelt es sich bei den Stufen in Bezug auf die Lagen



**Abbildung 5.7:**  $G_0$ -Werte des (00)-Reflexes der Substrate in Abhängigkeit von der vertikalen Komponente  $K_{\perp}$  des Streuvektors (a) aus den horizontalen Messungen für die vier Proben, (b) im Vergleich zwischen horizontalen und diagonalen Messungen für die Proben A und D und (c) im Vergleich zwischen den Funktionsanpassungen für die geometrische Verteilung und für die Gammaverteilung bei den entsprechenden Proben. In (a) und (b) wurden die Anpassungen mit der geometrischen Verteilung verwendet. Die zugehörigen auf Gleichung 5.1 basierenden Fitfunktionen sind in durchgezogenen Linien der entsprechenden Farbe eingezeichnet.

um Doppelstufen, die in einer einheitlichen Terminierung der Oberfläche mit einer der beiden Lagen resultieren müssten. Nach Gleichung 2.27 hängt das Auftreten von Oszillationen in der  $G_0(S)$ -Kurve davon ab, wie häufig die zugehörigen vertikalen Abstände in der Oberfläche auftreten. Wenn es auch eine signifikante Anzahl an Einzelstufen mit Wechsel zwischen den unterschiedlichen Lagen gäbe, würde auch der einfache Abstand häufiger auftreten. Dies müsste sich durch die Überlagerung einer Oszillation mit doppelter Periode, oder anders ausgedrückt in einer Variati-

Verteilung	Richtung	Probe	d in Å	$\frac{\Delta}{d}$	$\sigma_z$ in Å	с
	diagonal	А	$3{,}97 \pm 0{,}01$	$0{,}62\pm0{,}03$	$0{,}04\pm0{,}01$	$0{,}30\pm0{,}05$
geometrisch		В	$3{,}96\pm0{,}01$	$0{,}54\pm0{,}04$	$0{,}00\pm0{,}00$	$0{,}14\pm0{,}01$
		D	$3{,}98 \pm 0{,}01$	$0{,}48\pm0{,}04$	$0{,}06\pm0{,}01$	$0{,}33\pm0{,}07$
	horizontal	А	$3{,}97 \pm 0{,}01$	$0,\!65\pm0,\!03$	$0{,}06\pm0{,}01$	$0{,}48 \pm 0{,}07$
		В	$3{,}96\pm0{,}01$	$0{,}44\pm0{,}03$	$0{,}06\pm0{,}01$	$0{,}51\pm0{,}07$
		С	$3{,}96\pm0{,}01$	$0{,}57\pm0{,}05$	$0{,}11\pm0{,}00$	$1{,}00\pm0{,}00$
		D	$3{,}96\pm0{,}01$	$0{,}57\pm0{,}03$	$0{,}06\pm0{,}01$	$0{,}55\pm0{,}08$
Gamma	horizontal	А	$3{,}97 \pm 0{,}01$	$0,\!63\pm0,\!03$	$0,\!06\pm0,\!01$	$0,\!47\pm0,\!07$
		В	$4{,}00\pm0{,}02$	$0{,}29\pm0{,}03$	$0,\!04\pm0,\!01$	$0{,}40\pm0{,}05$

5.1 SPA-LEED-Messungen an den  $SrTiO_3(001)$ -Substraten

**Tabelle 5.2:** Vergleich der erhaltenen Parameter aus der Anpassung der  $G_0(S)$ -Kurven des (00)-Reflexes der Substrate.

on der Amplitude der vorhandenen Oszillation, bemerkbar machen. Dies ist nicht zu erkennen, auch wenn es aufgrund des kleinen Ausschnitts schwierig auszumachen ist. Auf jeden Fall sollte aber ein großer Anteil an Doppelstufen existieren, da diese Periodizität stark hervortritt. Der doppelte Schichtabstand ist nicht ungewöhnlich für  $SrTiO_3(001)$ , das durch chemische Behandlung zu einer Terminierung mit TiO<sub>2</sub> gebracht werden kann [68]. Außerdem scheint die Oberfläche zu einem etwas größeren Lagenabstand zu relaxieren, da der Schichtabstand etwas größer als die Gitterkonstante ist.

Die Werte für  $\frac{\Delta}{d}$  liegen größtenteils im Bereich von 0,4 bis 0,7, was einer Rauheit  $\Delta$  von ungefähr 2Å entspricht. In diesem Bereich führen kleinere Rauheiten zu einer kleineren Amplitude der Oszillation. Daher ergeben sich in diagonaler Richtung größtenteils etwas kleinere Rauheiten. Ebenso führt die Anpassung mit der Gammaverteilung bei Probe B zu einer kleineren Oszillationsamplitude, sodass die erhaltene Rauheit kleiner ist. Aufgrund der geringen Rauheit kann davon ausgegangen werden, dass die Oberfläche aus wenigen Lagen besteht, weil ein Zweischichtsystem mit gleicher Schichtbesetzung beispielsweise bereits zu  $\frac{\Delta}{d} = 0,5$  führt. Zudem sollten die ermittelten Rauheiten wegen der in Kapitel 2.2.3 beschriebenen Eigenheiten der Näherung generell etwas zu groß ausfallen. Die Rauheit passt ebenso wie der leicht erhöhte Lagenabstand und die in Kapitel 5.1.3 ermittelte durchschnittliche Terrassenlänge zu vorherigen Messungen an SrTiO<sub>3</sub>(001), bei denen mittels Stromfluss durch einen Probenhalter aus Silizium bei 600 °C gereinigt wurde [62].

Die ermittelte Standardabweichung  $\sigma_z$  der vertikalen Positionsabweichungen der Schichten liegt größtenteils im Bereich von 0,04 Å bis 0,06 Å. Bei der diagonalen Messung der Probe B steigt die  $G_0(S)$ -Kurve leicht an, sodass keine sinnvolle Anpassung einer Dämpfung durch Positionsabweichungen möglich ist. Außerdem zeigt die horizontale Messung der Probe C eine nicht zu erklärende starke Dämpfung bei hohen  $K_{\perp}$ , die auch nicht durch die Dämpfung mit der Gaußfunktion beschrieben werden kann, sodass die Anpassung hier ebenfalls fehlerhaft ist. Die anderen

Werte der Standardabweichungen liegen ungefähr im Bereich der Abweichung des Schichtabstandes von der Gitterkonstanten, sodass die Positionsabweichungen möglicherweise damit zusammenhängen könnten.

Der zusätzliche Vorfaktor c liegt mit Ausnahme der nicht sinnvoll anpassbaren Kurven im Bereich von 0,3 bis 0,5. Dies bedeutet, dass in der In-Phase weiterhin eine Schulter mit einer signifikanten Intensität im Vergleich zur Out-Phase zu sehen ist, obwohl eine durch Stufen entstehende Schulter in der In-Phase verschwinden sollte. Auch wenn die Werte aufgrund des unbekannten Untergrunds fehlerhaft sein können, ist in Abbildung 5.2(a) deutlich zu erkennen, dass die zweite Funktion in der In-Phase für eine akzeptable Anpassung notwendig ist. Da die Form der allgemeinen Verbreiterung vom Profil eines 2D-Lorentz abweichen könnte, besteht die Möglichkeit, dass es sich dabei um eine Spitze handelt, die nur durch zwei Fitfunktionen darstellbar ist. Ein weiteres Problem ist allerdings, dass die Halbwertsbreite der Schulter eine sinusförmige Oszillation zeigt, wie nach Gleichung 2.47 für unendlich viele Schichten zu erwarten ist, obwohl es aufgrund der geringen Rauheit nur sehr wenige Schichten geben kann. Zur Erklärung der Schulter ist daher vermutlich eine weitere Komponente notwendig. Eine mögliche Erklärung sind Inhomogenitäten, die zu Schultern im Reflexprofil führen können, die auch in der In-Phase existieren. Dadurch kann sich die  $G_0(S)$ -Kurve insgesamt verringern, weshalb in Kapitel 5.1.5 eine Untersuchung zu den Inhomogenitäten erfolgt.

Insgesamt ist zu sagen, dass die quantitative Auswertung auch hier wie bei der Terrassenlängenverteilung sehr vorsichtig zu betrachten ist. Einerseits sind die  $G_0(S)$ -Kurven an sich durch die Ungenauigkeiten bei der Funktionsanpassung bereits fehlerhaft, andererseits kann aufgrund der Eigenheiten der LEED-Messung auch nur ein Ausschnitt aus dem Verlauf in Abhängigkeit von  $K_{\perp}$  betrachtet werden. Dadurch sind die Parameter, die mit den absoluten Werten zusammenhängen, wie die Dämpfung und die Rauheit fehleranfällig. Der qualitative Verlauf der  $G_0(S)$ -Kurve und der Halbwertsbreite sollte aber korrekt dargestellt sein, sodass die Bestimmung des Schichtabstandes gut möglich ist. Auch bei ringartigen Schultern hat sich gezeigt, dass für unterschiedliche Anpassungen quantitativ unterschiedliche Ergebnisse, aber auch qualitativ ähnliche Verläufe entstehen können.

### 5.1.5 Inhomogenitäten

Zur Untersuchung der Inhomogenitäten wird für die horizontale Messung der Probe A gemäß Kapitel 2.2.9 ein Modell mit zwei existierenden Streuamplituden  $f_A$  und  $f_B$  mit den Bedeckungen  $\Theta_A$  und  $\Theta_B$  angewendet. Das Schulterprofil wird dabei aus einem Stufenanteil  $\Phi_{\text{Stufe}}(\vec{K}_{\parallel}, S)$  und einem Inhomogenitätsanteil  $\Phi_{\text{Inh}}(\vec{K}_{\parallel})$  gebildet. Da der Verlauf der Halbwertsbreite des Stufenanteils in Abhängigkeit von  $K_{\perp}$  in diesem Fall nicht bekannt ist, wird aufgrund der geringen Rauheit eine konstante Halbwertsbreite des Inhomogenitätsanteils ebenfalls konstant ist, wurde für die Funktionsanpassung ein Modell aus zwei zentralen Schulterfunktionen mit fester Halbwertsbreite gewählt, wobei wie zuvor 2D-Lorentzfunktionen verwendet wurden. Eine beispielhafte Funktionsanpassung ist in Abbildung 5.8(a) gezeigt. Damit die Variation des Schulterprofils in Abhängigkeit von  $K_{\perp}$  vernünftig dargestellt werden kann, wurden die Halbwertsbreiten dabei so festgehalten, dass sie jeweils die Minima bzw. Maxima der Halbwertsbreite aus der Anpassung mit nur einer Schulterfunktion durchlaufen. Die weiteren Werte wurden durch die Verbindung mit linearen Funktionen festgelegt, wie in Abbildung 5.8(b) gezeigt ist. Weil die Minima und Maxima



**Abbildung 5.8:** Funktionsanpassung des Intensitätsprofils des (00)-Reflexes des Substrats der Probe A in horizontaler Richtung mit zwei zentralen Schulterfunktionen. (a) Angepasstes Profil bei der Energie E = 94 eV. (b) Vergleich der festgehaltenen Halbwertsbreiten bei dieser Anpassung zu der freien Halbwertsbreite aus der Anpassung mit einer Schulterfunktion in Abhängigkeit von der vertikalen Komponente  $K_{\perp}$  des Streuvektors.

jeweils eine leicht abfallende Tendenz aufweisen, ergeben sich insgesamt auch leicht abfallende Halbwertsbreiten. Diese Funktionsanpassung führt ebenfalls zu Profilen, die gut mit den Messwerten übereinstimmen.

Aus den ermittelten Fitfunktionen lassen sich die in Kapitel 2.2.9 eingeführten G(S)-Kurven berechnen. Diese sind in Abbildung 5.9 dargestellt, wobei  $G_{\text{Spitze}}(S)$  mit der  $G_0(S)$ -Kurve aus der Anpassung mit einer Schulterfunktion verglichen wird. Diese Kurve ändert sich durch die unterschiedliche Anpassung kaum, weil die Anpassungen gut mit den Messwerten übereinstimmen und die Fitfunktionen für die Spitze zudem jeweils die gleichen Anteile des Profils ausfüllen. Die Kurve der schmalen Schulter oszilliert gleichphasig mit der Spitze, während sich die breite Schulter gegenphasig verhält.

Damit passen die Verläufe zu dem in Gleichung 2.70 vorgegebenen Verhalten, wenn die schmale Schulter den Inhomogenitäten und die breite Schulter den Stufen zugeordnet wird. Dabei geben die G(S)-Kurven der Spitze und der schmalen Inhomogenitätsschulter die  $G_0(S)$ -Kurve wieder, werden jedoch um den Faktor der Bedeckung  $\Theta_A$  bzw.  $\Theta_B$  reduziert. Die restliche Intensität befindet sich in der breiten Stufenschulter, sodass diese den Verlauf von  $1 - G_0(S)$  annimmt. Im Vergleich mit der



**Abbildung 5.9:** *G*-Werte aus der Anpassung des (00)-Reflexes der Probe A in horizontaler Richtung in Abhängigkeit von der vertikalen Komponente  $K_{\perp}$  des Streuvektors. (a) Vergleich der  $G_{\text{Spitze}}$ -Werte aus der Anpassung mit einer Schulterfunktion zu den Werten aus der Anpassung mit zwei zentralen Schulterfunktionen mit festgehaltenen Halbwertsbreiten. (b) *G*-Werte der beiden Schultern aus der Anpassung mit den zwei zentralen Schulterfunktionen.

einfachen Anpassung lässt sich feststellen, dass die beobachtete Reduzierung der  $G_0(S)$ -Kurve um den Faktor c hier dadurch zustande kommt, dass sie wegen der Inhomogenitäten nur den Anteil  $\Theta_{\rm A}$  abbildet, während der andere Anteil  $\Theta_{\rm B} = 1 - \Theta_{\rm A}$  von der Inhomogenitätsschulter abgebildet wird. Da  $\Theta_{\rm A}$  somit dem Faktor c entspricht und in etwa bei 0,5 liegt, haben die Streuamplituden  $f_{\rm A}$  und  $f_{\rm B}$  ähnlich große Anteile.

Aus der Analyse des Schichtabstandes d hat sich ergeben, dass die Oberfläche wegen der überwiegend vorkommenden Periodizität größtenteils von einer der beiden alternierenden Lagen des Strontiumtitanats terminiert wird. Eine naheliegende Erklärung wäre, dass es sich bei den Inhomogenitäten um Flächen mit der anderen Terminierung handelt, da diese eine andere Streuamplitude der entsprechenden Einheitszellen zur Folge hat. Dies würde allerdings dazu führen, dass sich die Schichtverteilung ändert, da sich die Inhomogenitäten dann auf den anderen ansonsten nicht besetzten Lagen befinden würden. Bei Streuamplituden der gleichen Größenordnung müssten demnach beide Lagen für die  $G_0(S)$ -Kurve berücksichtigt werden und die dem Lagenabstand entsprechende Periodizität wäre aufgrund der ähnlichen Bedeckungen  $\Theta_A$  und  $\Theta_B$  stärker in der  $G_0(S)$ -Kurve sichtbar [69]. Wie bereits in der Analyse zum Schichtabstand beschrieben wurde, ist die Kurve aber nicht mit einem häufigen Auftreten des einzelnen Lagenabstands vereinbar. Zudem wäre in diesem Fall auch eine Korrelation zwischen Inhomogenitäten und Stufen gegeben, die in der Herleitung für die Beschreibung der G(S)-Kurven mit Gleichung 2.70 ausgenommen wurde. Wenn sich allerdings die Streuamplituden  $f_{\rm A}$  und  $f_{\rm B}$  stark unterscheiden, wie es ebenfalls Voraussetzung für Gleichung 2.70 ist, können die Lagen mit der kleineren Streuamplitude vernachlässigt werden und sie tragen effektiv nicht zum Verlauf der  $G_0(S)$ -Kurven bei [31, 70]. Wenn diese Lagen vernachlässigt werden, gibt es auch keine Änderung der Schichtverteilung und keine Korrelation zwischen Stufen und Inhomogenitäten. Da die Streuamplituden allerdings nicht einfach zu ermitteln sind, ist nicht bekannt, ob diese Interpretation möglich ist. Andernfalls könnten die Inhomogenitäten aus anderen korrelierten Unreinheiten wie z. B. Sauerstoffvakanzen entstehen, die eine Änderung der Streuamplituden ohne Änderung der Schichtverteilung herbeiführen. In diesem Fall sollte die Oberfläche aufgrund des ermittelten Schichtabstands eine einheitliche Terminierung aufweisen.

Weiterhin behandelt Gleichung 2.70 den Fall einer im Vergleich zur Inhomogenitätsschulter deutlich breiteren Stufenschulter. Dies ist angesichts der ungefähr doppelten Breite nicht gegeben, sodass der bei ähnlichen Schulterbreiten eigentlich zu beachtende Faltungsterm der beiden Schultern möglicherweise nicht vernachlässigt werden kann. Aus welchen Teilen sich das tatsächliche Schulterprofil zusammensetzt, ist jedoch nicht genau zu bestimmen, da sich bereits mit einer einzelnen Schulterfunktion eine gute Anpassung erreichen lässt.

Insgesamt stellt sich damit die Beurteilung des Auftretens von Inhomogenitäten bei den Substraten und ihrer eventuellen Ursache als schwierig heraus. Mit den Inhomogenitäten können jedoch die variierende Halbwertsbreite der Schulter trotz der wenigen Schichten und die geringen Werte der  $G_0(S)$ -Kurve erklärt werden, weshalb ihr Vorhandensein wahrscheinlich ist.

## 5.2 XRR-Ergebnisse

Zur Auswertung der auf die Substrate aufgedampften Magnetitschichten werden zunächst die XRR-Ergebnisse betrachtet, damit sich bei der Auswertung der SPA-LEED-Messungen nach den einzelnen Aufdampfschritten an den Schichtdicken orientiert werden kann. Die gemäß Kapitel 4.4 mittels XRR gemessene Intensität kann über Gleichung 2.71 in Abhängigkeit vom Streuvektor q dargestellt werden. Abbildung 5.10 zeigt das Ergebnis für die vier bei unterschiedlichen Aufdampftemperaturen hergestellten Proben. Alle Proben zeigen den erwarteten Verlauf der Reflektivität mit *Footprint* und *Kiessig-Fringes*. Neben einer Oszillation mit kleiner Periode ist eine weitere überlagernde Oszillation mit einer größeren Periode zu erkennen.

Zur Auswertung wurden die Messungen mithilfe des Programms "Reflex" [50] entsprechend der Theorie in Kapitel 2.3 angepasst. Als Modell wurde eine Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>-Schicht auf einem SrTiO<sub>3</sub>-Substrat mit entsprechenden Literaturwerten [71] für die materialspezifischen Werte der Absorption  $\beta$  und der Dispersion  $\delta$  verwendet, wobei für  $\delta$ eine Abweichung von 10 % zugelassen wurde. Die Oszillation mit der großen Periode lässt sich nur durch ein Modell erreichen, das eine zusätzliche Schicht auf dem Magnetit annimmt. Deren materialspezifische Werte wurden ebenso wie die Rauheiten und Schichtdicken variabel gelassen, sodass sich die ebenfalls in Abbildung 5.10 gezeigten Fitfunktionen ergeben. Die angegebenen erhaltenen Schichtdicken d



**Abbildung 5.10:** Ergebnisse der XRR-Messungen an den mit unterschiedlichen Aufdampftemperaturen hergestellten Proben mit den entsprechenden Fitfunktionen (schwarz) und den berechneten Gesamtschichtdicken d.

beziehen sich auf die Summe beider angenommener Schichten, wovon jeweils 3,0 nm bis 3,5 nm auf die zusätzliche Schicht entfallen.

Da zum Zeitpunkt der XRR-Messungen seit der Herstellung der Proben bereits ungefähr ein halbes Jahr vergangen war, könnte es sich bei der Zusatzschicht um eine Umstrukturierung der Oberfläche durch den Kontakt mit Luft handeln. Während die für die Zusatzschicht erhaltenen Werte für  $\beta$  stark variieren, liegen die Werte für  $\delta$  im Bereich von  $3.5 \times 10^{-6}$  bis  $4.1 \times 10^{-6}$  und weichen somit nur um höchstens 16 % vom Literaturwert  $\delta = 3.524 \times 10^{-6}$  für FeO ab [71]. Die Anlagerung einer Schicht von insgesamt 3 nm Dicke scheint dagegen nicht wahrscheinlich. Daher lässt sich vermuten, dass sich die Gesamtschichtdicke durch das Auftreten der Zusatzschicht nicht signifikant verändert hat.

Es ergeben sich Schichtdicken im Bereich von 23,0 nm bis 24,3 nm. Aus diesen lassen sich Aufdampfraten im Bereich von 0,076  $\frac{\text{\AA}}{\text{s}}$  bis 0,081  $\frac{\text{\AA}}{\text{s}}$  ermitteln, mit denen jeweils die Schichtdicken nach den einzelnen Schritten des Aufdampfprozesses bestimmt werden können. Dabei kann der Fehler durch Schwankungen der Aufdampfrate als klein angesehen werden, weil der Flux nahezu konstant gehalten wurde und sich die Gesamtdicken der einzelnen Proben nur um 1,3 nm unterscheiden. Auch der Fehler der Funktionsanpassung ist klein, da die kleine Periode der Fitfunktionen gut mit der zugehörigen Periode in den Messungen übereinstimmt. Nur durch die Zusatzschicht könnte ein für alle Proben ähnlicher systematischer Fehler entstehen, wenn sich die Dicke im Vergleich zur Situation nach dem Aufdampfen erhöht hat. Insgesamt ist festzuhalten, dass sich die Aufdampfschritte bei den verschiedenen Proben aufgrund

der ähnlichen Aufdampfraten für Vergleiche bei ähnlicher Schichtdicke verwenden lassen.

Während die Schichtdicke aufgrund der klar erkennbaren Periodizität recht gut bestimmbar ist, können die Rauheitsparameter während der Funktionsanpassung und und im Ergebnis stark variieren, da sie sich gegenseitig beeinflussen und auch von den anderen Parametern abhängen. Weil außerdem der Zusammenhang der Rauheiten nach dem Auftreten der Zusatzschicht mit den Rauheiten der Proben nach der Herstellung unklar ist, sind die Werte der Rauheitsparameter nicht für eine belastbare Auswertung geeignet.

# 5.3 SPA-LEED-Messungen an den Magnetitschichten

Zur Untersuchung der Magnetitschichten werden die SPA-LEED-Messungen nach den einzelnen Aufdampfschritten ausgewertet. Die Proben unterscheiden sich durch die Aufdampftemperaturen von 150 °C, 200 °C, 250 °C bzw. 350 °C, während die SPA-LEED-Messungen nach den größtenteils gleichen Schritten vorgenommen wurden. Dabei wurde bis zur Gesamtdauer von 30 min in Schritten von 5 min sowie nach 40 min und 50 min gemessen. Bei der 250 °C-Probe wurde in den ersten 10 Minuten in Schritten von 2 min vorgegangen. Zur Beschreibung der Aufdampfschritte werden die jeweiligen Schichtdicken mit den in Kapitel 5.2 ermittelten Aufdampfraten berechnet. Bei der Auswertung wird zunächst auf die Beugungsbilder eingegangen, woraufhin die einzelnen Reflexprofile in Abhängigkeit von Energie, Schichtdicke und Aufdampftemperatur betrachtet werden. Dabei wird erst die integrierte Intensität und dann die Halbwertsbreite ausgewertet.

### 5.3.1 Beugungsbilder

Anhand der Beugungsbilder lässt sich die Entwicklung der Oberflächenstruktur bei den verschiedenen Schichtdicken und Aufdampftemperaturen nachvollziehen. Abbildung 5.11 zeigt die SPA-LEED-Bilder der 250 °C-Probe für verschiedene Aufdampfschritte. Da die Intensitäten der einzelnen Reflexe je nach Elektronenenergie variieren, wurde dabei aus den bei verschiedenen Energien aufgenommenen Bildern jeweils dasjenige gewählt, bei dem die auftretenden Phänomene am besten zu sehen sind. Grundsätzlich zeigen sich im Vergleich zu den Substratreflexen breitere Reflexe. Auf der linken Seite der Bilder sind jeweils Flächen mit stark abweichender Intensität zu erkennen. Dabei handelt es sich um Bereiche, in denen der Elektronenstrahl von den Oktopolplatten abgeschirmt wird. Des Weiteren ist auch hier die Verzerrung des SPA-LEED-Bildes gut zu sehen.

Bei der geringsten Schichtdicke d = 0.92 nm ist eine ringförmige Struktur im Beugungsbild zu erkennen. Diese ist vermutlich auf eine (111)-orientierte Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>-Schicht zurückzuführen, die bereits bei zumeist höheren Aufdampftemperaturen beobachtet worden ist [62, 72–75]. Deren hexagonale Struktur kann sich in zwei um 30° rotierten Domänen mit einer Gitterfehlanpassung von etwa 1,4 % an das Substrat-



**Abbildung 5.11:** 2D-SPA-LEED-Bilder der bei 250 °C aufgedampften Magnetitschichten für verschiedene Schichtdicken bei Energien von (a)-(b)  $E = 100 \,\text{eV}$ , (c)-(d)  $E = 120 \,\text{eV}$  und (e)-(f)  $E = 80 \,\text{eV}$ . In (a) ist die Einheitszelle einer Rotationsdomäne der Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>(111)-Schicht dargestellt und in (f) sind die Einheitszellen der (1 × 1)-Struktur und der ( $\sqrt{2} \times \sqrt{2}$ ) R45°-Überstruktur der Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>(001)-Oberfläche eingezeichnet. Auf der linken Seite sind jeweils Abschirmeffekte aufgrund der Oktopolplatten zu sehen.

gitter anfügen. Durch Überlagerung der Domänen ergibt sich aus der in Abbildung 5.11(a) eingezeichneten Einheitszelle eine zwölfzählige Symmetrie im Beugungsbild, die vermutlich aufgrund von breiten Reflexen als Ring sichtbar wird.

Nach dem nächsten Aufdampfschritt bei d = 1,84 nm ist die ringartige Form in eine eher quadratische Form übergegangen. Es zeigen sich Reflexe in der Nähe der Positionen der {11}-Reflexe der SrTiO<sub>3</sub>(001)-(1 × 1)-Struktur. Diese entsprechen den {20}-Reflexen der Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>(001)-(1 × 1)-Struktur, die in Abbildung 5.11(f) eingezeichnet ist. Sie könnten auch auf eine Oberfläche mit einer FeO(001)-Struktur hindeuten, da deren Gitterkonstante etwa halb so groß wie die von Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>(001) ist [15]. Diese wurde bereits beim Wachstum anderer mittels reaktiver Molekularstrahlepitaxie hergestellter Magnetitschichten auf MgO und SrTiO<sub>3</sub> beobachtet [1, 2, 17, 76]. Weiterhin sind allerdings leichte Streifen zwischen dem (00)- und den {20}-Reflexen erkennbar, die wahrscheinlich aus den {10}-Reflexen resultieren, welche nicht auf der FeO(001)-Struktur basieren können. Daher besteht die Oberfläche hier vermutlich aus Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>(001), wobei auch eine Mischung aus beiden Strukturen potenziell möglich wäre. Bei 2,76 nm lassen sich die {10}-Reflexe bereits deutlich erahnen und sind bei 4,6 nm eindeutig zu erkennen. Bei der Schichtdicke d = 11,5 nm sind auch Reflexe der ebenfalls in Abbildung 5.11(f) eingezeichneten  $(\sqrt{2} \times \sqrt{2})$  R45°-Überstruktur von Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>(001) zu beobachten, während bei der finalen Schichtdicke d = 23,0 nm alle Reflexe der  $(\sqrt{2} \times \sqrt{2})$  R45°-Überstruktur bei passender Wahl der Energie deutlich sichtbar sind.

In Kapitel 5.2 hat sich gezeigt, dass sich die Aufdampfschritte für einen Vergleich der Proben mit den verschiedenen Aufdampftemperaturen bei annähernd gleicher Schichtdicke verwenden lassen. In Abbildung 5.12 werden die Bilder nach dem letzten Aufdampfschritt bei einer Energie von 100 eV verglichen. Bei allen Proben zeigt



**Abbildung 5.12:** 2D-SPA-LEED-Bilder der aufgedampften Magnetitschichten bei der jeweils größten Schichtdicke für die verschiedenen Aufdampftemperaturen bei  $E = 100 \,\text{eV}$ . Die  $\{\frac{1}{2}\frac{1}{2}\}$ - und  $\{11\}$ -Reflexe sind bei dieser Energie nicht sichtbar. In (d) sind die durchgeführten *Linescans* eingezeichnet. Auf der linken Seite sind jeweils Abschirmeffekte aufgrund der Oktopolplatten zu sehen.

sich die Struktur der Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>(001)-Oberfläche. Die Reflexe werden dabei mit zunehmender Aufdampftemperatur schmaler und intensiver. Außerdem steigt die Schichtdicke, bei der die Überstruktur sichtbar wird, von etwa 8 nm bei 350 °C zu ungefähr 11,5 nm bei 250 °C und etwa 14 nm bei 200 °C, während sie bei 150 °C bei der finalen Schichtdicke von 24,3 nm gerade eben zu erkennen ist. Da die Überstruktur für die Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>(001)-Oberfläche charakteristisch gegenüber anderen Eisenoxiden ist und die XRR-Messungen auch zu einer Magnetitschicht passen, kann davon ausgegangen werden, dass bei allen Proben Magnetit mit einer (001)-Oberfläche hergestellt wurde [15].

### 5.3.2 Profilanalyse

Zur Profilanalyse wurden nach jedem Aufdampfschritt *Linescans* im Energiebereich von 80 bis 140 eV mit Schritten von 2 eV durchgeführt. Wie beim Substrat wurde in horizontaler und diagonaler Richtung gemessen. Dabei wurden die in Abbildung 5.12(d) gezeigten Bildausschnitte gewählt, sodass sich zum einen der  $(0\bar{1})$ -, der (00)und der (01)-Reflex und zum anderen der  $(\frac{\bar{1}}{2}\frac{\bar{1}}{2})$ -, der (00)- und der  $(\frac{1}{2}\frac{1}{2})$ -Reflex der Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>(001)-Oberfläche untersuchen lassen. Bei der zuerst hergestellten 250 °C-Probe wurde in diagonaler Richtung nur nach dem letzten Aufdampfschritt gemessen, da mit dieser Messrichtung wie beim Substrat erst später begonnen wurde. Die *Linescans* wurden anschließend mit der Kalibrierung aus Kapitel 5.1.1 anhand der Substratreflexe entzerrt, weshalb die parallele Komponente  $K_{\parallel}$  des Streuvektors bei allen Messungen mit Bezug auf die Brillouinzone des Substrats angegeben wird.

Die Messungen können durch Funktionsanpassung ausgewertet werden, wobei in den meisten Fällen jeweils eine zweidimensionale Lorentzfunktion pro Reflex für ein gutes Ergebnis ausreicht. In diagonaler Richtung werden die Intensitäten teilweise von den außerhalb des Bildausschnitts positionierten Reflexen ( $0\overline{2}$ ) und (02) beeinflusst. Daher wurden bei der Funktionsanpassung auch Funktionen für diese Reflexe hinzugefügt, wobei sie zur besseren Durchführbarkeit der Anpassung jeweils mit dem ( $0\overline{1}$ )- bzw. (01)-Reflex auf die gleiche Halbwertsbreite gekoppelt und an ihrer nach der Gitterkonstante von Magnetit erwarteten Position festgehalten wurden. Ein auf diese Weise angepasster *Linescan* ist in Abbildung 5.13 beispielhaft gezeigt.



**Abbildung 5.13:** Beispiel für die Funktionsanpassung eines *Linescans* der 350 °C-Probe in diagonaler Richtung bei der Schichtdicke d = 9,4 nm und der Energie E = 104 eV.

Zur Auswertung der *Linescans* werden die ermittelten Parameter aus der Funktionsanpassung verwendet. Dabei wird so vorgegangen, wie bereits beim Substrat in Kapitel 5.1.2 beschrieben wurde. Die Ungenauigkeit der Parameter aus der Anpassung wurde anhand einiger Messungen abgeschätzt. Darüber hinaus können sich trotz der Berücksichtigung der außerhalb des Bildausschnitts liegenden Reflexe durch die Überlagerung von Reflexen sowie durch den unbekannten Untergrund weitere Fehler ergeben. Die Parameter können in Abhängigkeit von Elektronenenergie, Schichtdicke und Aufdampftemperatur untersucht werden, wobei die Energie mit Gleichung 2.10 in die vertikale Komponente  $K_{\perp}$  des Streuvektors umgerechnet werden kann.

Eine genaue Auswertung der einzelnen Reflexpositionen kann allerdings nicht erfolgen, da sie aufgrund der, in Kapitel 5.1.1 beschriebenen, nicht vollständig korrekt durchführbaren Entzerrung nicht exakt genug ermittelt werden können. Es lässt sich lediglich sagen, dass die Abstände der Magnetitreflexe  $\{\frac{1}{2}\frac{1}{2}\}$  und  $\{10\}$  zum (00)-Reflex im Vergleich zu den zum Substratgitter passenden Abständen von 50 %BZ bzw. 71 %BZ im Allgemeinen eher zu kleineren Werten verschoben sind, wie es aufgrund der Gitterfehlanpassung durch Relaxation zum Magnetitgitter zu erwarten ist.

#### 5.3.3 Integrierte Intensität

Anhand der in Kapitel 5.3.1 gezeigten Beugungsbilder und der in Kapitel 5.3.4 dargestellten Beobachtung, dass die Halbwertsbreiten der Reflexe in diagonaler und horizontaler Messrichtung ähnlich sind, können rotationssymmetrische Reflexe angenommen werden. Somit kann ihre integrierte Intensität über Gleichung 2.53 berechnet werden. Die energieabhängigen Verläufe der integrierten Intensitäten der einzelnen Reflexe lassen sich nur mit der dynamischen Streutheorie auswerten. Aus dem Vergleich der integrierten Intensität eines Reflexes zu anderen Reflexen und zum Untergrund sowie dem Vergleich zwischen verschiedenen Messungen lassen sich jedoch auch ohne diese Theorie Erkenntnisse gewinnen.

### Verhältnis zum Untergrund

Aus der integrierten Intensität  $\mathcal{I}_{\text{Reflex}}$  eines Reflexes und dem Untergrund lässt sich ein normiertes Intensitätsverhältnis über

$$\frac{\mathcal{I}_{\text{Reflex}}}{\mathcal{I}_{\text{Reflex}} + \mathcal{I}_{\text{Untergrund}}} = \frac{\int_{\text{BZ}} d^2 \vec{K_{\parallel}} I_{\text{Reflex}}(\vec{K_{\parallel}})}{\int_{\text{BZ}} d^2 \vec{K_{\parallel}} I_{\text{Reflex}}(\vec{K_{\parallel}}) + \int_{\text{BZ}} d^2 \vec{K_{\parallel}} I_{\text{Untergrund}}(\vec{K_{\parallel}})}$$
(5.2)

berechnen. Da sich der bei der Funktionsanspassung verwendete lineare Untergrund als nahezu konstant ansehen lässt, wird das entsprechende Integral vereinfacht aus dem Wert für  $K_{\parallel} = 0 \%$ BZ über  $\mathcal{I}_{\text{Untergrund}} = I_{\text{Untergrund}} (K_{\parallel} = 0) \cdot (50 \%$ BZ)<sup>2</sup> berechnet, um den Untergrund im Bereich einer Überstruktureinheitszelle darzustellen.

Abbildung 5.14 zeigt dieses Verhältnis für den (00)-Reflex in Abhängigkeit von der vertikalen Komponente  $K_{\perp}$  des Streuvektors bei verschiedenen Aufdampfschritten aus der horizontalen Messung der 250 °C-Probe und aus der diagonalen Messung der 350 °C-Probe. Es zeigen sich grundsätzlich ähnliche Verläufe bei den verschiedenen Messungen. Zudem steigt das Verhältnis generell mit der Schichtdicke. Kleine Abweichungen im Bereich von  $K_{\perp} = 11 \text{ Å}^{-1}$  bei den horizontalen Messungen für geringe Schichtdicken sind vermutlich auf eine Überlagerung mit den Überstrukturreflexen  $(\frac{\overline{1}}{2})$  und  $(\frac{1}{2})$  zurückzuführen. In diesem Energiebereich sind die Intensitäten dieser



Abbildung 5.14: Normiertes Intensitätsverhältnis des (00)-Reflexes zum Untergrund in Abhängigkeit von der vertikalen Komponente  $K_{\perp}$  des Streuvektors bei verschiedenen Aufdampfschritten (a) aus der horizontalen Messung der 250 °C-Probe und (b) aus der diagonalen Messung der 350 °C-Probe.

Reflexe im Vergleich zum (00)-Reflex verhältnismäßig hoch. Da die Halbwertsbreiten bei den kleinen Schichtdicken größer sind, wie sich aus deren Auswertung in Kapitel 5.3.4 ergibt, können die Reflexe im Profil bei kleinen Schichtdicken nicht aufgelöst werden. Daher wurde hier nur eine Fitfunktion für den ganzen Bildausschnitt verwendet, die alle Reflexe einschließt und dementsprechend eine größere integrierte Intensität als der (00)-Reflex allein aufweist. Dieses Phänomen tritt auch bei den anderen Proben in horizontaler Richtung auf, während es in diagonaler Richtung mit größerer Entfernung zu den weiteren Reflexen kaum zu sehen ist. Der ähnliche Verlauf der Intensität in Abhängigkeit von der Energie deutet darauf hin, dass bei allen Schichtdicken die gleiche Struktur vorliegt. Auf eine aus den Beugungsbildern in Erwägung gezogene FeO(001)-Struktur bei niedrigen Schichtdicken gibt es hier somit keine Hinweise.

Nur nach dem im Vergleich zu den anderen Proben kleineren ersten Aufdampfschritt bei der 250 °C-Probe mit der anhand des Beugungsbildes vermuteten (111)-Struktur zeigt sich ein wesentlich unterschiedliches Profil des (00)-Reflexes. Dieses wurde im Bereich von 80 eV bis 120 eV untersucht und ist in Abbildung 5.15(a) dargestellt. Obwohl dies im Beugungsbild in Abbildung 5.11 nicht ersichtlich ist, weist das Profil einen sehr spitzen Peak auf, dessen Halbwertsbreite zwischen 0,6 %BZ und 0,9 %BZ und somit im Bereich der Halbwertsbreite der Spitze des Substratprofils liegt. Des Weiteren wurde im Profil zur besseren Anpassung eine breitere Schulterfunktion verwendet. In Abbildung 5.15(b) ist das normierte Intensitätsverhältnis der Spitze zum Untergrund gezeigt, wobei zum Vergleich das Verhältnis von der Fitfunktion des (00)-Reflexes nach dem nächsten Aufdampfschritt sowie von der Spitze und der Schulter der Substratmessung zum jeweiligen Untergrund hinzugefügt wurden. Dort



Abbildung 5.15: (a) Intensitätsprofil des (00)-Reflexes aus der horizontalen Messung nach dem ersten Aufdampfschritt der 250 °C-Probe mit d = 0.92 nm bei der Energie E = 92 eV. (b) Normiertes Intensitätsverhältnis von der Spitze nach dem ersten Aufdampfschritt und von der Fitfunktion des (00)-Reflexes nach dem nächsten Aufdampfschritt sowie von der Spitze und der Schulter der Substratmessung zum jeweiligen Untergrund aus den horizontalen Messungen in Abhängigkeit von der vertikalen Komponente  $K_{\perp}$  des Streuvektors. Da sich die Werte in der Größenordnung unterscheiden, wurden die Kurven zusätzlich auf ihr Maximum normiert.

ist zu erkennen, dass sich die Verläufe bei keiner der Kurven ähneln. Dies deutet darauf hin, dass es sich um eine andere Struktur handelt, was sich mit der Vermutung aus der Betrachtung der Beugungsbilder deckt, dass nach dem ersten Schritt eine (111)-Schicht vorliegt. Da die Schulter sehr schwach ist und schwierig vom Untergrund unterschieden werden kann, weist sie eine hohe Ungenauigkeit auf. Deshalb ist keine sinnvolle Auswertung über eine  $G_0(S)$ -Kurve möglich. Der Verlauf der Intensität der Spitze in Abhängigkeit von der Energie ist grundsätzlich mit dynamischen Effekten zu erklären. Da die Intensität jedoch bei den Energien 84 eV und 110 eV auf 0 abfällt, könnte es sich auch um Out-Phasen einer aus Stufen resultierenden Variation mit destruktiver Interferenz handeln. Aus deren Abstand in  $K_{\perp}$  lässt sich nach Gleichung 2.25 der Lagenabstand  $d = (4,6\pm0,7)$  Å berechnen, wobei die Ungenauigkeit der Out-Phasen von 2 eV aufgrund der Größe der Energieschritte berücksichtigt wurde. Dieser Wert stimmt mit dem Wert von 4,848 Å für  $Fe_3O_4(111)$  überein, der sich aus dem Literaturwert der Gitterkonstante ergibt. Dies könnte eine Bestätigung für das Vorhandensein dieser Schicht sein, auch wenn die Auswertung aufgrund der Vorgehensweise als unsicher anzusehen ist. Bei Untersuchungen des Wachstums von  $Fe_3O_4$  auf  $SrTiO_3(001)$  unter ähnlichen Bedingungen wurde das Auftreten dieser Zwischenschicht in einem ähnlichen Bereich der Schichtdicke beobachtet [73].

Die zur Spitze aus den Substratmessungen ähnliche Halbwertsbreite ist vermutlich durch die allgemeine Verbreiterung zu erklären. Dies könnte darauf hindeuten, dass die allgemeine Verbreiterung materialunabhängig ist und es sich somit nicht um eine Verbreiterung aufgrund von Domänen, die bei den Proben unterschiedlich sein

können, sondern um die instrumentelle Verbreiterung mit eventueller Beteiligung der thermischen Verbreiterung handelt. Die Materialunabhängigkeit der allgemeinen Verbreiterung lässt sich allerdings nicht hinreichend belegen, da sie nur bei zwei Materialien, dem Substrat und der vermutlichen  $Fe_3O_4(111)$ -Schicht, untersucht werden konnte.

Die anderen Aufdampfschritte lassen sich neben der Energieabhängigkeit noch weiter analysieren. Wie aus Abbildung 5.14 ersichtlich wird, ist der Verlauf des normierten Intensitätsverhältnisses von (00)-Reflex zu Untergrund in beiden Richtungen ähnlich. Ein Vergleich der Werte in Abhängigkeit von der Schichtdicke ist für verschiedene Energien in Abbildung 5.16(a) gezeigt. Auch hier zeigt sich der bereits



**Abbildung 5.16:** Normiertes Intensitätsverhältnis des (00)-Reflexes zum Untergrund in Abhängigkeit von der Schichtdicke (a) im Vergleich zwischen den Messrichtungen für die 350 °C-Probe bei Energien von 84 eV und 130 eV und (b) aus der horizontalen Messung für die verschiedenen Aufdampftemperaturen bei einer Energie von 130 eV.

beobachtete Anstieg des Verhältnisses mit der Schichtdicke, der bei großen Schichtdicken schwächer wird und sich einem Grenzwert anzunähern scheint. Außerdem sind die Werte in diagonaler Richtung generell etwas größer, wie es auch bei den Substratmessungen beobachtet wurde. Dies könnte möglicherweise erneut mit dem anderen Bildausschnitt zusammenhängen, wie bereits in Kapitel 5.1.2 erläutert wurde. Die Entwicklung mit der Schichtdicke tritt für alle Aufdampftemperaturen auf, wie in Abbildung 5.16(b) dargestellt ist.

In Abbildung 5.17 wird die Abhängigkeit des Verhältnisses von der Temperatur am Beispiel der horizontalen Messungen nach dem jeweils letzten Aufdampfschritt gezeigt, indem einerseits der Verlauf in Abhängigkeit von  $K_{\perp}$  für alle Proben und andererseits die Werte für einige Energien in Abhängigkeit von der Temperatur aufgetragen sind. Dabei ist zu beachten, dass die Temperaturmessung eine große Ungenauigkeit aufweist, wie in Kapitel 4.2 beschrieben wurde. Dadurch kann sich ein großer systematischer Fehler der Temperatur ergeben, der nicht eingezeichnet ist. Unter Berücksichtigung der Messungenauigkeit aus der Funktionsanpassung ist



**Abbildung 5.17:** Normiertes Intensitätsverhältnis des (00)-Reflexes zum Untergrund aus der horizontalen Messung nach dem jeweils letzten Aufdampfschritt (a) für die verschiedenen Aufdampftemperaturen in Abhängigkeit von der vertikalen Komponente  $K_{\perp}$  des Streuvektors und (b) bei 84 eV und 130 eV in Abhängigkeit von der Aufdampftemperatur.

keine Abhängigkeit von der Temperatur ersichtlich.

Das normierte Intensitätsverhältnis zum Untergrund lässt sich auch bei den anderen Reflexen analysieren. Aufgrund der Symmetrie reicht bei den  $\{01\}$ - und  $\{\frac{1}{2}\frac{1}{2}\}$ -Reflexen jeweils die Untersuchung eines Reflexes aus. Die Abhängigkeiten des Verhältnisses des (01)-Reflexes zum Untergrund von Energie, Schichtdicke und Temperatur sind in Abbildung 5.18 dargestellt. Dabei ist anzumerken, dass die anderen Reflexe aufgrund der generell geringeren Intensität schwieriger auszuwerten sind. Wegen der Überlagerung mit dem (02)-Reflex ergeben sich bei der Funktionsanpassung des (01)-Reflexes erst bei größeren Schichtdicken mit schmaleren Reflexen sinnvolle Ergebnisse, weshalb nur die geeigneten Messungen in den Darstellungen verwendet werden. Wie beim (00)-Reflex zeigen sich zueinander ähnliche Verläufe in Abhängigkeit von der Energie, wobei die Werte mit zunehmender Schichtdicke einen schwächer werdenden und sich einem Grenzwert annähernden Anstieg zeigen, während keine Abhängigkeit von der Temperatur erkennbar ist.

Beim Überstrukturreflex  $\left(\frac{1}{2}\frac{1}{2}\right)$  ist eine sinnvolle Funktionsanpassung nur bei einzelnen Energien und hohen Schichtdicken möglich. Die Abhängigkeit von Schichtdicke und Temperatur ist in Abbildung 5.19 gezeigt. Es lässt sich die gleiche Abhängigkeit von der Schichtdicke wie bei den anderen Reflexen erkennen. Außerdem deutet sich ein Anstieg mit der Temperatur an, der allerdings aufgrund der großen Fehler nicht als sicher angesehen werden kann. Der Anstieg liegt vermutlich am Anstieg des Verhältnisses der integrierten Intensität der Überstrukturreflexe zu der der anderen Reflexe, welches im weiteren Verlauf des Kapitels analysiert wird.

Insgesamt zeigt das Verhältnis der integrierten Intensität zum Untergrund bei allen Reflexen einen Anstieg mit der Schichtdicke, während es weitestgehend unabhängig



Abbildung 5.18: Normiertes Intensitätsverhältnis des (01)-Reflexes zum Untergrund. Für die 350 °C-Probe ist in (a) die Abhängigkeit von  $K_{\perp}$  bei verschiedenen Aufdampfschritten und in (b) die Abhängigkeit von der Schichtdicke d bei Energien von 90 eV und 120 eV dargestellt. Nach dem jeweils letzten Aufdampfschritt ist in (c) die Abhängigkeit von  $K_{\perp}$  für verschiedene Aufdampftemperaturen und in (d) die Abhängigkeit von der Aufdampftemperatur bei 90 eV und 120 eV dargestellt.

von der Aufdampftemperatur ist. Da das Phänomen für alle Reflexe auftritt, ist es auf den Untergrund zurückzuführen. Ein nicht durch technische Ursachen entstehender, sondern von der Probe ausgehender homogener Untergrund ist allgemein auf zufällige, nicht korrelierte Defekte zurückzuführen. Wie in der Theorie in den Kapiteln 2.2.8 und 2.2.9 beschrieben, fallen darunter Positionsabweichungen, auch durch thermische Anregungen, oder Veränderungen der Streuamplitude einzelner Einheitszellen, die z. B. durch Unreinheiten auftreten können. Eine Ermittlung der genauen Ursache für den Anstieg des Untergrunds ist allerdings nicht ohne Weiteres



**Abbildung 5.19:** Normiertes Intensitätsverhältnis des  $(\frac{1}{2}\frac{1}{2})$ -Reflexes zum Untergrund bei Energien von 82 eV und 140 eV (a) für die 350 °C-Probe in Abhängigkeit von der Schichtdicke d und (b) nach dem jeweils letzten Aufdampfschritt in Abhängigkeit von der Aufdampftemperatur.

möglich. Zumindest lässt sich grundsätzlich anhand der Messungen davon ausgehen, dass die zufälligen Defekte in der Oberflächenstruktur im gemessen Bereich der Aufdampftemperaturen mit zunehmender Schichtdicke weniger werden, während die Temperatur keinen großen Einfluss hat.

Zu dieser Schlussfolgerung muss allerdings gesagt werden, dass die Bestimmung des Untergrunds bei der Funktionsanpassung schwierig ist. Neben den bereits beschriebenen Schwierigkeiten des Untergrunds hat die Betrachtung in Abhängigkeit von der Schichtdicke die Fehlerquelle, dass die Reflexe mit größerer Dicke schmaler werden, wie in Kapitel 5.3.4 gezeigt wird. Vor allem bei breiten Peaks ergeben sich teilweise keine großen Unterschiede in der Abweichung der Funktionsanpassung von den Messwerten, wenn ein kleinerer Untergrund bei gleichzeitig größerer Reflexintensität angenommen wird. Dadurch wird die Bestimmung des Untergrunds mit breiteren Funktionen ungenauer. Die Funktionsanpassung könnte somit ebenfalls eine Ursache für die Veränderung des Verhältnisses von Reflex zu Untergrund sein. Es scheint jedoch bei Betrachtung der Profile wahrscheinlich, dass dies nicht die alleinige Ursache für das Phänomen ist, denn die Intensität der Reflexe steigt auch, wenn der Untergrund beim gleichen Wert festgehalten wird. Eine Verringerung der Defekte mit der Dicke erscheint somit weiterhin plausibel.

### Verhältnis der Reflexe

Über die gezeigten Untersuchungen der integrierten Intensität hinaus lassen sich auch die Intensitäten der Reflexe untereinander vergleichen. Dazu wird beim normierten Intensitätsverhältnis in Gleichung 5.2 statt des Untergrunds die integrierte Intensität eines anderen Reflexes eingesetzt.

Abbildung 5.20 zeigt das auf diese Weise gebildete Verhältnis des (01)-Reflexes zum

(00)-Reflex in den bereits zuvor verwendeten Darstellungen zur Abhängigkeit von Energie, Schichtdicke und Aufdampftemperatur. Auch hier können nur die sinnvoll auswertbaren Messungen verwendet werden. Der energieabhängige Verlauf des Ver-



Abbildung 5.20: Normiertes Intensitätsverhältnis des (01)-Reflexes zum (00)-Reflex aus der diagonalen Messung. Für die 350 °C-Probe ist in (a) die Abhängigkeit von der Energie bei verschiedenen Aufdampfschritten und in (b) die Abhängigkeit von der Schichtdicke d bei Energien von 84 eV und 128 eV dargestellt. Nach dem jeweils letzten Aufdampfschritt ist in (c) die Abhängigkeit von der Energie für verschiedene Aufdampftemperaturen und in (d) die Abhängigkeit von der Aufdampftemperatur bei 84 eV und 128 eV dargestellt.

hältnisses ist bei allen Aufdampfschritten ähnlich. Leichte Unterschiede im Bereich von 90 eV bis 100 eV sind vermutlich auf die Überlagerung mit dem in diesem Bereich sehr starken (02)-Reflex zurückzuführen. Mit höherer Schichtdicke werden die Reflexe schmaler, weshalb der Effekt der Überlagerung dort geringer wird. Des Weiteren zeigt das Verhältnis unter Berücksichtigung der Ungenauigkeit keine Abhängigkeit von Schichtdicke und Temperatur, wobei die Aussagekraft der Messungen aufgrund der großen Fehlergrenzen gering ist. Es deutet aber daraufhin, dass sich die Struktur mit der Schichtdicke und der Temperatur nicht verändert. Da der (00)-Reflex durch alle möglichen Strukturen beeinflusst wird, würde sich bei einem Unterschied in der Struktur das Verhältnis zum der Magnetitstruktur zugehörigen (01)-Reflex ändern. Das Verhältnis des  $(\frac{1}{2}\frac{1}{2})$ -Reflexes zu (00)- und (01)-Reflex ist für die zur Auswertung geeigneten Messungen in Abbildung 5.21 dargestellt. Die Verhältnisse zeigen keine



**Abbildung 5.21:** Normiertes Intensitätsverhältnis des  $(\frac{1}{2}\frac{1}{2})$ -Reflexes zu den anderen untersuchten Reflexen bei Energien von 82 eV und 140 eV. Das Verhältnis zum (00)-Reflex aus der horizontalen Messung ist in (a) für die 350 °C-Probe in Abhängigkeit von der Schichtdicke d und in (b) nach dem jeweils letzten Aufdampfschritt in Abhängigkeit von der Aufdampftemperatur dargestellt. Das Verhältnis zum (01)-Reflex ist in (c) für die 350 °C-Probe in Abhängigkeit von der Schichtdicke dund in (d) nach dem jeweils letzten Aufdampfschritt in Abhängigkeit von der Aufdampftemperatur dargestellt.

Abhängigkeit von der Schichtdicke, während sich ein leichter Anstieg mit der Temperatur abzeichnet, auch wenn er nicht über die hier ebenfalls sehr großen Fehlergrenzen hinausgeht. Dies könnte damit zusammenhängen, dass sich die Überstruktur

mit zunehmender Temperatur früher bildet. Aus den Beugungsbildern wurde entnommen, dass die Überstrukturreflexe mit ansteigender Temperatur bei kleineren Schichtdicken sichtbar werden. Demnach könnte die Überstruktur nach dem letzten Aufdampfschritt mit zunehmender Aufdampftemperatur bereits weiter ausgebildet sein, sodass die nur der Überstruktur zugehörigen Reflexe ein mit der Temperatur steigendes Intensitätsverhältnis zu den Fundamentalreflexen zeigen. Dass bei den letzten Aufdampfschritten bei der Temperatur von 350 °C keine Änderung des Verhältnisses sichtbar ist, könnte damit erklärt werden, dass die Überstruktur hier schon vollständig ausgebildet ist. Bei den anderen Temperaturen könnte sie sich hingegen nach dem letzten Aufdampfschritt noch in der Bildungsphase befinden, sodass diese ein geringeres Verhältnis zeigen.

### 5.3.4 Halbwertsbreite

Da bei der Funktionsanpassung größtenteils nur eine Funktion pro Reflex verwendet wurde, lässt sich zur Analyse der Profilform deren Halbwertsbreite untersuchen.

### (00)-Reflex

Zuerst wird der (00)-Reflex betrachtet, der durch die vorgenommenen Linescans in zwei Richtungen gemessen wurde. In Abbildung 5.22 ist der Verlauf der Halbwertsbreite des (00)-Reflexes in Abhängigkeit von der vertikalen Komponente  $K_{\perp}$ des Streuvektors bei verschiedenen Aufdampfschritten aus der horizontalen Messung der 250 °C-Probe und aus der diagonalen Messung der 350 °C-Probe gezeigt. Dabei ist der erste Aufdampfschritt bei der 250 °C-Probe, welcher bereits separat



Abbildung 5.22: Halbwertsbreite des (00)-Reflexes in Abhängigkeit von der vertikalen Komponente  $K_{\perp}$  des Streuvektors bei verschiedenen Aufdampfschritten (a) aus der horizontalen Messung der 250 °C-Probe und (b) aus der diagonalen Messung der 350 °C-Probe.

in Kapitel 5.3.3 zur integrierten Intensität behandelt wurde, nicht dargestellt. Der Verlauf ähnelt sich in beiden Richtungen. Insgesamt ist ein leichter Anstieg der Halbwertsbreite mit  $K_{\perp}$  zu erkennen. Dieser verläuft nicht linear, es ist aber auch keine Oszillation in den Kurven ersichtlich, auch wenn sich bei ungefähr  $K_{\perp} = 11 \text{ Å}^{-1}$ ein Peak abzeichnet. Der Verlauf ähnelt sich ebenfalls bei den verschiedenen Aufdampfschritten, wobei die Werte grundsätzlich mit steigender Schichtdicke geringer werden. Der Peak ist in horizontaler Richtung bei kleinen Schichtdicken stärker ausgeprägt. Dies ist vermutlich auf die bereits in Kapitel 5.3.3 zur integrierten Intensität angeführte Überlagerung mit der Überstruktur zurückzuführen, wegen der bei schwachen und gleichzeitig breiten Reflexen nur eine einzelne Fitfunktion zur Anpassung des gesamten Profils verwendet wurde. Dadurch ergibt sich effektiv eine größere Halbwertsbreite. In diagonaler Richtung ist die unterschiedliche Ausprägung dementsprechend kaum zu sehen. Größere Abweichungen vom gesamten Verlauf bei den niedrigsten Schichtdicken sind ebenso auf Überlagerungseffekte durch sehr breite Reflexe zurückzuführen.

Abbildung 5.23(a) zeigt den Vergleich der Werte aus den beiden Messrichtungen in Abhängigkeit von der Schichtdicke. Wie bei der integrierten Intensität sind die



**Abbildung 5.23:** Halbwertsbreite des (00)-Reflexes in Abhängigkeit von der Schichtdicke (a) im Vergleich zwischen den Messrichtungen für die 350 °C-Probe bei Energien von 84 eV und 130 eV und (b) aus der horizontalen Messung für die verschiedenen Aufdampftemperaturen bei einer Energie von 130 eV.

Werte in diagonaler Richtung bei allen Aufdampfschritten etwas größer, stimmen aber innerhalb der Fehlergrenzen überein. Dies zeigt sich auch bei den anderen Proben und bekräftigt die angenommene Rotationssymmetrie der Reflexe. Weiterhin wird hier ebenfalls die Abnahme der Halbwertsbreite mit der Schichtdicke deutlich, wobei diese mit zunehmender Schichtdicke schwächer wird. Diese Abhängigkeit besteht auch bei den anderen Proben, wie sich aus Abbildung 5.23(b) entnehmen lässt. Zudem nimmt die Halbwertsbreite mit steigender Aufdampftemperatur ab. Im Vergleich der Aufdampftemperaturen nach dem jeweils letzten Aufdampfschritt

in Abbildung 5.24 lässt sich erkennen, dass die Abnahme der Halbwertsbreite mit der Temperatur im gesamten Energiebereich auftritt und mit steigender Temperatur schwächer wird. Dabei sei nochmals erwähnt, dass die Temperatur einen großen



**Abbildung 5.24:** Halbwertsbreite des (00)-Reflexes aus der horizontalen Messung nach dem jeweils letzten Aufdampfschritt (a) für die verschiedenen Aufdampftemperaturen in Abhängigkeit von der vertikalen Komponente  $K_{\perp}$  des Streuvektors und (b) bei 84 eV und 130 eV in Abhängigkeit von der Aufdampftemperatur.

systematischen Fehler aufweisen könnte, wie in Kapitel 4.2 beschrieben wurde.

Zur Interpretation der Halbwertsbreite muss zunächst beachtet werden, dass im Profil der Reflexe im Gegensatz zu den Substratreflexen keine Aufteilung in Spitze und Schulter zu erkennen ist. Wenn die Verbreiterung aus atomaren Stufen resultieren würde, würde dies auf eine große Rauheit hinweisen. Der Verlauf der Halbwertsbreite in Abhängigkeit von  $K_{\perp}$  müsste dann mit einer komplexen Stufenhöhenverteilung erklärt werden, weil sich bei Einfachstufen eine sinusförmige Oszillation der Halbwertsbreite ergeben würde. Eine weitere Möglichkeit zur Erklärung des Verlaufs wäre eine komplexe Variation des Schichtabstands. Diese ist allerdings nicht wahrscheinlich, da aufgrund der Beugungsbilder von einer geordneten Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>(001)-Struktur ausgegangen werden kann, die dementsprechend auch einen einheitlichen Lagenabstand besitzen sollte.

Die Verbreiterung könnte auch durch anderweitige Domänen zustande kommen. Korngrenzen können eine mit  $K_{\perp}$  konstante und Mosaike eine mit  $K_{\perp}$  linear ansteigende Verbreiterung erzeugen. Die erkennbare Steigung der Halbwertsbreite ist allerdings nicht allein mit Mosaiken erklärbar, da eine Extrapolation der Minima in der Kurve zu negativen Halbwertsbreiten bei  $K_{\perp} = 0$  führen würde.

Weiterhin lässt sich mit den beschriebenen Interpretationen nicht begründen, warum bei allen Aufdampfschritten der Proben ein Peak bei etwa  $K_{\perp} = 11 \text{ Å}^{-1}$  auftritt. Eventuell ist er auf dynamische Effekte zurückzuführen, die materialspezifisch auf-

treten. Eine mögliche Unsicherheit in der Beobachtung des Peaks stellt die Tatsache dar, dass die Intensität des (00)-Reflexes bei dieser Energie im gemessenen Bereich am geringsten ist und bei kleinen Schichtdicken zu Überlagerungseffekten führt. Da der Peak jedoch auch bei anderen Messungen an Magnetit auf SrTiO<sub>3</sub> aufgetreten ist [62, 72], scheint er nicht nur aus Ungenauigkeiten in der Funktionsanpassung hervorzugehen, zumal er bei hohen Schichtdicken weiterhin klar zu erkennen ist.

In den vorgenommen Funktionsanpassungen zeigt sich, dass die Profilform des (00)-Reflex bei kleinen Schichtdicken bei manchen Energien etwas von der verwendeten 2D-Lorentzform abweicht. Das Profil der Messwerte ist dort etwas spitzer als die angepasste Kurve, wie in Abbildung 5.25 beispielhaft für den Aufdampfschritt nach zehn Minuten mit Schichtdicken zwischen 4 nm und 5 nm gezeigt ist, bei dem die Abweichung am deutlichsten auftritt. Da die höhere Spitzenintensität bei dickeren



**Abbildung 5.25:** Beispiel für die Funktionsanpassung eines *Linescans* der 350 °C-Probe in diagonaler Richtung bei der Schichtdicke d = 4,7 nm und der Energie E = 130 eV. Die Profilform der Messwerte weicht in der Spitze des (00)-Reflexes etwas von der Funktionsanpassung ab.

Schichten nicht zu sehen ist, könnte es sich um eine Spitze aufgrund einer Stufenverbreiterung handeln, die bei dicken Schichten durch zu große Rauheit verschwindet. Der Reflex könnte auch vom Substrat oder der (111)-Zwischenschicht beeinflusst werden. Bei den Schichtdicken mit der geänderten Form sollte die Magnetitschicht jedoch bereits aus vielen Lagen bestehen, sodass dies unwahrscheinlich erscheint. Außerdem zeigt die Intensität der zusätzlichen Spitze die gleiche Energieabhängigkeit wie der restliche Reflex, sodass sie eher der vermutlich aus Domänen entstehenden Schulter zuzuordnen ist. Dies würde eine veränderte Domänengrößenverteilung bei niedrigen Schichtdicken bedeuten. Eine weitere Möglichkeit für die Abweichung sind dynamische Effekte. Eine Anpassung mit zwei Funktionen für den (00)-Reflex bringt jedoch keine erkennbaren Unterschiede in den gezeigten Auswertungen hervor. Daher kann die vorgenommene Auswertung weiterhin als verwendbar angesehen werden.

### Äußere Reflexe

Neben dem (00)-Reflex können auch die Halbwertsbreiten der anderen Reflexe untersucht werden. Abbildung 5.26 zeigt die Abhängigkeiten der Halbwertsbreite des (01)-Reflexes von Energie, Schichtdicke und Temperatur, wobei wie bei der integrierten Intensität nur die geeigneten Messungen verwendet werden. Die Halbwertsbreite



Abbildung 5.26: Halbwertsbreite des (01)-Reflexes. Für die 350 °C-Probe ist in (a) die Abhängigkeit von  $K_{\perp}$  bei verschiedenen Aufdampfschritten und in (b) die Abhängigkeit von der Schichtdicke d bei Energien von 90 eV und 120 eV dargestellt. Nach dem jeweils letzten Aufdampfschritt ist in (c) die Abhängigkeit von  $K_{\perp}$  für verschiedene Aufdampftemperaturen und in (d) die Abhängigkeit von der Aufdampftemperatur bei 90 eV und 120 eV dargestellt. In (c) sind die Fitfunktionen für eine aus Körnern mit Mosaiken entstehende Verbreiterung eingezeichnet.

zeigt für die verschiedenen Messungen einen ähnlichen energieabhängigen Verlauf
mit einem annähernd linearen Anstieg. Für die Schichtdicke und die Temperatur zeigt die Halbwertsbreite die gleichen Abhängigkeiten wie beim (00)-Reflex.

Der lineare Anstieg der Halbwertsbreite mit  $K_{\perp}$  kann mit einem Modell aus Körnern mit Mosaiken anhand der Gleichungen 2.60 und 2.61 analysiert werden, wobei die Korngröße eine konstante Verbreiterung und die Mosaikwinkelabweichung eine zu  $K_{\perp}$  proportionale Verbreiterung bewirkt. Die aus der Anpassung der Messungen nach dem letzten Aufdampfschritt erhaltenen Funktionen sind ebenfalls in Abbildung 5.26(c) gezeigt. Die ermittelte mittlere laterale Korngröße  $D_{\text{lat}}$  und die Standardabweichung  $\sigma$  der Mosaikwinkel sind in Abbildung 5.27 in Abhängigkeit von der Aufdampftemperatur dargestellt. Als Fehler wurden die 95%-Konfidenzintervalle der Funktionsanpassung verwendet. Es deutet sich ein Anstieg der Korngröße mit der



**Abbildung 5.27:** (a) Mittlere Korngröße  $D_{\text{lat}}$  und (b) Standardabweichung  $\sigma$  des Kippwinkels der Mosaike in Abhängigkeit von der Aufdampftemperatur, ermittelt aus den Anpassungen des Verlaufs der Halbwertsbreite des (01)-Reflexes nach dem jeweils letzten Aufdampfschritt in Abhängigkeit von  $K_{\perp}$  in Abbildung 5.26(c).

Temperatur an, auch wenn er nicht über die großen Fehlergrenzen hinausgeht, während die Mosaikwinkelabweichung keine Abhängigkeit von der Temperatur zeigt. Für kleinere Schichtdicken ist keine sinnvolle Anpassung durchführbar, da der Verlauf zu stark von einem linearen Anstieg abweicht, wie anhand von Abbildung 5.26(a) ersichtlich ist. Die Interpretation der Verbreiterung aufgrund von Mosaiken widerspricht nicht den Ergebnissen beim (00)-Reflex, bei dem auch ein genereller Anstieg der Halbwertsbreite mit der Energie beobachtet wurde, auch wenn er nicht allein mit einem auf Mosaiken beruhenden Modell ausgewertet werden kann. Die Abweichung vom linearen Anstieg beim (00)-Reflex ist vermutlich auf dynamische Effekte zurückzuführen.

Die möglichen Darstellungen der Abhängigkeit von Schichtdicke und Temperatur beim Überstrukturreflex  $(\frac{1}{2}\frac{1}{2})$  sind in Abbildung 5.28 gezeigt. Es zeigt sich wie bei den anderen Reflexen eine Abnahme der Halbwertsbreite mit Schichtdicke und



**Abbildung 5.28:** Halbwertsbreite des  $(\frac{1}{2}\frac{1}{2})$ -Reflexes bei Energien von 82 eV und 140 eV (a) für die 350 °C-Probe in Abhängigkeit von der Schichtdicke d und (b) nach dem jeweils letzten Aufdampfschritt in Abhängigkeit von der Aufdampftemperatur.

Temperatur. Da sich die Überstruktur nach den gängigen Theorien an den in der  $(1 \times 1)$ -Struktur angeordneten tetraedrisch koordinierten Fe-Ionen des Magnetitgitters orientiert [61, 77, 78], können Antiphasendomänen der Überstruktur nur um Translationsvektoren der  $(1 \times 1)$ -Struktur verschoben sein. Daher würden Antiphasendomänen nicht bei den Reflexen der  $(1 \times 1)$ -Struktur, sondern nur bei den Überstrukturreflexen zu einer zusätzlichen Verbreiterung führen. Im Vergleich der absoluten Werte fällt auf, dass die Halbwertsbreiten bei allen Reflexen ähnlich groß sind. Demzufolge kann innerhalb der Korngrenzen nur eine geringe Anzahl an Antiphasengrenzen der Überstruktur vorhanden sein.

Insgesamt lässt sich sagen, dass die Verbreiterung der Reflexe vermutlich aufgrund von Domänen auftritt. Da die Halbwertsbreite der Reflexe mit der Schichtdicke und der Aufdampftemperatur abnimmt, werden die Domänen mit zunehmender Schichtdicke und steigender Aufdampftemperatur größer. Aufgrund des energieabhängigen Verlaufs der Halbwertsbreite sind die Ursache der Domänen und die durchschnittliche Domänengröße aus dem (00)-Reflex schwierig zu ermitteln. Der (01)-Reflex lässt sich mit einem Modell aus Mosaiken auswerten, wobei sich mit steigender Aufdampftemperatur ein Anstieg der lateralen Korngröße zeigt, während für die Mosaikwinkelabweichung kein Trend zu entnehmen ist. Zudem legt der Vergleich der Reflexe nahe, dass die Überstruktur innerhalb der Korngrenzen nur wenige Antiphasengrenzen besitzt.

## 6 Zusammenfassung und Ausblick

Gegenstand dieser Arbeit war die SPA-LEED-Untersuchung des Wachstums von  $Fe_3O_4$  auf  $SrTiO_3(001)$ . Dazu wurde auf vier  $SrTiO_3(001)$ -Substrate mittels reaktiver Molekularstrahlepitaxie bei Temperaturen von 150 °C, 200 °C, 250 °C bzw. 350 °C sukzessiv Magnetit aufgedampft, um die Abhängigkeit von Schichtdicke und Aufdampftemperatur analysieren zu können.

Aus den SPA-LEED-Messungen an den SrTiO<sub>3</sub>(001)-Substraten zeigt sich, dass diese aus sehr wenigen Lagen bestehen, wobei der Lagenabstand an ihrer Oberfläche leicht über dem von der Volumengitterkonstante vorgegebenen Wert liegt. Die Terrassenlängen lassen sich überwiegend durch eine rotationssymmetrische geometrische Verteilung beschreiben. Zum Teil kann die Verteilung zu einer Gammaverteilung mit einem Verhältnis von 0,8 zwischen Standardabweichung und durchschnittlicher Länge übergehen. Des Weiteren lässt sich ein Auftreten von Inhomogenitäten mit einer Bedeckung von etwa der halben Oberfläche vermuten, deren Ursache nicht abschließend geklärt werden konnte. Eine mögliche Erklärung wäre, dass die Oberfläche ungefähr im gleichen Verhältnis von den alternierenden SrO- und TiO<sub>2</sub>-Lagen des Strontiumtitanats terminiert wird. Andernfalls könnten die Inhomogenitäten aus anderweitigen Unreinheiten entstehen, während die Oberfläche überwiegend die Terminierung mit einer der beiden Lagen aufweist.

Aus den XRR- und SPA-LEED-Messungen geht hervor, dass bei allen Aufdampftemperaturen  $Fe_3O_4(001)$ -Schichten mit ähnlichen Dicken hergestellt wurden. Eine Untersuchung der 250 °C-Probe bei der Schichtdicke von 0,92 nm zeigt, dass sich bei dieser Dicke eine  $Fe_3O_4(111)$ -Oberfläche feststellen lässt. Für größere Schichtdicken kann bei allen angewendeten Aufdampftemperaturen von einer  $Fe_3O_4(001)$ -Oberfläche ausgegangen werden. Aus der Auswertung der Intensität und der Halbwertsbreite der Beugungsreflexe zeigt sich, dass die Defekte der Oberfläche mit der Schichtdicke weniger werden, während sich die Domänen vergrößern. Mit der Aufdampftemperatur zeigt sich ebenfalls ein Anstieg der Domänengröße, während für die Defekte kein Einfluss der Temperatur festgestellt werden kann. Die Analyse des (01)-Reflexes deutet darauf hin, dass die Oberfläche aus Mosaiken besteht, wobei die mittlere laterale Korngröße mit der Aufdampftemperatur zunimmt, während für die Abweichung der Mosaikwinkel kein Trend mit der Temperatur ermittelt werden konnte. Die Analyse des  $(\frac{1}{2}\frac{1}{2})$ -Reflexes lässt erkennen, dass die Bildung der  $(\sqrt{2} \times \sqrt{2})$  R45°-Überstruktur mit höherer Temperatur bei kleineren Schichtdicken einsetzt. Zudem sollte die Überstruktur innerhalb der Korngrenzen nur eine geringe Anzahl an Antiphasengrenzen besitzen.

Um die Ursache der Inhomogenitäten der  $SrTiO_3(001)$ -Oberfläche herauszufinden, könnte ihre Zusammensetzung mit Methoden der Spektroskopie untersucht werden. Dabei wäre niederenergetische Ionenstreuspektroskopie (LEIS) aufgrund der hohen

## 6 ZUSAMMENFASSUNG UND AUSBLICK

Oberflächenempfindlichkeit besonders geeignet. Auch für die hergestellten Magnetitschichten wäre eine Untersuchung mittels Spektroskopie sinnvoll. Zum einen könnte so bestätigt werden, ob es sich bei den Schichten um Magnetit handelt. Zum anderen könnte die aus den XRR-Messungen beobachtete Schicht oberhalb des Magnetits untersucht werden. Dabei könnte die Verwendung winkelaufgelöster Photoelektronenspektroskopie mit harter Röntgenstrahlung (AR-HAXPES) nützlich sein, mit der ein Tiefenprofil der Oberfläche über die Dicke der oberen Schicht hinaus erstellt werden kann. Zudem könnte die Struktur der oberen Schicht mittels Transmissionselektronenmikroskopie (TEM) analysiert werden, welche auch Aufschluss über eventuell bestehende  $Fe_3O_4(111)$ -Phasen im unteren Bereich der Magnetitschichten geben könnte. Im Hinblick auf die Anwendung der Messergebnisse in der Spintronik wäre eine Untersuchung der magnetischen Eigenschaften notwendig.

Um die Analyse des verwendeten Verfahrens zur Herstellung der Proben fortzuführen, wäre es zunächst sinnvoll zu prüfen, ob bessere Wachstumsvoraussetzungen durch eine andere Präparation des Substrats erreicht werden können. Zur weiteren Untersuchung der Abhängigkeiten der Defektdichte und der Domänengröße der Magnetitschichten von Schichtdicke und Aufdampftemperatur könnten die SPA-LEED-Messungen bei weiteren Aufdampftemperaturen fortgesetzt werden. Für eine Untersuchung des Auftretens der  $Fe_3O_4(111)$ -Schicht könnte die Dauer der ersten Aufdampfschritte verringert werden, während die Herstellung von dickeren Schichten Erkenntnisse darüber bringen könnte, ob die Überstruktur bei den hergestellten Proben noch nicht vollständig ausgebildet ist. Des Weiteren könnte es interessant sein, den Einfluss einer Änderung der Aufdampfrate zu untersuchen.

## 7 Summary

In this work, the growth of  $Fe_3O_4$  on  $SrTiO_3(001)$  was investigated by SPA-LEED. For that purpose, magnetite was deposited successively on four  $SrTiO_3(001)$  substrates by means of molecular beam epitaxy at temperatures of  $150 \,^{\circ}C$ ,  $200 \,^{\circ}C$ ,  $250 \,^{\circ}C$ and  $350 \,^{\circ}C$ , respectively, in order to analyse the dependency on film thickness and epitaxy temperature.

From the SPA-LEED measurements on the  $SrTiO_3(001)$  substrates it becomes apparent, that they consist of very few layers, with the layer distance at the surface being slightly above the value specified by the volume lattice constant. The terrace lengths mainly can be described by a rotationally symmetric geometric distribution, partly transitioning into a Gamma distribution with a ratio of 0.8 between standard deviation and mean terrace width. Furthermore, the occurrence of inhomogeneities with a coverage of about half the surface can be assumed, whose cause could not be completely clarified. A possible explanation could be, that the surface is approximately equally terminated by the alternating SrO and TiO<sub>2</sub> layers of the strontium titanate. Alternatively, the inhomogeneities could emerge from other impurities, while the surface predominantly exhibits the termination with one of the two layers.

The XRR and SPA-LEED measurements show, that Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>(001) films with similar thicknesses were produced at all epitaxy temperatures. An examination of the 250 °C sample at the film thickness of 0.92 nm points towards the formation of an Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>(111) surface at this thickness. For thicker films an Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>(001) surface can be assumed at all applied epitaxy temperatures. The evaluation of intensity and half width of the diffraction spots shows, that the defects on the surface decrease with the film thickness, while the domains are expanding. With increasing epitaxy temperature the domain size increases as well, while on the defects no influence of the temperature can be determined. The analysis of the (01) spot suggests a surface consisting of mosaics, with the mean lateral grain size increasing with epitaxy temperature, while no trend with temperature can be detected for the mosaic angle deviation. The analysis of the  $(\frac{1}{2}\frac{1}{2})$  spot indicates, that with increasing temperature the formation of the  $(\sqrt{2} \times \sqrt{2})$  R45° superstructure begins at smaller film thicknesses. Moreover, the superstructure should exhibit only a small amount of antiphase boundaries within the grain boundaries.

## Literaturverzeichnis

- F. Bertram et al., "Reordering between tetrahedral and octahedral sites in ultrathin magnetite films grown on MgO(001)", Journal of Applied Physics 113, 184103 (2013) (siehe S. 1, 52).
- [2] T. Pohlmann et al., "Time-resolved x-ray diffraction and photoelectron spectroscopy investigation of the reactive molecular beam epitaxy of Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> ultrathin films", Phys. Rev. B 105, 045412 (2022) (siehe S. 1, 52).
- [3] Y. Suzuki, "Epitaxial Spinel Ferrite Thin Films", Annual Review of Materials Research 31, 265–289 (2001) (siehe S. 1).
- [4] J. Coey, *Magnetism and Magnetic Materials* (Cambridge University Press, 2010) (siehe S. 1, 27).
- [5] A. Hamie et al., "Investigation of high quality magnetite thin films grown on  $SrTiO_3(001)$  substrates by pulsed laser deposition", Thin Solid Films **525**, 115–120 (2012) (siehe S. 1).
- [6] Z. Zhang und S. Satpathy, "Electron states, magnetism, and the Verwey transition in magnetite", Phys. Rev. B 44, 13319–13331 (1991) (siehe S. 1, 27).
- [7] J.-B. Moussy, "From epitaxial growth of ferrite thin films to spin-polarized tunnelling", Journal of Physics D: Applied Physics 46, 143001 (2013) (siehe S. 1).
- [8] J. M. D. Coey und C. L. Chien, "Half-Metallic Ferromagnetic Oxides", MRS Bulletin 28, 720–724 (2003) (siehe S. 1).
- [9] P. van der Zaag et al., "On the construction of an  $Fe_3O_4$ -based all-oxide spin valve", Journal of Magnetism and Magnetic Materials **211**, 301–308 (2000) (siehe S. 1).
- [10] K. Jordan et al., "Scanning tunneling spectroscopy study of the electronic structure of Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> surfaces", Phys. Rev. B 74, 085416 (2006) (siehe S. 1, 27).
- [11] M. Henzler und W. Göpel, Oberflächenphysik des Festkörpers, Teubner Studienbücher Physik (Vieweg+Teubner Verlag, Wiesbaden, 1994) (siehe S. 1, 5, 9, 10, 19, 20, 22, 29).
- [12] M. Henzler, "Measurement of surface defects by low-energy electron diffraction", Appl. Phys. A 34, 205–214 (1984) (siehe S. 1, 8, 9, 20).
- [13] M. Henzler, "LEED from epitaxial surfaces", Surface Science 298, 369–377 (1993) (siehe S. 1).
- [14] M. Horn-von Hoegen, "Growth of semiconductor layers studied by spot profile analysing low energy electron diffraction", Zeitschrift für Kristallographie 214, 591–629 und 684–721 (1999) (siehe S. 1, 5, 7, 9–13, 15).

- [15] J. Wollschläger, "Reactive Molecular Beam Epitaxy of Iron Oxide Films: Strain, Order, and Interface Properties", in *Encyclopedia of Interfacial Chemistry*, hrsg. von K. Wandelt (Elsevier, Oxford, 2018) (siehe S. 1, 27, 52, 53).
- [16] N.-T. Kim-Ngan et al., "Thermal and irradiation induced interdiffusion in magnetite thin films grown on magnesium oxide (001) substrates", Surface Science 603, 1175–1181 (2009) (siehe S. 1).
- [17] O. Kuschel et al., "Real-time monitoring of the structure of ultrathin  $Fe_3O_4$  films during growth on Nb-doped  $SrTiO_3(001)$ ", Applied Physics Letters **111**, 041902 (2017) (siehe S. 1, 52).
- [18] K. Oura et al., Surface Science, An Introduction, Advanced Texts in Physics (Springer, Berlin, Heidelberg, 2003) (siehe S. 3, 5, 20, 29).
- [19] C. Kittel, Introduction to Solid Stat Physics (Wiley, 2005) (siehe S. 3).
- [20] W. Demtröder, *Experimentalphysik 3*, Springer-Lehrbuch (Springer Spektrum Berlin, Heidelberg, 2016) (siehe S. 3).
- [21] E. A. Wood, "Vocabulary of Surface Crystallography", Journal of Applied Physics 35, 1306–1312 (1964) (siehe S. 3).
- [22] J. Rodewald, "Advancement of growth and characteristics of ultrathin ferrite films", Dissertation, Universität Osnabrück (2020) (siehe S. 4, 27).
- [23] M. A. Van Hove, W. H. Weinberg und C.-M. Chan, Low-Energy Electron Diffraction, Springer Series in Surface Sciences 6 (Springer, Berlin, Heidelberg, 1986) (siehe S. 5, 19).
- [24] U. Scheithauer, G. Meyer und M. Henzler, "A new LEED Instrument for quantitative Spot Profile Analysis", Surface Science 178, 441–451 (1986) (siehe S. 5, 31).
- [25] T. Schmidt, Strukturelle Untersuchungen zur Homoepitaxie auf Pt(111), Berichte aus der Physik, Dissertation, Universität Hannover (Shaker, 1995) (siehe S. 5, 18, 19, 39).
- [26] T.-M. Lu und M. Lagally, "The resolving power of a low-energy electron diffractometer and the analysis of surface defects", Surface Science 99, 695–713 (1980) (siehe S. 5).
- [27] H. Wilkens et al., "Surface morphology of ultrathin hex- $Pr_2O_3$  films on Si(111)", Journal of Physics D: Applied Physics **46**, 285306 (2013) (siehe S. 5).
- [28] J. Wollschläger, "Diffraction from surfaces with randomly distributed structural defects", Surface Science 328, 325–336 (1995) (siehe S. 5, 9, 20).
- [29] M. Henzler, "Electron Diffraction and Surface Defect Structure", in *Electron Spectroscopy for Surface Analysis*, hrsg. von H. Ibach, Topics in Current Physics 4 (Springer, Berlin, Heidelberg, 1977) (siehe S. 5, 9, 20, 22).
- [30] V. Zielasek, A. Büssenschütt und M. Henzler, "Low-energy electron thermal diffuse scattering from Al(111) individually resolved in energy and momentum", Phys. Rev. B 55, 5398–5403 (1997) (siehe S. 5, 38).

- [31] J. Wollschläger, J. Falta und M. Henzler, "Electron diffraction at stepped homogeneous and inhomogeneous surfaces", Appl. Phys. A 50, 57–68 (1990) (siehe S. 5, 9, 13, 49).
- [32] T. Groven, "SPA-LEED-Untersuchungen zu Au-induzierten Nanodrähten auf Si(553)", Masterarbeit, Universität Osnabrück (2020) (siehe S. 7).
- [33] F. Y. Timmer, "Diffraction studies on ordering of quasi-one-dimensional structures and nanowires on silicon surfaces induced by metals", Dissertation, Universität Osnabrück (2017) (siehe S. 7).
- [34] M. Henzler, "Defects at semiconductor surfaces", Surface Science 152-153, 963–976 (1985) (siehe S. 8, 9).
- [35] M. Henzler, "LEED studies of surface imperfections", Applications of Surface Science 11-12, 450–469 (1982) (siehe S. 9, 19).
- [36] C. Lent und P. Cohen, "Diffraction from stepped surfaces: I. Reversible surfaces", Surface Science 139, 121–154 (1984) (siehe S. 11, 38).
- [37] J. Wollschläger, "Ordnungsvorgänge in einatomaren Metallschichten auf hochindizierten Metallflächen", Dissertation, Universität Hannover (1990) (siehe S. 11, 14, 16).
- [38] J. Wollschläger, E. Z. Luo und M. Henzler, "Thermal roughness of the homogeneous and inhomogeneous Cu(311) surface studied by high-resolution lowenergy electron diffraction", Phys. Rev. B 44, 13031–13041 (1991) (siehe S. 13).
- [39] M. Henzler, "Spot profile analysis (LEED) of defects at silicon surfaces", Surface Science 132, 82–91 (1983) (siehe S. 14).
- [40] P. Pukite, C. Lent und P. Cohen, "Diffraction from stepped surfaces: II. Arbitrary terrace distributions", Surface Science 161, 39–68 (1985) (siehe S. 15).
- [41] J. Wollschläger, "Simple analysis of spot splitting due to diffraction at surfaces with atomic steps", Surface Science 383, 103–122 (1997) (siehe S. 15).
- [42] R. L. Park, J. E. Houston und D. G. Schreiner, "The LEED Instrument Response Function", Review of Scientific Instruments 42, 60–65 (1971) (siehe S. 19).
- [43] G.-C. Wang und M. Lagally, "Quantitative island size determination in the chemisorbed layer W(110)  $p(2 \times 1)$ -O: I. Instrument response function and substrate perfection", Surface Science **81**, 69–89 (1979) (siehe S. 19).
- [44] J. T. McKinney, E. R. Jones und M. B. Webb, "Surface Lattice Dynamics of Silver. II. Low-Energy Electron Thermal Diffuse Scattering", Phys. Rev. 160, 523–530 (1967) (siehe S. 21).
- [45] J. Rodewald, "Oxidation epitaktischer Eisenschichten auf Ag(001)", Masterarbeit, Universität Osnabrück (2014) (siehe S. 21).
- [46] J. Als-Nielsen und D. McMorrow, *Elements of Modern X-ray Physics* (Wiley, 2011) (siehe S. 23).

- [47] L. Spieß et al., "Untersuchungen an dünnen Schichten", in Moderne Röntgenbeugung: Röntgendiffraktometrie für Materialwissenschaftler, Physiker und Chemiker (Springer Spektrum, Wiesbaden, 2019) (siehe S. 23).
- [48] M. Tolan, X-ray scattering from soft-matter thin films: Materials science and basic research, Springer Tracts in Modern Physics 148 (Springer, Berlin, Heidelberg, 1999) (siehe S. 23).
- [49] A. Gibaud und G. Vignaud, "Specular Reflectivity from Smooth and Rough Surfaces", in X-ray and Neutron Reflectivity: Principles and Applications, hrsg. von J. Daillant und A. Gibaud, Lecture Notes in Physics 770 (Springer, Berlin, Heidelberg, 2009) (siehe S. 24, 25).
- [50] G. Vignaud und A. Gibaud, "*REFLEX*: a program for the analysis of specular X-ray and neutron reflectivity data", Journal of Applied Crystallography 52, 201–213 (2019) (siehe S. 24, 25, 49).
- [51] F. Donder, "Electronic and Magnetic Structure of Epitaxial Nickel Cobaltite Ultrathin Films on MgAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub>(001)", Masterarbeit, Universität Osnabrück (2022) (siehe S. 24).
- [52] L. G. Parratt, "Surface Studies of Solids by Total Reflection of X-Rays", Phys. Rev. 95, 359–369 (1954) (siehe S. 25).
- [53] F. Abelès, "Recherches sur la propagation des ondes électromagnétiques sinusoïdales dans les milieux stratifiés - Application aux couches minces", Ann. Phys. 12, 596–640 (1950) (siehe S. 25).
- [54] L. Névot und P. Croce, "Caractérisation des surfaces par réflexion rasante de rayons X. Application à l'étude du polissage de quelques verres silicates", Revue de Physique Appliquée 15, 761–779 (1980) (siehe S. 26).
- [55] M. Kawasaki et al., "Atomic Control of the  $SrTiO_3$  Crystal Surface", Science **266**, 1540–1542 (1994) (siehe S. 27).
- [56] A. Şale et al., "Magnetic properties of Fe implanted  $SrTiO_3$  perovskite crystal", Materials Research Bulletin **48**, 2861–2864 (2013) (siehe S. 27).
- [57] A. Spinelli et al., "Electronic transport in doped SrTiO<sub>3</sub>: Conduction mechanisms and potential applications", Phys. Rev. B **81**, 155110 (2010) (siehe S. 27).
- [58] J. Noh et al., "A density functional theory investigation of the electronic structure and spin moments of magnetite", Science and Technology of Advanced Materials 15, 044202 (2014) (siehe S. 28).
- [59] F. Bertram, "Röntgenstrukturanalyse von Oxidschichten", Masterarbeit, Universität Osnabrück (2009) (siehe S. 28).
- [60] S. M. Hosseini, "Structural, electronic and optical properties of spinel MgAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub> oxide", physica status solidi (b) 245, 2800–2807 (2008) (siehe S. 28).
- [61] S. Chambers und S. Joyce, "Surface termination, composition and reconstruction of Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>(001) and  $\gamma$ -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(001)", Surface Science **420**, 111–122 (1999) (siehe S. 28, 70).

- [62] A. Alexander, "SPA-LEED-Untersuchungen zum Wachstum von Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> auf SrTiO<sub>3</sub>(001)", Masterarbeit, Universität Osnabrück (2019) (siehe S. 29, 45, 51, 67).
- [63] D. Bruns, "Structure and morphology of ultrathin iron and iron oxide films on Ag(001)", Dissertation, Universität Osnabrück (2012) (siehe S. 31).
- [64] T. Röwekamp, "Entwicklung einer Software für eine SPA-LEED-Oktolpolansteuerung", Diplomarbeit, Universität Osnabrück (2013) (siehe S. 31).
- [65] F. Sojka et al., "Determination and correction of distortions and systematic errors in low-energy electron diffraction", Review of Scientific Instruments 84, 015111 (2013) (siehe S. 32).
- [66] O. H. Seeck et al., "The high-resolution diffraction beamline P08 at PETRA III", Journal of Synchrotron Radiation 19, 30–38 (2012) (siehe S. 32).
- [67] J. Thien, "Bildung und Charakterisierung von Cobaltferritschichten durch Interdiffusion von Cobaltoxid- und Magnetitschichten", Masterarbeit, Universität Osnabrück (2017) (siehe S. 32).
- [68] A. G. Schrott et al., "A-site surface termination in strontium titanate single crystals", Applied Physics Letters 79, 1786–1788 (2001) (siehe S. 45).
- [69] D. Saloner und M. G. Lagally, "Domain Size Determination in Heteroepitaxial Systems from LEED Angular Profiles", in *The Structure of Surfaces*, hrsg. von M. A. Van Hove und S. Y. Tong (Springer, Berlin, Heidelberg, 1985) (siehe S. 48).
- [70] M. G. Lagally, D. E. Savage und M. C. Tringides, "Diffraction from Disordered Surfaces: An Overview", in *Reflection High-Energy Electron Diffraction and Reflection Electron Imaging of Surfaces*, hrsg. von P. K. Larsen und P. J. Dobson (Springer US, Boston, MA, 1988) (siehe S. 49).
- [71] B. Henke, E. Gullikson und J. Davis, "X-Ray Interactions: Photoabsorption, Scattering, Transmission, and Reflection at E = 50-30000 eV,  $Z = 1-92^{\circ}$ , Atomic Data and Nuclear Data Tables **54**, 181–342 (1993) (siehe S. 49, 50).
- [72] S. Schmitz, "Untersuchung der  $\text{Fe}_3\text{O}_4(111)$  Zwischenschicht auf SrTiO<sub>3</sub>", Bachelorarbeit, Universität Osnabrück (2020) (siehe S. 51, 67).
- [73] R. Buß, "Studies on the Epitaxial Growth of Ultrathin Metal Oxide Films", Masterarbeit, Universität Osnabrück (2015) (siehe S. 51, 57).
- [74] G. Leung et al., "Epitaxial growth of  $Fe_3O_4(111)$  on  $SrTiO_3(001)$  substrates", Journal of Crystal Growth **310**, 5282–5286 (2008) (siehe S. 51).
- [75] R. Takahashi, H. Misumi und M. Lippmaa, "Self-Template Growth of Orientation-Controlled Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> Thin Films", Crystal Growth & Design **12**, 2679– 2683 (2012) (siehe S. 51).

- [76] F. Bertram et al., "X-ray diffraction study on size effects in epitaxial magnetite thin films on MgO(001)", Journal of Physics D: Applied Physics 45, 395302 (2012) (siehe S. 52).
- [77] R. Bliem et al., "Subsurface cation vacancy stabilization of the magnetite (001) surface", Science **346**, 1215–1218 (2014) (siehe S. 70).
- [78] R. Pentcheva et al., "Jahn-Teller Stabilization of a "Polar" Metal Oxide Surface:  $Fe_3O_4(001)$ ", Phys. Rev. Lett. **94**, 126101 (2005) (siehe S. 70).