

Kurzfassung

Um eine effiziente Entwicklung und Prozessierung zukünftiger Festkörpertechnologien voranzutreiben, sind ein klares Verständnis und eine gezielte Optimierung von Oberflächen, auf der Oberfläche befindlichen Atome und Moleküle und deren Wechselwirkung mit der Umgebung notwendige Voraussetzungen. Die Rastertunnelmikroskopie (STM), im Jahre 1986 mit dem Nobelpreis bedacht, stellt eine der bekanntesten Techniken zur Untersuchung von Oberflächeneigenschaften mit atomarer Auflösungen dar. Die Interpretation der STM Experimente ist jedoch meist aufwendig, da STM eine Überlagerung der Beiträge der Oberflächentopographie und der elektronischen Struktur detektiert. Heute bieten moderne *ab initio* Methoden wie die Dichtefunktionaltheorie (DFT) die Möglichkeit einer genauen theoretischen Beschreibung von Oberflächeneigenschaften. Sie können daher für ein detailliertes Verständnis von STM Experimenten herangezogen werden. Dementsprechend sind moderne STM Untersuchung immer das Ergebnis gemeinsamer Anstrengungen von experimentellen und theoretischen Gruppen.

Das Ziel der vorliegenden Arbeit ist es, ein tiefgehendes Verständnis und theoretisch fundierte Simulationsmethode einer neuen Generation von Rastertunnelmikroskopie-Experimenten zu liefern. Der Fokus liegt dabei auf der Verwendung zweier verschiedener STM-Moden: dem Spektroskopie-Modus (sogenanntes Fourier transformiertes STM, FT-STM) und dem Spin-sensitiven Modus (sogenanntes Spin-polarisiertes STM, SP-STM). Um diese STM-Operationstechniken theoretisch vorhersagen und analysieren zu können, haben wir verschiedene auf der DFT basierende *ab initio* Verfahren entwickelt. Alle STM-relevanten Verfahren wurden in die Multiskalen-Bibliothek S/PHI/nX integriert. Die verwendeten Methoden sind allgemeingültig und können auf beliebige Materialsysteme angewandt werden, um STM Bilder verschiedener magnetischer und nichtmagnetischer metallischer Oberflächen präzise vorherzusagen und zu analysieren.

Der erste Teil dieser Dissertation konzentriert sich auf die Simulation von FT-STM, also der Mode, die die Abbildung der lokalen Dispersionseigenschaften von Elektronen auf der Oberfläche erlaubt. Um das theoretische Gegenstück zu den experimentellen FT-STM Spektren zu gewinnen, haben wir einen neuen impliziten Zugang vorgestellt, der auf der Tersoff-Hamann-Theorie beruht: Der dabei vorgeschlagene Ansatz, der Behandlung von Oberflächenfehlern (die notwendigerweise in FT-STM-Experimenten auftreten) als ideal reflektierende Objekte führt zu einer dramatischen Reduzierung des Rechenaufwandes, da sich dadurch die expliziten *ab initio* Rechnungen nur auf die kleinste (chemische) Elementarzelle der idealen, ungestörten Oberfläche beschränken. Die Bedeutung einer genauen Behandlung der Oberflächen-Wellenfunktionen 5-15 Å oberhalb der Oberfläche sowie von spurious Quanten-size Effekten zur Erzielung konvergierten FT-STM Abbildungen werde im Detail diskutiert. Wir haben unsere Methode auf FT-STM Experiment, die an Ag(110) Oberflächen durchgeführt wurden, angewandt. Die mit dieser Methode simulierten FT-STM Spektren sind in ausgezeichneter Übereinstimmung mit den experimentellen Daten und ermöglichen eine detaillierte Interpretation. Insbesondere haben wir erstmalig zeigen können, dass STM in der Lage ist, dynamische Eigenschaften von Elektronen im Volumenmaterial zu erfassen. Der physikalische Effekt, auf dem dieses Phänomen beruht, wurde im Detail erklärt.

Im zweiten Teil dieser Dissertation haben wir die Modellierung von Spin-aufgelöstem STM diskutiert. Diese Modus erlaubt die Charakterisierung der magnetischen Struktur der Oberfläche. Als Beispielsystem haben wir magnetisch geordnete Oberflächen des Übergangsmetall-Nitrids Mn_3N_2 (010) untersucht. Da die SP-STM Experimente kein schlüssiges Verständnis der Oberflächenstruktur erlaubten, haben wir zunächst *ab initio* Thermodynamik verwendet, um die stabilsten magnetischen und atomaren Konfigurationen der Oberfläche herauszufinden, die mit dem Experiment in Übereinstimmung waren. Um die SP-STM Abbildungen der stabilsten Mn_3N_2 (010) Oberfläche zu simulieren, haben wir den Spin-verallgemeinerten Transfer-Hamiltonian Formalismus angewandt. Dieser geht von der Annahme aus, dass die Wellenfunktion der STM-Spitze in erster Linie radialen Charakter hat (*s*-artige Spitze). Wir haben festgestellt, dass die Beschreibung der Vakuumregion im Realraum in unserem Fall essentiell ist, und diese Methode wurde in S/PHI/nX eingebaut. Die theoretischen Ergebnisse sind in exzellenter Übereinstimmung mit den gemessenen Profilen waren, und erlauben daher ein tiefgreifendes Verständnis aller wichtigen Effekte, wie der magnetischen Kontrastumkehr und des Einflusses der STM-Spitze auf die gemessenen Daten.

Zusammenfassend wird in dieser Dissertation ein *ab initio* Zugang zur Simulation von FT-STM und SP-STM Experimenten entwickelt und auf verschiedene bislang ungelöste Probleme aktuelle STM Experimente an magnetischen und nichtmagnetischen Oberflächen angewandt. Ein Großteil der hier vorgestellten Ergebnisse wurden in enger Zusammenarbeit mit experimentellen Gruppen am Fritz-Haber-Institut der MPG in Berlin und an der Ohio Universität in der USA gewonnen.