

Koinzidenz-Spektroskopie an Oberflächen :  
Zwei-Elektronen-Photoemission von Cu(111)

Dissertation  
zur Erlangung des Doktorgrades  
der Naturwissenschaften

vorgelegt beim Fachbereich Physik  
der Johann Wolfgang Goethe-Universität  
in Frankfurt am Main

von  
Mirko Hattab  
aus Gelnhausen

Institut für Kernphysik Frankfurt  
(DF1)

Mai 2004

Vom Fachbereich Physik  
der Johann Wolfgang Goethe-Universität als Dissertation angenommen.

Dekan : Prof. Dr. Aßmus

Gutachter : Prof. Dr. Schmidt-Böcking und Prof. Dr. Dörner

Datum der Disputation : 2.7.2004

# Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Einleitung</b>	<b>1</b>
<b>2</b>	<b>Theoretische Grundlagen</b>	<b>3</b>
2.1	Konstruktion der Anfangszustände . . . . .	3
2.2	Beschreibung der Photon-Elektron-Wechselwirkung . . . . .	7
2.3	Grundlagen der Photoemission von Oberflächen . . . . .	9
2.3.1	Das Drei-Stufen-Modell der Photoemission . . . . .	12
2.3.2	Das Einstufen-Modell der Photoemission . . . . .	16
2.4	Grundlagen der Doppel-Photoemission . . . . .	17
2.4.1	Das Korrelationsloch . . . . .	22
2.4.2	Oberflächenempfindlichkeit . . . . .	22
2.4.3	Weitere Prozesse . . . . .	23
<b>3</b>	<b>Experiment</b>	<b>27</b>
3.1	Anforderungen an das Experiment . . . . .	27
3.1.1	Nachweiseffizienz . . . . .	27
3.1.2	Ereignisse aus unkorreliertem Untergrund . . . . .	28
3.1.3	Lösungsmöglichkeiten . . . . .	30
3.2	Das Flugzeit-Spektrometer . . . . .	31
3.2.1	Berechnung der Trajektorie im Spektrometer . . . . .	35
3.2.2	Energie- und Winkelaufösung des Flugzeit-Spektrometers . . . . .	38
3.2.3	Simulation des Spektrometers . . . . .	42
3.3	Der Detektor . . . . .	43
3.4	Vakuumsystem . . . . .	46
3.5	Einbau und Präparation der Probe . . . . .	48
3.6	Elektronik . . . . .	51
3.7	Synchrotron und Strahlpräparation . . . . .	52
3.7.1	Erzeugung und Charakterisierung von Synchrotron-Strahlung . . . . .	52
3.7.2	Spezielle Komponenten zur Strahlungserzeugung . . . . .	55
3.7.3	Der Messplatz BW3 bei HASYLAB/DESY . . . . .	58
3.7.4	Unterdrückung höher harmonischer Reflexionen des Monochromators . . . . .	60
3.8	Datenaufnahme . . . . .	62

<b>4</b>	<b>Datenanalyse</b>	<b>67</b>
4.1	Eichung der Detektor-Parameter . . . . .	67
4.2	Der Resortierungsalgorithmus . . . . .	69
4.2.1	Resortierung von Signalen . . . . .	71
4.2.2	Rekonstruktion von Signalen . . . . .	71
4.3	Aufbereitung der Rohdaten . . . . .	73
4.4	Eichung des Spektrometers . . . . .	74
<b>5</b>	<b>Ergebnisse und Diskussion</b>	<b>79</b>
5.1	Ergebnisse aus Einfach-Photoemission . . . . .	79
5.1.1	Geometrie . . . . .	79
5.1.2	Spektren . . . . .	79
5.2	Doppel-Photoemission . . . . .	81
5.2.1	Winkelintegrierte Spektren . . . . .	82
5.2.2	Energieabhängigkeit . . . . .	87
5.2.3	Abschätzung des unkorrelierten Untergrundes . . . . .	92
5.3	Schwerpunktsbewegung . . . . .	95
5.3.1	inelastischer Bereich . . . . .	98
5.4	Relativbewegung . . . . .	99
5.5	Winkelverteilung der Elektronen . . . . .	104
5.5.1	CTMC-Simulation . . . . .	108
5.5.2	Vergleich und Interpretation . . . . .	110
5.5.3	Korrelationsloch . . . . .	113
<b>6</b>	<b>Zusammenfassung</b>	<b>121</b>
6.1	Zusammenfassung . . . . .	121
6.2	Ausblick . . . . .	123
	<b>Danksagung</b>	<b>141</b>
	<b>Lebenslauf</b>	<b>143</b>

# Kapitel 1

## Einleitung

Der Photoeffekt gehört zu den wichtigsten Entdeckungen, die die Entwicklung der modernen Physik geprägt haben. Unter dem Photoeffekt versteht man dabei zunächst das Herauslösen von Elektronen aus einem Material unter Einstrahlung von Licht (oder allgemein elektromagnetischer Strahlung). Erstmals beschrieben wurde der Photoeffekt von W.Hallwachs im Jahr 1888. Er bestrahlte negativ geladene Metallplatten mit ultraviolettem Licht und stellte dabei eine langsame Entladung fest. Die weiterführenden Experimente zeigten, dass die kinetische Energie der herausgelösten Elektronen nicht von der Intensität der Strahlung, sondern alleine von deren Frequenz abhängig ist. Diese Beobachtung wurde schließlich von Albert Einstein [EIN05] durch die Interpretation des Lichtes als einzelne Energiequanten der Energie  $E = hf$  (wobei  $h$  das Plancksche Wirkungsquantum und  $f$  die Frequenz des Lichtes ist) erklärt, wofür er 1921 den Nobelpreis erhielt.

Während anfangs die Natur des Lichtes die wesentliche Rolle bei der Untersuchung des Effektes gespielt hat, richtet sich das Interesse mittlerweile auf die Energieverteilung der emittierten Elektronen. Es zeigt sich, dass die elektronische Struktur der Materialien einen wesentlichen Einfluss auf die Emissionscharakteristik der Elektronen hat. So lässt sich mit Hilfe der Photoelektronenspektroskopie die (Valenz-)Bandstruktur eines Festkörpers direkt abbilden. Mit modernen energie- und winkelauflösenden Spektrometern lassen sich auf diese Weise sogar die Fermioberflächen der Elektronen im Festkörper darstellen.

All diese Experimente zielten zunächst nur auf die stationären Eigenschaften wie Energieeigenwerte und Zustandsdichten der Elektronen ab. Dynamische Korrelationseffekte der Elektronen spielen bei der Beschreibung von (Einfach-)Photoemissionspektren nur eine untergeordnete Rolle.

Im Zuge der Entwicklung von kinematisch vollständigen Experimenten und Koinzi-

denztechniken in der Atomphysik wurde ein neues Fenster auf den Photoemissionsprozess geöffnet: die Doppelphotoionisation, d.h. die Emission von zwei Elektronen nach Absorption eines Photons. Hier ist die Kopplung der beiden emittierten Elektronen - sowohl im Anfangs- als auch im Endzustand - von entscheidender Bedeutung, ist doch die Emission *zweier* Elektronen durch *ein* Photon im Bild unabhängiger Teilchen verboten [BER98]. Erst die konzidente Messung der Impulse der emittierten Elektronen (und Ionen) erlaubt hier einen tieferen Zugang zu den dynamischen Eigenschaften eines Systems. Insbesondere die Doppelphotoionisation stellt hierfür eine geeignete Methode dar, da die Störung (das Photon) experimentell sehr gut definiert werden kann. Experimente dieser Art, im Allgemeinen auch als  $(\gamma, 2e)$  bezeichnet, wurden zunächst an Edelgasen (hauptsächlich Helium) sowie einfachen Molekülen durchgeführt und hatten deutliche Fortschritte im Verständnis der dynamischen Korrelationsprozesse in der Atomphysik zur Folge.

In der Photoelektronenspektroskopie an Festkörpern bzw. Oberflächen fehlte es bisher an einer ähnlich erfolgreichen Messmethode wie der COLTRIMS-Technik (Cold Target Recoils Ion Momentum Spectroscopy) bei Gasphasen-Targets. Doch gerade Festkörper sind ein vielversprechendes Target für die Koinzidenz-Elektronenspektroskopie, da viele wichtige makroskopische Effekte wie Supraleitung oder der Quantenhall-Effekt auf der Korrelation von Elektronen beruhen. Erste Experimente, die versuchten, diesen Themenkreis auch für die Spektroskopie am Festkörper zu erschließen, haben den Doppelphotoemissionsprozess an Oberflächen nachweisen können, waren aber zunächst aufgrund der experimentellen Methode auf bestimmte Emissionsgeometrien beschränkt [HER98].

Ziel dieser Arbeit war es daher zunächst, in Anlehnung an die COLTRIMS-Technik, ein Spektrometer zu entwickeln, das in der Lage ist, alle Emissionsgeometrien gleichzeitig abzudecken und so einen möglichst vollständigen Blick auf den Zwei-Elektronen-Photoemissionsprozess von Oberflächen zu erhalten. Dieser "vollständige Blick" soll ermöglichen, die verschiedenen Prozesse, die zur Emission zweier Photoelektronen führen, zu identifizieren.

Diese Arbeit gliedert sich daher in drei Hauptabschnitte. Zunächst folgt die Darstellung der theoretischen Grundlagen zur Zwei-Elektronen-Photoemission. Danach wird der experimentelle Aufbau sowie die Technik zur Analyse der Daten beschrieben. Schließlich folgt die Präsentation der mit diesem System gewonnenen Ergebnisse sowie deren Interpretation.

# Kapitel 2

## Theoretische Grundlagen

In diesem Kapitel sollen die theoretischen Konzepte, die zum Verständnis der Photoemission <sup>1</sup> von Oberflächen nötig sind, vorgestellt werden. Dabei geht es zunächst um die Konstruktion des Ausgangszustandes des Systems und die Behandlung der Wechselwirkung zwischen Photon und Elektron. Danach folgt eine allgemeine Beschreibung des Photoemissionsprozesses und der hier anzutreffenden Modelle. Schließlich wird eine Einführung in das existierende Modell zur Doppel-Photoemission gegeben.

### 2.1 Konstruktion der Anfangszustände

Eine geeignete Wahl von Ausgangszuständen ist wesentlich für die Beschreibung dynamischer Eigenschaften eines Systems. Die Schwierigkeit besteht allerdings darin, diese verlässlich zu konstruieren. Jenseits des Wasserstoff-Atoms, d.h. des Zwei-Teilchenproblems, lassen sich die Bewegungsgleichungen nicht mehr exakt für alle beteiligten Konstituenten lösen. Sinnvolle Annahmen müssen getroffen werden, um das Problem einzugrenzen. Tatsächlich ist bereits die korrekte Beschreibung des Grundzustandes eines Helium-Atoms durchaus schwierig, obwohl es sich "nur" um zwei Elektronen und einen Kern handelt. Daher scheint es zunächst fast aussichtslos, den Grundzustand eines Festkörpers zu beschreiben, handelt es sich doch hier typischerweise um ein Problem in der Größenordnung von  $10^{23}$  Elektronen und ebenso vielen Kernen. Glücklicherweise hat die Theoretische Physik an dieser Stelle wichtige Methoden geschaffen, die dieses Problem gut bewältigen können. Hilfreich ist hier insbesondere die extrem große Zahl der Elektronen, da so eine Mittelung über

---

<sup>1</sup>Im Allgemeinen bezeichnet man die Emission von Photoelektronen von einem freien Atom als *Ionisation*, da tatsächlich ein freies Ion zurückbleibt. Die Emission von Elektronen von einer Festkörper-Oberfläche hingegen wird als *Photoemission* bezeichnet, da der Festkörper auch nach Entnahme mehrerer Elektronen - zumindest auf einer genügend langen Zeitskala - praktisch neutral bleibt.

viele Elektronen gerechtfertigt werden kann. Einige der wichtigen Näherungen und Methoden sollen in diesem Abschnitt vorgestellt werden<sup>2</sup>.

Die Beschreibung jedes (nichtrelativistischen) stationären quantenmechanischen Systems hat stets die zeitunabhängige Schrödingergleichung als Ausgangsbasis :

$$\hat{H}|\Psi\rangle = E|\Psi\rangle \quad (2.1)$$

Der Hamilton-Operator  $\hat{H}$  enthält dabei sämtliche Beiträge der kinetischen und potentiellen Energien der einzelnen beteiligten Teilchen, d.h. Kerne und Elektronen. Ausgeschrieben besteht das Problem damit in der Lösung der Schrödingergleichung mit dem Hamilton-Operator

$$\hat{H} = \sum_{j=1}^{N_n} \frac{\hat{p}_j^2}{2M_j} + \sum_{k=1}^{N_e} \frac{\hat{p}_k^2}{2M_k} + \frac{1}{2} \sum_{j \neq i}^{N_n} \frac{e^2 Z_i Z_j}{|\vec{R}_i - \vec{R}_j|} + \frac{1}{2} \sum_{k \neq l}^{N_e} \frac{e^2}{|\vec{r}_k - \vec{r}_l|} - \sum_{j=1}^{N_n} \sum_{k=1}^{N_e} \frac{e^2 Z_j}{|\vec{R}_j - \vec{r}_k|} \quad (2.2)$$

Dabei sind  $\vec{R}$  und  $\vec{r}$  die Ortskoordinaten der Kerne und Elektronen,  $Z$  die Kernladungszahl und  $e$  die Elementarladung. Die Summation läuft über die Gesamtzahl der Elektronen  $N_e$  und der Kerne  $N_n$ . Die einzelnen Terme von Gleichung (2.2) stehen damit (von links nach rechts) für die kinetische Energie der Kerne, kinetische Energie der Elektronen, Kern-Kern-Wechselwirkung, Elektron-Elektron-Wechselwirkung und Kern-Elektron-Wechselwirkung. Sicherlich ist dies eine etwas zu weit gefasste Beschreibung des Systems. Hier lassen sich bereits deutliche Vereinfachungen durchführen. Da die Masse der Kerne deutlich größer ist als die der Elektronen  $m_{Kern}/m_e \geq 1830$ , ist die Schwerpunktsbewegung der Kerne zu vernachlässigen. Solange im System die Kopplung der Elektronen an Phononen (Quanten der Kernschwingung) keine wesentliche Rolle spielt, können daher die Kern-Koordinaten festgehalten ("eingefroren") werden (dies ist beispielsweise bei Systemen, die Supraleitung aufweisen, nicht mehr gegeben). Diese Näherung wird im Allgemeinen als Born-Oppenheimer-Näherung bezeichnet [BOR27]. Eine weitere wichtige Näherung stellt die Hartree- bzw. Hartree-Fock-Näherung dar [HAR28, SLA30, FOC30]. Diese bezieht sich auf die Struktur der Wellenfunktion selbst. Hier wird angenommen, dass sich die Vielteilchen-Wellenfunktion  $\Psi(x_1, x_2, \dots, x_n)$  als Produkt von Einteilchen-Wellenfunktionen  $\psi_i(x_j)$  schreiben lässt. Dem Pauli-Prinzip wird dabei dahingehend Rechnung getragen, dass die Gesamtwellenfunktion durch Konstruktion über die Slater-Determinante eine total antisymmetrische Form erhält :

<sup>2</sup>Eine sehr übersichtliche Darstellung dieser Methoden findet sich in [KÖD03]



$$\Psi = \frac{1}{\sqrt{N!}} \begin{vmatrix} \psi_1(x_1) & \psi_1(x_2) & \cdots & \psi_1(x_n) \\ \psi_2(x_1) & \psi_2(x_2) & & \vdots \\ \vdots & & \ddots & \vdots \\ \psi_n(x_1) & \cdots & \cdots & \psi_n(x_n) \end{vmatrix} \quad (2.3)$$

Die jeweiligen Einteilchen-Wellenfunktionen  $\psi_i(x_j)$  erfüllen dabei eine Schrödinger-Gleichung, die das effektive Potential enthält, welches die übrigen Elektronen erzeugen:

$$\left[ \frac{\hat{p}^2}{2m} + V_{Kern} + \Phi_i \right] \psi_i(\vec{r}) = \epsilon_i \psi_i(\vec{r}) \quad (2.4)$$

Das Potential  $\Phi_i$  teilt sich dabei in den Hartree-Term  $\Phi_{Hi}$  sowie den Austauschterm  $\Phi_{xi}$ , der durch die Symmetrie der Wellenfunktion entsteht. Der Hartree-Term ergibt sich als Lösung der Poisson-Gleichung

$$\nabla^2 \Phi_{Hi} = -4\pi \sum_{j=1, \neq i}^N |\phi_j|^2 \quad (2.5)$$

Um eine Lösung der Gleichung zu finden, wird zunächst ein Potential angenommen, mit dem eine erste Wellenfunktion konstruiert wird. Dieses dient wiederum als Ausgangsbasis für die Berechnung eines neuen Potentials. Durch mehrere Iterationsschritte ergibt sich schließlich ein selbst-konsistentes Feld ("self-consistent field"), d.h. die Wellenfunktionen erzeugen genau das Potential, das die Wellenfunktion ergibt. Da das Hartree-Fock-Verfahren häufig viel mehr Informationen liefert, als tatsächlich benötigt wird (z.B. lediglich die Grundzustandsenergien), wird ein weiteres Verfahren verwendet, das wesentlich weniger zeit- und rechenaufwändig ist. Dieses Verfahren wird als Dichte-Funktional-Theorie bezeichnet. Grundlage der Dichte-Funktional-Theorie sind die Theoreme von Hohenberg und Kohn [HOH64]. Danach ist die Grundzustandsenergie eines Systems ein (eindeutiges) Funktional der Elektronendichte. Diese wiederum lässt sich aus einem Variationsverfahren ermitteln. Auf dieser Grundlage wurden von Kohn und Sham 1965 die Gleichungen

$$\left\{ \frac{\hat{p}^2}{2m} + V_{eff}[\rho(\vec{r})] \right\} \phi_i = \epsilon_i \phi_i \quad (2.6)$$

aufgestellt, wobei

$$V_{eff}(\vec{r}) = \int_V \frac{\rho(\vec{r}')}{|\vec{r} - \vec{r}'|} + V_{Kern}(\vec{r}) + V_{xc}[\rho(\vec{r})] \quad (2.7)$$

und

$$\rho(\vec{r}) = \sum_{\epsilon \leq \epsilon_f} |\phi_i(\vec{r})|^2 \quad (2.8)$$

Die Summierung wird über alle besetzten Zustände durchgeführt. Das Potential  $V_{xc}[\rho(\vec{r})]$  besteht hier wiederum aus einem Austausch-  $V_x$  und einem Korrelationsterm  $V_c$ . Für  $V_x$  wird häufig die Lokale Dichte Näherung ("local density approximation", LDA) angewandt. Hierbei wird angenommen, dass die gesuchte Austausch-Wechselwirkung des Elektrons im (inhomogenen) Elektronengas der eines Elektrons im homogenen Elektronengas mit einer Dichte wie am Punkt  $\vec{r}$  äquivalent ist. Auch diese Gleichung muss iterativ und selbst-konsistent gelöst werden. Auf diese Weise lässt sich das Vielteilchen-Problem auf ein effektives Einteilchen-Problem reduzieren.

Die Anwendung auf einen unendlich ausgedehnten Festkörper mit einer periodischen Gitter-Struktur bringt weitere Vereinfachungen mit sich. Aufgrund der Translationsinvarianz des Gitter-Potentials  $V(\vec{r}) = V(\vec{r} + \vec{T})$  sind nur Lösungen einer bestimmten Form für die Schrödingergleichung möglich. Die Lösungen der Wellengleichung sind nämlich Eigenfunktionen des Translationsoperators sowie der Schrödingergleichung:

$$P(\vec{T})\psi_k(\vec{r}) = \psi_k(\vec{r} + \vec{T}) = e^{i\vec{k}\vec{T}}\psi_k(\vec{r}) \quad (2.9)$$

und

$$\left[\frac{\hat{p}^2}{2m} + V(\vec{r})\right]\psi_k(\vec{r}) = E(\vec{k})\psi_k(\vec{r}) \quad (2.10)$$

Lösungen dieses Typs werden allgemein als Blochfunktionen bezeichnet [BLO28, KIT99]. Durch diese Eigenschaft wird das Problem auf die Lösung innerhalb des Volumens einer Elementarzelle reduziert.  $E(\vec{k})$  ist eine Mannigfaltigkeit und wird als die Bandstruktur bezeichnet. Da nun  $\psi_k(\vec{r})$  und  $E(\vec{k})$  als Funktion von  $\vec{k}$  die gleiche Periodizität wie das Gitter besitzen, reicht es aus, die Eigenschaften des Systems nur in der ersten Brillouin-Zone zu betrachten.

Zur Modellierung des Potentials einer Einheitszelle existieren verschiedene Methoden, von denen allerdings hier nur eine vorgestellt werden soll, da sie als Ausgangsbasis für die spätere Berechnung der Ausgangszustände ebenfalls von Bedeutung ist. Die Korringa-Kohn-Rostoker-Methode (KKR) [KOR54, KOH54] beruht auf der Beschreibung des Gitter-Potentials durch einzelne, sich nicht überlappende Kugeln. Im Inneren der Kugel wird das Potential als radialsymmetrisch angenommen, während es im Außenbereich einen konstanten Wert besitzt (siehe auch Abbildung 2.3) :

$$V(\vec{r}) = \begin{cases} V(r) & r < r_0 \\ V_0 & r > r_0 \end{cases}$$

Aufgrund der Ähnlichkeit des Potentials mit einem Muffin-Blech wird dieser Potentialverlauf als "muffin-tin-potential" bezeichnet, der flache Bereich zwischen den Kugeln als "muffin-tin-zero".

## 2.2 Beschreibung der Photon-Elektron-Wechselwirkung

Grundlage der Beschreibung eines zeitabhängigen quantenmechanischen Systems ist stets die zeitabhängige Schrödingergleichung

$$\hat{H}\Psi = i\hbar \frac{\partial \Psi}{\partial t}, \tag{2.11}$$

wobei  $\hat{H}$  der Hamilton-Operator des Systems ist, der durch die Quantisierungsvorschrift aus der klassischen Hamilton-Funktion  $H$  hervorgegangen ist. Für ein elektrisch geladenes Teilchen mit Ladung  $e$  und Masse  $m$  lautet diese

$$H = \frac{1}{2m} (\vec{p} - e\vec{A})^2 + V(\vec{r}). \tag{2.12}$$

Der kanonische Impuls  $\vec{p}$  wurde hier durch  $\vec{p} - e\vec{A}$  ersetzt, was als *minimale Kopplung* bezeichnet wird (siehe z.B. [GRE4]).  $\vec{A}$  ist das Vektorpotential, das das elektromagnetische Feld beschreibt und sich aus den Maxwell-Gleichungen konstruieren lässt [GRE3]. Üblicherweise wird dabei die Eichtransformation  $\nabla \cdot \vec{A} = 0$  - die *Coulomb-Eichung* - verwendet.

Durch die Quantisierungsvorschrift wird aus der Hamilton-Funktion durch Ersetzen von  $\vec{p}$  mit dem Operator  $\hat{p} = i\hbar \nabla$  der Hamilton-Operator  $\hat{H}$  :

$$\hat{H} = -\frac{1}{2m} (\hat{p} - e\vec{A})^2 + V(\vec{r}). \tag{2.13}$$

Das Ausmultiplizieren der Klammer führt zu dem Ergebnis:

$$\hat{H} = \frac{1}{2m} (\hat{p}^2 - \hat{p}e\vec{A} - e\vec{A}\hat{p} + e^2\vec{A}^2) + V(\vec{r}) \tag{2.14}$$

An dieser Stelle wird die erste Näherung des Problems durchgeführt. Da die Wechselwirkung des Teilchen mit einzelnen Photonen betrachtet werden soll, ist die Stärke

des Vektorpotentials relativ gering. Aus diesem Grund werden Terme mit  $\vec{A}^2$  vernachlässigt. Da ferner auch die oben beschriebene *Coulomb*-Eichung ( $\nabla \vec{A} = 0$ ) gilt, ist der Term  $\hat{p}\vec{A} \sim \nabla \vec{A} = 0$ . Der Hamilton-Operator vereinfacht sich so zu

$$\hat{H} = \frac{\hat{p}^2}{2m} + V(\vec{r}) - \frac{e}{m}\vec{A}\hat{p} = \hat{H}_0 + \hat{H}_{WW} \quad (2.15)$$

Der Hamilton-Operator lässt sich so in einen ungestörten Teil  $\hat{H}_0$  zerlegen, der das System ohne Strahlungsfeld beschreibt, sowie einen Anteil  $\hat{H}_{WW}$ , der die Störung durch das Photon enthält. Diese kann nun nach der Störungstheorie behandelt werden. Tatsächlich ist man allerdings nicht an den "gestörten" Energieeigenwerten interessiert, d.h. dem Erwartungswert der Schrödinger-Gleichung, sondern der Wahrscheinlichkeit des Übergangs des Systems von einem Anfangszustand  $|\Psi_i\rangle$  in einen Ausgangszustand  $|\Psi_f\rangle$ . Hierfür liefert die Störungstheorie in 1.Ordnung die Übergangswahrscheinlichkeit pro Zeiteinheit

$$w_{i \rightarrow f} = \frac{2\pi}{\hbar} |\langle \Psi_f | \hat{H}_{WW} | \Psi_i \rangle|^2 \rho(E) \quad (2.16)$$

Diese wichtige Gleichung ist auch unter dem Namen "Fermis Goldene Regel" bekannt [GRE4]. Die Wahrscheinlichkeit, dass das System einen Übergang vom Zustand  $|\Psi_i\rangle$  in den Zustand  $|\Psi_f\rangle$  vollzieht, ist damit abhängig vom Matrix-Element des Störoperators mit dem jeweiligen Anfangs- und Endzustand. Bei geeigneter Wahl der Zustände stellt dies bereits die vollständige Lösung des Problems dar.

Zusätzlich werden noch weitere Näherungen durchgeführt, die die Auswertung des Matrix-Elementes vereinfachen. Üblicherweise kann für die Form des Vektorpotentials eine ebene Welle angenommen werden :

$$\vec{A}(\vec{r}, t) = \vec{A}_0 e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}} \quad (2.17)$$

Dieser Ausdruck kann in eine Potenzreihe entwickelt werden :

$$\vec{A}(\vec{r}, t) = \vec{A}_0 e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}} = \vec{A}_0 \left( 1 + i\vec{k} \cdot \vec{r} - \frac{1}{2}(\vec{k} \cdot \vec{r})^2 + \dots \right) \quad (2.18)$$

Von den Entwicklungstermen ist oft nur der erste von Interesse, da die höheren Ordnungen vernachlässigbar sind. Genauer betrachtet liegt  $|\vec{r}|$  stets in der Größenordnung von 1 a.u.<sup>3</sup>. Die Größenordnung von  $|\vec{k}|$  hingegen liegt für Photonen im hier zu betrachtenden Energiebereich von  $\hbar\omega \leq 100$  eV bei  $|\vec{k}| \approx 0.027$  a.u. . Damit gilt  $|\vec{k}||\vec{r}| \ll 1$ .

<sup>3</sup>1 atomare Einheit Länge entspricht dem Bohrschen Radius von  $0.529 \times 10^{-10}$  m, 1 atomare Einheit Impuls dem Impuls des Elektrons auf der 1. Bohrschen Bahn von  $1.98 \times 10^{-24}$  kgms<sup>-1</sup>.

Diese Näherung wird in der Literatur im Allgemeinen als *Dipolnäherung* bezeichnet. Anschaulich betrachtet bedeutet dies, dass der Impuls des Photons gegenüber dem der Elektronen im System zu vernachlässigen ist und nur Übergänge mit  $\Delta L = \pm 1$  erfolgen.

## 2.3 Grundlagen der Photoemission von Oberflächen

Der Photo-Effekt ist ein grundlegendes physikalisches Phänomen, das in den verschiedensten Bereichen der Physik eine Rolle spielt. Insbesondere in der Atom-, Festkörper- bzw. Oberflächenphysik wird durch die Spektroskopie von Photoelektronen ein Zugang zu den Bindungsenergien bzw. Energieeigenwerten eines Systems erreicht. Da die Energie des eingestrahlten Photons  $E_{\text{photon}}$  im Allgemeinen bekannt ist, kann aus der kinetischen Energie  $E_{\text{kin}}$  der ausgelösten Photoelektronen direkt auf die Zustände des gebundenen Systems  $E_b$  zurück geschlossen werden. Die zugrunde liegende Gleichung ist dabei

$$E_{\text{kin}} = E_{\text{photon}} - E_b. \quad (2.19)$$

Wichtig zu beachten ist an dieser Stelle, dass sich Bindungsenergien im Festkörper (bei Metallen) stets auf das Fermi-Niveau beziehen, d.h. den höchsten besetzten Zustand, während bei der Spektroskopie an freien Atomen und Molekülen das Vakuum-Level als Referenz verwendet wird. Die tatsächlich beobachtbare kinetische Energie der Elektronen außerhalb des Festkörpers ist daher nochmal um die Austrittsarbeit  $W_\phi$  (engl. "work function") erniedrigt. Die Gleichung lautet daher

$$E_{\text{kin}} = E_{\text{photon}} - E_b - W_\phi. \quad (2.20)$$

Für die Beschreibung der gebundenen Elektronenzustände im Festkörper sind allerdings nicht nur deren Bindungsenergien entscheidend, sondern auch deren Impuls bzw. Wellenzahlvektor  $k$ . Die Abhängigkeit der Bindungsenergie vom Wellenzahlvektor wird dabei als Bandstruktur bezeichnet. Die vollständige Formel für die kinetische Energie der Photoelektronen lautet daher

$$E_{\text{kin}} = E_{\text{photon}} - E_b(k) - W_\phi. \quad (2.21)$$

Für ein freies Elektronengas lässt sich die Abhängigkeit der Bindungsenergie vom Wellenzahlvektor leicht angeben :

$$E_b = E_0 - \frac{\hbar^2 k^2}{2m} \quad (2.22)$$

wobei  $E_0$  das untere Ende der Valenzbandes bezeichnet (siehe auch Abb. 2.3). Im Allgemeinen ist die Abhängigkeit der Bindungsenergien vom Wellenvektor jedoch wesentlich komplizierter (siehe z.B. Abb. 5.3 rechts), da die Kristallstruktur des Festkörpers die Elektronenbewegung wesentlich beeinflusst. Die Energieverteilung der Elektronen wird damit stark winkelabhängig, wobei die Winkelabhängigkeit die fundamentalen Symmetrien des Kristalls widerspiegelt.

Tatsächlich ist es allerdings nicht möglich, Photoemission an einem absolut freien Elektronengas zu beobachten. Dies folgt aus der ebenfalls zu beachtenden Impulserhaltung. Der Impuls  $\kappa$  des Photons im hier zu betrachtenden UPS<sup>4</sup> Energiebereich ( $< 100$  eV) ist stets deutlich kleiner als der eines Elektrons vergleichbarer Energie. In einem freien Elektronengas würde gelten ( $i, f$  stehen jeweils für Anfangs- und Endzustand) [HÜF95]:

$$E_f - E_i = \frac{\hbar^2}{2m} (K_f^2 - k_i^2) \quad (2.23)$$

wobei  $K_f = k_i + \kappa$  und  $\kappa$  der Wellenzahlvektor des Photons ist. Dies wiederum verwendet in 2.23 ergibt

$$\begin{aligned} E_f - E_i &= \frac{\hbar^2}{2m} (2|K_f||\kappa| \cos(K_f, \kappa) - \kappa^2) \\ &= E_f \frac{\kappa}{K_f} \left( 2 \cos(K_f, \kappa) - \frac{\kappa}{K_f} \right) \ll \hbar\omega \end{aligned} \quad (2.24)$$

da  $\kappa/K_f \ll 1$  und damit eine optische Anregung nicht möglich ist. Während bei einem freien Atom, das zurückbleibende Ion den fehlenden (Rückstoß-)Impuls aufnimmt, geschieht dies bei der Photoemission am Festkörper durch das Gitter. Aus einer elementaren Betrachtung (siehe z.B. [KIT99]) folgt, dass der Streuvektor (Impulsübertrag) nur diskrete Werte betragen kann und identisch einem reziproken Gittervektor  $\vec{G}$  ist. Der Wellenzahlvektor im Endzustand ist daher  $\vec{K}_f = \vec{k}_i + \vec{G}$ . Aus dieser Tatsache ergeben sich einige Konsequenzen für die beobachtbaren Zustände bei der Photoemission. Abbildung 2.1 gibt einen Überblick für ein "normal emission"-Experiment (das Photoelektron wird senkrecht zur Oberfläche nachgewiesen) von einem kubischen Gitter mit Gitterabstand  $a$ . Der entsprechende reziproke Gittervektor ist

---

<sup>4</sup>UPS: Ultraviolett Photoelectron Spectroscopy

$$\vec{G} = (2\pi/a, 0, 0) \quad (2.25)$$

Hier wurde für die Bandstruktur ein Elektronengas mit nur schwacher Wechselwirkung mit dem Gitter gewählt (*"nearly free electron gas"*). Da der Energiebetrag  $\hbar\omega$  fest vorgegeben ist, ergeben sich nur wenige Übergänge, die erlaubt sind. Im vollständigen Zonenschema liegt der Endzustand um  $G$  nach rechts versetzt, sowie um  $\hbar\omega$  nach oben. Im reduzierten Zonenschema (d.h. die Bandstruktur wird wieder auf die erste Brillouin-Zone zurück gefaltet) entspricht dies einem vertikalen Übergang. Da zu meist nur wenige Übergänge für eine gegebene Photonen-Energie möglich sind, kann so durch Verändern der Energie in einem *normal-emission*-Experiment die Bandstruktur vollständig abgebildet werden.

In der Interpretation und theoretischen Beschreibung von winkelaufgelösten Photoemissionsspektren existieren zwei wesentliche Modelle, die häufig zur Anwendung kommen. Zum einen wird das - historische gewachsene - Drei-Stufen-Modell der Photoemission verwendet, das die beobachteten Effekte auf einer eher phänomenologischen Basis untersucht. Dieses ist besonders hilfreich bei der Interpretation von experimentellen Daten. Umgekehrt hat sich für die moderne theoretische Beschreibung das Ein-Stufen-Modell durchgesetzt, das allerdings weniger Anschaulichkeit besitzt. Hier soll zunächst das Drei-Stufen-Modell vorgestellt werden, da es die wesentlichen Effekte gut veranschaulicht. Anschließend wird aber auch auf das Ein-Stufen-Modell eingegangen, da es auch die Basis für die Rechnungen zur Doppel-Photo-Emission darstellt.

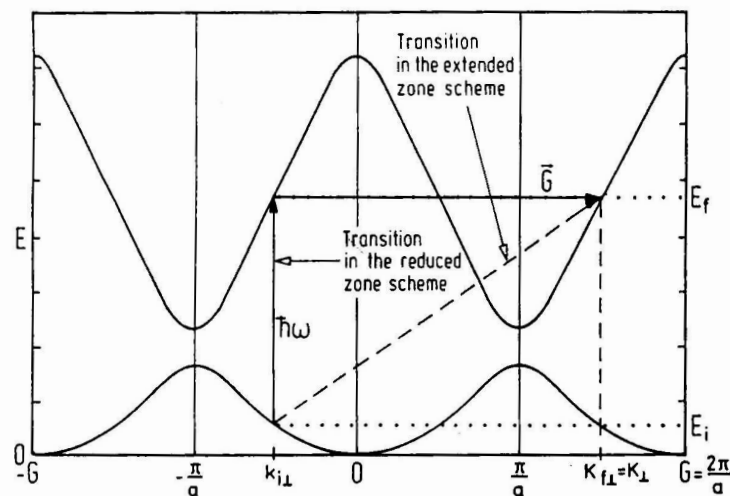


Abbildung 2.1: Schematische Darstellung des Photoemissionsprozesses im vollständigen bzw. reduzierten Zonenschema (entnommen aus [HÜF95]).

### 2.3.1 Das Drei-Stufen-Modell der Photoemission

Rein phänomenologisch betrachtet ließe sich die Emission eines Photoelektrons ins Vakuum in drei getrennte Teilabschnitte untergliedern. Diese Betrachtungsweise wird daher in der Literatur als das "Drei-Stufen-Modell" bezeichnet (Berglund und Spicer 1964 [BER64]). Demnach besteht ein Photoemissionsprozess zunächst in der Anregung eines Elektrons durch das Photon, dem anschließenden Transport durch den Festkörper zur Oberfläche, sowie schließlich dem Überwinden der Oberflächenbarriere (siehe Abb. 2.2).

#### Optische Anregung

Der erste Schritt im Drei-Stufen-Modell beschreibt die Anregung des Elektrons aus einem Anfangszustand  $|E_i, \vec{k}_i\rangle$  in einen Endzustand  $|E_f, \vec{k}_f\rangle$ , jeweils charakterisiert durch die Energie  $E_{i,f}$  und den Wellenzahlvektor  $\vec{k}_{\parallel i,f}$ . Wie bereits im vorigen Abschnitt beschrieben, wird die Übergangswahrscheinlichkeit mit Fermis Goldener Regel (2.16) berechnet. Der Anfangszustand ist eine Blochwelle, die sich aus der Dichte-Funktional-Theorie bzw. der KKR-Streumethode gewinnen lässt. Für die Endzustände werden zunächst ebenfalls *bulk*-Zustände gewählt, d.h. Oberflächeneffekte werden hier noch nicht berücksichtigt. Für die Interpretation von experimentellen Daten kann an dieser Stelle oft der Ansatz einer freien ebenen Welle gewählt werden, wenn die Anregungsenergie deutlich über dem Fermi-Niveau liegt ("free-electron-final-state").

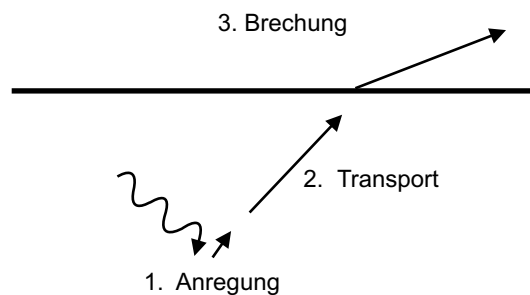


Abbildung 2.2: Schematische Darstellung der Photoemission von einer Festkörper-Oberfläche : 1. optische Anregung des Elektrons durch das Photon, 2. Transport zur Oberfläche, 3. Brechung der Trajektorie an der Oberflächen-Barriere.



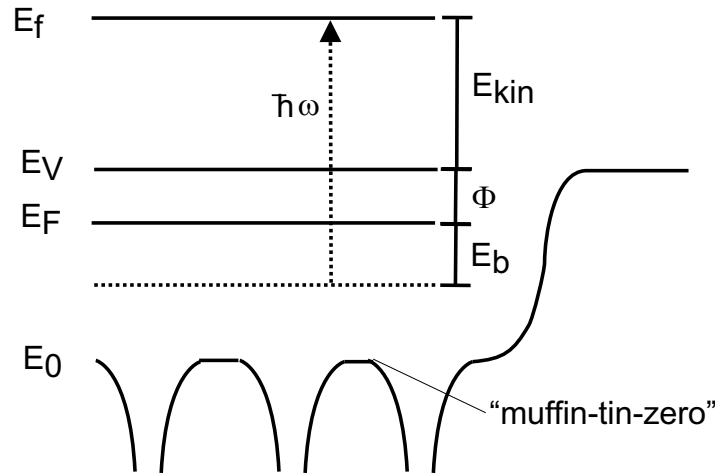


Abbildung 2.3: Die für die Photoemission von einer Oberfläche relevanten Energien.  $E_0$  bezeichnet das untere Ende des Valenzbandes (auch "muffin-tin-zero" genannt),  $E_F$  ist das Fermi-Niveau (höchster besetzter Zustand),  $E_V$  beschreibt die Lage des Vakuum-Levels, während der energetische Endzustand des Elektrons mit  $E_f$  bezeichnet wird. Die Differenz  $E_V - E_F$  wird Austrittsarbeit ( $\Phi$ ) genannt, die Differenz  $E_f - E_V$  ist die kinetische Energie des Elektrons. Die Bindungsenergie des Zustandes, aus dem emittiert wurde, ergibt sich aus  $E_b = \hbar\omega - E_{kin} - \Phi$ .

### Transport zur Oberfläche

Anschließend folgt der Transport des Elektrons zur Oberfläche, wobei elastische und inelastische Stöße mit dem Gitter und dem Elektronengas auftreten. Im interessierenden Energiebereich sind allerdings hauptsächlich Elektron-Elektron-Stöße zu betrachten. Der Verlust von Elektronen auf dem Weg zur Oberfläche wird so mit Hilfe einer mittleren freien Weglänge  $\lambda(E, k)$  beschrieben [HÜF95], wobei angenommen wird, dass die Stoßfrequenz  $\tau$  lediglich eine Funktion der Energie ist :

$$\lambda(E, k) = \tau v_g = \frac{\tau dE}{\hbar dk} \quad (2.26)$$

$v_g$  beschreibt die Gruppengeschwindigkeit im Endzustand. Mit diesem Ausdruck für  $\lambda(E, k)$  lässt sich mit rein klassischer Behandlung ein Koeffizient herleiten [BER64], der den Anteil der Elektronen, die die Oberfläche erreichen, beschreibt :

$$d(E, k) = \frac{\alpha\lambda}{1 + \alpha\lambda} \quad (2.27)$$

wobei  $\alpha$  der Absorptionskoeffizient der Strahlung im Material ist (typischerweise ist  $\alpha^{-1} \sim 100 - 1000$  in dem zu betrachtenden Energiebereich).

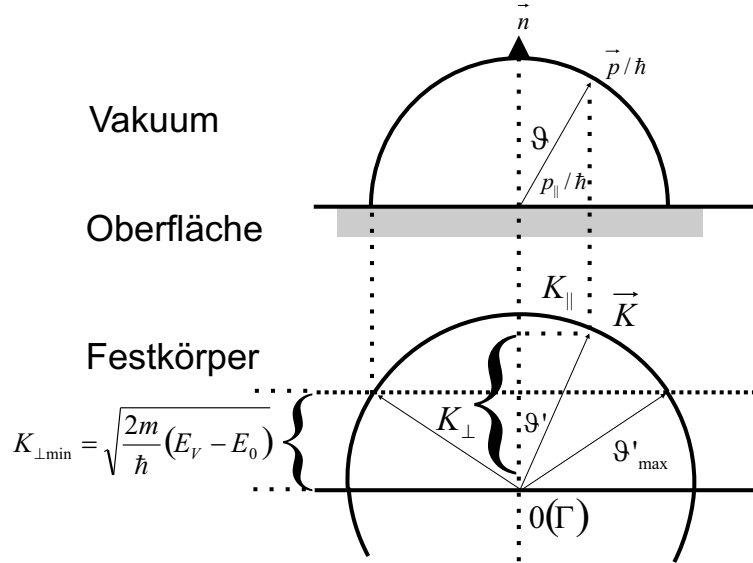


Abbildung 2.4: Geometrische Konstruktion des Fluchtkegels (*escape cone*) für das einfache Modell der Oberfläche. Von der verfügbaren Impuls-Kugel mit Radius  $|\vec{K}|$  wird der Anteil  $\sqrt{2m/\hbar^2}(E_V - E_0)$  abgeschnitten. Der verbliebene Winkelbereich definiert den Öffnungswinkel des Fluchtkegels.

### Austritt ins Vakuum

Der überlebende Anteil der Elektronen muss schließlich noch die Oberflächenbarriere, d.h. den Übergang zum Vakuum, überwinden. Das Verhalten eines Elektrons ist an dieser Stelle analog zur Brechung eines Lichtstrahles beim Übergang in ein Medium mit optisch geringerem Brechungsindex (*Snellius-Gesetz*). Diese Betrachtung stellt allerdings eine deutliche Vereinfachung dar, da der Übergang zum Vakuum hier als eine einfache Potentialstufe angenommen wird.

Die durch das Photon erzeugten Elektronen bewegen sich zwar mit  $E = E_i + \hbar\omega$  (quasi-)frei durch den Festkörper, befinden sich allerdings noch immer in einem Potential-Topf der Tiefe  $V = E_{Fermi} + W_\phi = E_{Vakuum} - E_0$ . Um diese Barriere überwinden zu können, muss die Energie der Elektronen die Bedingung

$$\frac{\hbar^2}{2m} K_{\parallel}^2 \geq E_{Vakuum} - E_0 \quad (2.28)$$

erfüllen, d.h. der Anteil der kinetischen Energie an der Bewegung entlang der Achse der Oberflächen-Normalen muss die Potentialschwelle überwinden können. Elektronen, die diese Bedingung nicht erfüllen, erfahren an der Grenzschicht eine Totalreflektion und können den Festkörper nicht verlassen (siehe hierzu Abbildung 2.4). Wichtig bei der Betrachtung des Übergangs zum Vakuum ist, dass die Barriere lediglich auf die senkrechte Komponente ( $z$  Richtung) der Bewegung des Elektrons wirkt (es gilt ja  $\partial V/\partial x = \partial V/\partial y = 0$  und nur  $\partial V/\partial z \neq 0$ ). Die Komponenten parallel zu Oberfläche bleiben erhalten. Durch diese Wechselwirkung mit der Oberfläche verändert sich der Emissionswinkel  $\vartheta$  des Elektrons (Wellenvektor  $\vec{p}/\hbar$ ) relativ zum Winkel  $\vartheta'$  innerhalb des Festkörpers (Wellenvektor  $\vec{K}'$ ). Es gilt (siehe auch Abbildung 2.4)

$$p_{\parallel}/\hbar = \sin \vartheta \sqrt{\frac{2m}{\hbar^2}(E_f - E_0)} = \sin \vartheta' \sqrt{\frac{2m}{\hbar^2}(E_f - E_V)} = K'_{\parallel} \quad (2.29)$$

Anschaulich lässt sich die Brechung an der Oberfläche auch wie in Abbildung 2.4 verstehen, indem von der verfügbaren Impulskugel der Anteil  $\sqrt{\frac{2m}{\hbar^2}(E_f - E_0)}$  abgeschnitten wird. Daraus folgt des weiteren die Existenz eines kritischen Winkels, unter dem Elektronen einer festen Energie  $E_f - E_0$  im Festkörper diesen noch verlassen können. Für den kritischen Winkel gilt  $\sin \vartheta = 1$  und damit

$$1 = \sqrt{\frac{E_f - E_0}{E_f - E_V}} \sin \vartheta_{krit} \Rightarrow \sin \vartheta_{krit} = \sqrt{\frac{E_f - E_V}{E_f - E_0}} \quad (2.30)$$

Der Winkelbereich  $0 \leq \vartheta \leq \vartheta_{krit}$  bildet einen Kegel, für den die Emission ins Vakuum bei einer festen Energie möglich ist. Er wird daher auch "Flucht-Kegel" (*escape cone*) genannt. Dieser "escape cone" hat einen wichtigen Einfluss auch auf die später zu betrachtende Emission zweier Elektronen. Da der zugängliche Raumwinkel stark von der Elektronenenergie abhängig ist, hat dies einen deutlichen Einfluss auf die Interpretation von Koinzidenz-Spektren.

Insgesamt kann aus diesen drei Teilabschnitten ein Ausdruck für den Photoelektronenstrom aufgestellt werden :

$$\begin{aligned} N(E, \vec{K}_{\parallel}, \hbar\omega) &\propto \sum_{f,i} |M_{fi}(\vec{k}_f, \vec{k}_i)|^2 d(E_f, \vec{k}_f) |T(E_f, \vec{K}_{\parallel})|^2 \\ &\times \delta(E_f(\vec{k}_f) - E_i(\vec{k}_i) - \hbar\omega) \delta(E - [E_f(\vec{k}_f) - \Phi]) \\ &\times \delta(\vec{k}_i + \vec{G} - \vec{K}) \delta(\vec{K}_{\parallel} - \vec{p}_{\parallel}(\theta, \phi)/\hbar) \end{aligned} \quad (2.31)$$

Hierbei beschreiben die drei Ausdrücke in der ersten Zeile nacheinander die Anregung ( $M_{f,i}$  Matrixelement zwischen Anfangs- und Endzustand), Verluste durch inelastische Stöße und Transmission durch die Oberfläche. Die Delta-Funktionen in der zweiten Zeile stellen die Energieerhaltung bei der Photoabsorption dar, während die dritte Zeile die Impulserhaltung sicher stellt. Dabei beschreibt die erste Delta-Funktion die Impulserhaltung innerhalb des Festkörpers bei der Absorption des Photons. Die zweite dagegen die Impulserhaltung beim Überwinden der Oberflächenbarriere, wobei lediglich die Komponenten parallel zur Oberfläche erhalten bleiben.

### 2.3.2 Das Einstufen-Modell der Photoemission

Das Drei-Stufen-Modell ist sehr hilfreich beim Verständnis der wesentlichen Eigenschaften von Photoemissions-Spektren, allerdings werden in diesem Modell viele Vereinfachungen vorgenommen, die zum Teil wichtige Effekte vernachlässigen. Diese betreffen beispielsweise Selbstenergie-Korrekturen, die Interferenz von Emission aus *bulk*- und Oberflächen-Zuständen, die Interferenz der Transportwege des Elektrons bei Verlustprozessen oder auch die vereinfachte Beschreibung der Oberfläche. Streng genommen verletzt das Drei-Stufen-Modell sogar die Unschärfe-Relation [CAR78], da ein "exakter" Ort unter der Oberfläche für die Anregung des Elektrons angenommen wird. Ebenso wird angenommen, dass inelastisch gestreute Elektronen ihren Energieverlust erst nach der optischen Anregung erfahren [HÜF95, CAR78].

Um auch diese Effekte adäquat zu beschreiben, wurden andere theoretische Ansätze entwickelt. Der gesamte Photoemissionsprozess wird dabei als ein Streuvorgang angesehen, bei dem ein einfallendes (optisches) Wellenpaket eine Elektronenwelle aus dem Festkörper hervorruft [MAH70]. Tatsächlich kann dabei direkt von Gleichung (2.16) ausgegangen werden. Der Unterschied ist allerdings, dass der Endzustand geschickter gewählt werden muss : die Anregung des Elektrons geschieht nicht mehr in einem weiteren quasi-freien Bloch-Zustand, sondern in einen gedämpften Zustand (d.h. endlicher Lebensdauer), dessen Wellenfunktion an eine ebene Welle außerhalb des Festkörpers angepasst werden muss. Auf diese Weise lassen sich Streu- und Oberflächen-Effekte in die Berechnungen mit einbauen, ohne dass die Kohärenz der Welle in den verschiedenen Abschnitten der Berechnung verloren geht. Die erste vollständige Ein-Stufen-Theorie stammt von Pendry [PEN76]. Zum Auffinden des passenden End-Zustandes, der insbesondere den Übergang der Welle vom Festkörper zum Vakuum gut beschreibt, wird häufig der inverse LEED-Formalismus verwendet (LEED : "low energy electron diffraction"). Grundlage dieses Formalismus ist die Umkehrung eines LEED-Vorganges : Ein

Elektronenstrahl trifft mit der Geschwindigkeit  $-v$  aus dem Vakuum auf die Oberfläche auf, wobei ein Teil der Intensität reflektiert wird und ein Teil in den Festkörper eintritt. Um zu einem Photoemissionprozess zu gelangen, wird der reflektierte Anteil  $= 0$  gesetzt sowie die Bewegungsrichtung der Welle umgedreht [HÜF95]. Dies entspricht der Emission eines Elektrons aus dem Festkörper in das Vakuum. Da das einfallende Elektron nicht zwangsläufig in einen erlaubten Band-Zustand passt, handelt es sich um einen gedämpften Zustand. Die Dämpfung wird durch eine Erweiterung des Potentials im Festkörper um einen komplexen Anteil erreicht (optisches Potential)

$$V_0 = V_{01} + iV_{02} \quad (2.32)$$

Der komplexe Anteil liegt dabei in der Größenordnung von ca.  $3 - 4$  eV. Dies ergibt, je nach Energiebereich eine Reichweite von  $5 - 25$  Å [PEN76]. Zur Berechnung des Streuverhaltens des Gitters im Oberflächenbereich wird häufig die *layer-Korringa-Kohn-Rostoker*-Methode (LKRR) verwendet. Hier wird die Streuung durch jeweils eine 2D-Lage aus *muffin-tin*-Potentialen berechnet und diese schrittweise aufsummiert.

## 2.4 Grundlagen der Doppel-Photoemission

Die Doppel-Photoionisation gehört zu den wichtigsten atomphysikalischen Effekten. Man versteht darunter die Emission zweier Elektronen durch *ein* Photon (im Gegensatz zu Multiphoton-Doppelionisation). Das bloße Vorhandensein des Effektes ist bereits ein Hinweis auf die Wechselwirkung der Elektronen miteinander und zeigt die Grenze für die Behandlung von Atomen in einer Ein-Elektronen-Näherung auf. Die Störungstheorie in 1. Ordnung führt hier zu keinem Ergebnis, wie bereits aus der folgenden einfachen Betrachtung sofort ersichtlich wird [BER98]. Sind  $\phi_k$  und  $\phi_l$  Eigenzustände des gleichen (unkorrelierten) Hamiltonians, sowie  $\hat{\mathbf{e}} \cdot \mathbf{p}_{\mathbf{k},l}$  der Ein-Teilchen-Dipol-Operator, so ist das Matricelement  $M_{fi}$

$$\begin{aligned} M_{fi} &= \langle \phi_{f,k} \phi_{f,l} | \hat{\mathbf{e}} \cdot \mathbf{p}_{\mathbf{l}} | \phi_{i,k} \phi_{i,l} \rangle + \langle \phi_{f,k} \phi_{f,l} | \hat{\mathbf{e}} \cdot \mathbf{p}_{\mathbf{k}} | \phi_{i,k} \phi_{i,l} \rangle \\ &= \langle \phi_{f,k} | \phi_{i,k} \rangle \langle \phi_{f,l} | \hat{\mathbf{e}} \cdot \mathbf{p}_{\mathbf{l}} | \phi_{i,l} \rangle + \langle \phi_{f,l} | \phi_{i,l} \rangle \langle \phi_{f,k} | \hat{\mathbf{e}} \cdot \mathbf{p}_{\mathbf{k}} | \phi_{i,k} \rangle \\ &= \delta_{i,f} (\langle \phi_{f,k} | \hat{\mathbf{e}} \cdot \mathbf{p}_{\mathbf{k}} | \phi_{i,k} \rangle + \langle \phi_{f,l} | \hat{\mathbf{e}} \cdot \mathbf{p}_{\mathbf{l}} | \phi_{i,l} \rangle). \end{aligned} \quad (2.33)$$

Dieser Ausdruck kann nur dann  $\neq 0$  sein, wenn  $i = f$ , Anfangs- und Endzustand also identisch sind. In diesem kurzen Beispiel wird bereits deutlich, dass zur gleichzeitigen Anregung *zweier* Elektronen durch *ein* Photon, eine weitere Wechselwirkung

vorhanden sein muss.

Während die experimentelle und theoretische Untersuchung der Doppel-Photoionisation von freien Atomen bereits seit einigen Jahrzehnten intensiv betrieben wird (siehe z.B. [SCW93, DÖA98, WAN53, MAL97, KHE02]), ist die Behandlung der Doppel-Photoemission an Oberflächen ein relativ junges Feld. Die erste theoretische Behandlung dieses Effektes stammt von Berakdar aus dem Jahr 1998 [BER98].

Zur ersten einfachen Behandlung des Problems wird auf das "jellium"-Modell zurückgegriffen. Dieses Modell stellt eine Vereinfachung der Darstellung des Potentials im Festkörper dar. Hierbei werden die Ladungen der einzelnen Ionen des Gitters nicht individuell berücksichtigt, sondern lediglich als gleichförmige Hintergrund-Ladung behandelt. Diese Näherung stellt insbesondere für einfache Metalle mit *sp*-Bindungen keine große Einschränkung dar. Damit wird die Beschreibung der Oberfläche auf die Behandlung einer halb-unendlichen Sphäre beschränkt, die zum Vakuum eine Potentialstufe der Höhe

$$V_0 = \epsilon_F + W \quad (2.34)$$

besitzt ( $\epsilon_F$  : Fermi Energie,  $W$  : Austrittsarbeit). Die Einteilchen-Wellenfunktionen im Grundzustand können dann innerhalb des Festkörpers durch ebene Wellen beschrieben werden, während zum Vakuum ein exponentieller Abfall der Welle einsetzt.

$$\begin{aligned} \phi_{\epsilon, \vec{k}}(\vec{r}) &= \frac{1}{\sqrt{V}} e^{i\vec{k}_{\parallel} \cdot \vec{r}_{\parallel}} \\ &\times \begin{cases} e^{ik_z z} + R e^{-ik_z z} & z < 0 \\ T e^{-\gamma z} & z > 0 \end{cases} \end{aligned}$$

Die Reflexions- und Transmissionskoeffizienten  $R$  und  $T$  werden dabei so bestimmt, dass ein stetig differenzierbarer Übergang zwischen den Bereichen entsteht.

Zur Beschreibung der Wellenfunktion des Elektronen-Paares im Grundzustand wird als erster Ansatz eine symmetrisierte Produktwellenfunktion aus Einteilchen-Zuständen gewählt :

$$|\Psi_{\epsilon_i, k_a, k_b}\rangle \approx \frac{1}{\sqrt{2}} [|\phi_{\epsilon_a, \vec{k}_a}(\vec{r}_a)\rangle \otimes |\phi_{\epsilon_b, \vec{k}_b}(\vec{r}_b)\rangle + |\phi_{\epsilon_a, \vec{k}_a}(\vec{r}_b)\rangle \otimes |\phi_{\epsilon_b, \vec{k}_b}(\vec{r}_a)\rangle] \quad (2.35)$$

Die Bindungsenergie des Paares ist durch  $\epsilon_i = \epsilon_a + \epsilon_b$  gegeben. Dies ist sicherlich zunächst der einfachste Ansatz für eine korrelierte Grundzustandswellenfunktion. Jegliche Wechselwirkung im Grundzustand wird dabei ausgeschlossen und lediglich die

Symmetrie der Wellenfunktion gefordert.

Die Wechselwirkung des Elektronpaares wird daher erst im Endzustand eingeführt. Zur Konstruktion des Endzustandes kann zunächst festgestellt werden, dass dieser im Vakuum asymptotisch in einen Eigenzustand des "Zwei-Elektronen"-Operators der kinetischen Energie  $\hat{K}$  übergehen muss :

$$\hat{K}|\vec{k}_a, \vec{k}_b\rangle = \frac{1}{2m}(\hat{p}_a + \hat{p}_b)|\vec{k}_a, \vec{k}_b\rangle = E_f|\vec{k}_a, \vec{k}_b\rangle \quad (2.36)$$

Der Endzustand, der für die Berechnung des Übergangsmatrixelementes verwendet wird, kann durch Rückentwicklung in der Zeit mit dem Møller-Operator  $\Omega^-$  gewonnen werden :

$$|f\rangle = [1 + G^-(\hat{H} - \hat{K})]|\vec{k}_a, \vec{k}_b\rangle = (1 + G^-V)|\vec{k}_a, \vec{k}_b\rangle \quad (2.37)$$

$G^+$  ist der Greens-Operator des Hamiltonians  $\hat{H}$  des gesamten Systems (näheres zur Zwei-Teilchen Greens-Funktion findet sich in [FOM03]) und erfüllt die Dyson-Gleichung

$$G^- = G_0^- + G_0^-VG^-. \quad (2.38)$$

Das Störpotential  $V$  enthält schließlich sämtliche weiteren Wechselwirkungen, wie elastische und inelastische Streuung, kollektive Anregungen, sowie die komplexe Selbst-Energie des Elektronenpaares. Allerdings wird an dieser Stelle eine weitere Näherung durchgeführt, indem sämtliche Beiträge bis auf die Elektron-Elektron-Wechselwirkung vernachlässigt werden. Dies lässt sich mit der Betrachtung aus Gleichung (2.33) begründen, da ja gerade die elektronische Wechselwirkung benötigt wird, damit der Prozess stattfinden kann. Somit wird  $V \approx V_{ee}$  gesetzt. In einem homogenen Elektronengas im Thomas-Fermi-Limit kann dieses interelektronische Potential durch ein abgeschirmtes Coulomb-Potential ausgedrückt werden:

$$V_{ee} = \frac{e^{-|\vec{r}_a - \vec{r}_b|/\lambda}}{|\vec{r}_a - \vec{r}_b|} \quad (2.39)$$

Die Abschirmlänge  $\lambda$  ist dabei von der elektronischen Zustandsdichte am Fermi-Level abhängig. Damit kann Gleichung (2.37) schließlich als

$$|f\rangle \approx (1 + G_{ee}^-V_{ee})|\vec{k}_a, \vec{k}_b\rangle \quad (2.40)$$

geschrieben werden, wobei  $G_{ee}^-$  der Propagator im Potential  $V_{ee}$  ist. Allerdings zeigt sich, dass die Auswertung von (2.40) für die Berechnung des Matrixelementes äußerst aufwändig ist und sich nur innerhalb einer weiteren Näherung durchge-

führt werden kann [BER98]. Wiederum wird angenommen, dass die Elektron-Elektron-Wechselwirkung nur eine kleine Störung darstellt, was sich durch die Verwendung des abgeschirmten Coulomb-Potentials rechtfertigen lässt. Daher wird der Propagator des interelektronischen Potentials  $G_{ee}$  durch den Propagator  $G_0$  des freien Elektrons ersetzt. Dies wird auch als *kinematical approximation* bezeichnet und kann als Beschränkung auf eine Einfachstreuung verstanden werden. Damit wird das Matrixelement schließlich zu

$$M_{fi}(\vec{k}_a, \vec{k}_b) = \langle \vec{k}_a, \vec{k}_b | (1 + V_{ee} G_0^+) [\hat{e} \cdot (\hat{p}_a + \hat{p}_b)] | \Psi_{\epsilon_i} \rangle. \quad (2.41)$$

Die Auswertung des Matrixelementes führt zu zwei Termen, wobei der erste eine Abhängigkeit von

$$T_{spe} \sim (\hat{e} \cdot \hat{p}_a + \hat{e} \cdot \hat{p}_b) \delta^{(2)}(k'_{a,\parallel} - k_{a,\parallel}) \delta^{(2)}(k'_{b,\parallel} - k_{b,\parallel}) \quad (2.42)$$

aufweist. Dieser Ausdruck beschreibt zwar auch die Emission von zwei Elektronen, allerdings durch zwei unabhängige Photoemissionsprozesse. In diesem Fall bleiben die individuellen Komponenten der Elektronen parallel zur Oberfläche erhalten, wie an den Delta-Funktionen zu erkennen ist. Der zweite auftretende Term

$$T_{dpe} \sim \hat{e} \cdot (\hat{p}_a + \hat{p}_b) \delta^{(2)}[(k'_{a,\parallel} + k'_{b,\parallel}) - (k_{a,\parallel} + k_{b,\parallel})] \quad (2.43)$$

dagegen ist explizit nur von den Schwerpunktskoordinaten der beiden Elektronen abhängig. Ebenfalls ist hier nicht die Erhaltung der einzelnen Impulskomponenten gegeben, sondern nur die des Schwerpunktsimpulses  $(k_{a,\parallel} + k_{b,\parallel})$ . D.h. in diesem Fall handelt es sich tatsächlich um die Emission eines Elektronenpaares, das durch einen Photoabsorptionsprozess kohärent emittiert wurde. Aus (2.43) lassen sich auch bereits leicht Aussagen über die Winkelabhängigkeit der Zwei-Elektronen-Photoemission treffen. Ist der Schwerpunktsimpuls senkrecht zur Polarisierung des Photons gerichtet, d.h.  $\hat{e} \perp (k_a + k_b)$ , so verschwindet  $T_{DPE}$ . Dieses Verhalten ist in Abbildung 2.5 veranschaulicht. Aufgetragen ist die Energieaufteilung  $((E_a - E_b)/(E_a + E_b))$  des Elektronenpaares unter verschiedenen Einfallrichtungen des Lichtes. Im ersten Fall liegt der Polarisationsvektor in der Ebene der Oberfläche. Sind die Energien der Elektronen gleich, so steht der Schwerpunktsimpuls  $(k_a + k_b)$  senkrecht auf  $\hat{e}$ . Daher verschwindet die Intensität  $T_{DPE}$ . Andere Kombinationen der kinetischen Energie dagegen sind erlaubt. Die rechte Seite von Abb. 2.5 zeigt die Situation für streifenden Einfall des Lichtes, so dass die Polarisierung in Richtung der Oberflächen-Normale zeigt. In diesem Fall ist die Emission gleicher Energien erlaubt, während asymmetrische Energieaufteilungen



unterdrückt werden.

Für eine vollständige Behandlung des Doppel-Photoemissionsprozesses an einer Oberfläche müssen allerdings noch weitere Effekte mit in die Rechnungen mit einbezogen werden, insbesondere die Streuung der Elektronen am periodischen Gitter des Festkörpers. Weiter gehende Behandlungen des Problems verwenden daher für die Anfangszustände nicht mehr Zustände aus dem *jellium*-Modell, sondern Wellenfunktionen, die aus einer *linear muffin tin orbital*-Methode (LMTO) basierend auf der Dichte-Funktional-Theorie unter der *local density approximation* [FOP02] gewonnen werden. Die auslaufenden Zustände werden dagegen mit der *layer-Korringa-Kohn-Rostoker*-Methode (LKRR) behandelt. Zusätzlich ist es möglich, die Emission aus bestimmten Bereichen der Bandstruktur zu behandeln [FOM02]. Allerdings wird stets von einer Selbstfaltung der Bandstruktur ausgegangen, d.h. Zustände der Elektronen entsprechen jeweils dem eines Einteilchenzustandes. Diese Näherung ist allerdings nur aufgrund der starken Abschirmung durch die übrigen Elektronen im Festkörper begründet. In einem freien Atom mit wenigen Elektronen (im Extremfall Helium) wäre dies nicht mehr möglich.

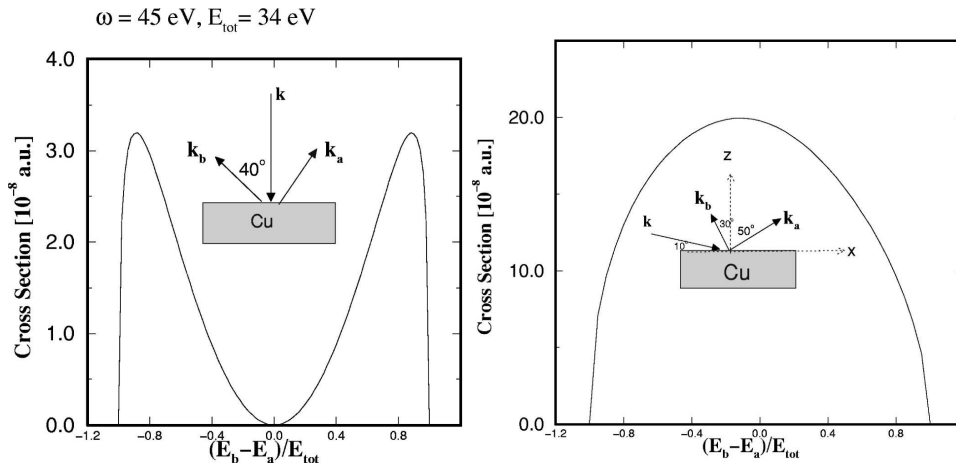


Abbildung 2.5: Energieaufteilung des Elektronenpaares. Links : der Polarisationsvektor liegt in der Oberflächenebene, die Elektronen werden unter einem Winkel von jeweils  $40^\circ$  detektiert. Durch die Abhängigkeit von 2.43 werden keine Elektronenpaare mit gleichen Energien, d.h.  $E_a - E_b = 0$  emittiert. Rechts : die Polarisation steht nahezu senkrecht auf der Oberfläche. In diesem Fall zeigt  $\vec{k}_a + \vec{k}_b$  in Richtung von  $\hat{e}$ , so dass die Emission mit gleichen Energien möglich ist, während asymmetrische Energieaufteilungen unterdrückt werden (entnommen aus [BER98]).

### 2.4.1 Das Korrelationsloch

Ein weitere wichtige Voraussage der Theorie ist die Existenz eines *Korrelationsloches*. Dieses ist eine Konsequenz aus der Bildladung eines sich durch das Elektronengas bewegenden Elektrons [SER86]. Durch die Elektron-Elektron-Abstoßung ist es nicht möglich, dass beide Elektronen den Festkörper mit gleicher Energie und gleichem Impulsvektor  $\vec{k}$  verlassen. Dies führt zu einem verbotenen Bereich um die Emissionsrichtung eines Elektrons in dem das zweite nicht nachgewiesen werden kann. Die Größe dieses Bereiches hängt von der Stärke der Kopplung zwischen den Elektronen ab, d.h. von der Reichweite des Wechselwirkungspotentials und damit der Abschirmlänge  $\lambda$  in Gleichung (2.39). Abbildung 2.6 veranschaulicht den Einfluss verschiedener Größen von  $\lambda$  auf die Zwei-Elektronen-Winkelverteilung. Aufgetragen ist die Winkelverteilung eines Elektrons, wobei die Emission des jeweils anderen Elektrons an der mit (●) markierten Stelle festgehalten wird. Bei kleinem  $\lambda$  setzt die Coulomb-Abstoßung erst bei kleinen Abständen merklich ein, so dass die Intensität des zweiten Elektrons dicht an die Emissionsrichtung des ersten heranreicht. Mit zunehmendem  $\lambda$  wird die Abschirmung geringer und der verbotene Bereich dehnt sich aus. Die Ausmessung dieses Bereiches bietet so die Möglichkeit, die Stärke der Elektron-Elektron-Wechselwirkung im Festkörper direkt abzubilden.

### 2.4.2 Oberflächenempfindlichkeit

Aufgrund der geringen mittleren freien Weglänge von Elektronen im hier betrachteten Energiebereich (0-100 eV), ist die Spektroskopie von Photoelektronen ein sehr oberflächensensitiver Prozess. In einer sehr vereinfachten Betrachtung kann die Wahrchein-

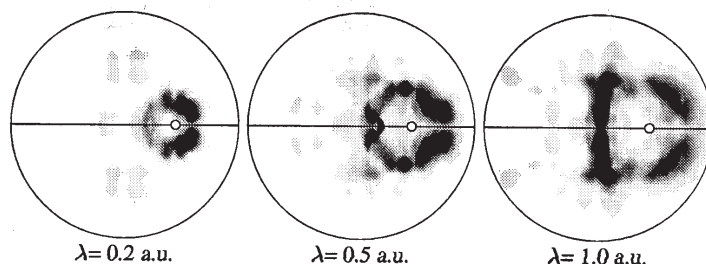


Abbildung 2.6: Winkelverteilung (orthographische Projektion) eines Photoelektrons bei 15 eV ( $\hbar\omega = 45$  eV). Die Emissionsrichtung des zweiten Elektrons (ebenfalls 15 eV) ist durch (●) angezeigt. Je nach Stärke der Kopplung (Abschirmlänge  $\lambda$ ) verändert sich die Größe des "verbotenen" Bereichs (aus [FOM03]).

lichkeit  $p$ , dass das Elektron den Festkörper verlässt und damit nachgewiesen werden kann, mit einer Exponentialfunktion beschrieben werden :

$$p \sim e^{-z/l} \quad (2.44)$$

wobei  $z$  der Abstand des Elektron-Startortes von der Oberfläche ist und  $l$  die Ausdringtiefe. Für den Doppel-Photoeffekt gilt diese Beziehung individuell für die beiden Elektronen. Damit multiplizieren sich die jeweiligen Wahrscheinlichkeitswerte :

$$p_{DPE} \sim e^{-z/l} e^{-z/l} = e^{-2z/l}. \quad (2.45)$$

Die Folge ist eine effektive Halbierung der Ausdringtiefe. Genauere Rechnungen haben ergeben, dass der Zwei-Elektronen-Photostrom bereits nach 2-3 Monolagen in Sättigung geht, d.h. tiefere Lagen keinen Einfluss mehr auf die Gesamtintensität haben. Für die Einfach-Photoemission hingegen müssen bis zu 10 Monolagen mit einbezogen werden [FOM02].

### 2.4.3 Weitere Prozesse

Der beschriebene kohärente Prozess ist allerdings nicht die einzige Möglichkeit, zwei Elektronen durch ein Photon aus der Oberfläche auszulösen. Die Feynman-Diagramme niedrigster Ordnung, die zur Emission zweier Elektronen führen, sind in Abbildung 2.7 dargestellt. Die Zeit verläuft dabei von unten nach oben, die Elektron-Elektron-Wechselwirkung wird durch die unterbrochene Linie und die Photon-Elektron-Wechselwirkung durch die Wellenlinie symbolisiert. Fall a) und b) beziehen sich auf die kohärente Emission der Elektronen. Hier ist zu beachten, dass in der beschriebenen Theorie nur der Prozess b) berücksichtigt wird, d.h. die Wechselwirkung der Elektronen wird nur im Endzustand mit einbezogen. In der Doppel-Photoionisation von freien Atomen ist dieser Prozess dominierend, so lange die kinetischen Energien der Elektronen gering sind, da hier die Coulomb-Wechselwirkung der (freien) Elektronen die wesentliche Rolle spielt. Prozess a) hingegen bezieht sich auf die Grundzustandskorrelation (GSC) der Elektronen. Hier befindet sich das Target in einem (virtuell) angeregten Zustand, der durch die Absorption des Photons auf die jeweiligen Einteilchen-Funktionen projiziert wird, die im Kontinuum liegen können.

Der wichtigste weitere Prozess c) ist die Absorption eines Photons durch ein Elektron in einem normalen Photoemissionsprozess. Dieses Elektron führt auf dem Weg zur Oberfläche Stöße mit den anderen Elektronen des Valenzbandes durch. Unter geeigneten Stoßbedingungen kommt es hier ebenfalls zur Emission von zwei Elektronen in das

Vakuum. Im Prinzip handelt es sich hierbei um den ersten Abschnitt einer typischen Sekundärelektronen-Kaskade, die keinerlei Information mehr über den ursprünglichen Prozess enthält. Unter geeigneten Bedingungen lassen sich so auch mehr als zwei Elektronen emittieren. Experimentell sind der kohärente Ein-Stufen und der inkohärente Zwei-Stufen-Prozess allerdings nicht voneinander zu trennen, da stets ein Photon beide Elektronen auslöst.

Grundsätzlich ist zu erwarten, dass sowohl kohärente als auch inkohärente Prozesse zum DPE-Signal beitragen. Dabei ist es insbesondere hilfreich, die Eindringtiefe der Photonen mit der Ausdringtiefe der Elektronen zu vergleichen. Die Absorption der Photonen im Energiebereich von 40 – 60 eV erreicht bei Kupfer nach einer Strecke von 10 nm ca. 50% [LBLW] während die mittlere freie Weglänge der Elektronen mit diesen kinetischen Energien lediglich  $< 5 \text{ \AA}$  beträgt [HÜF95]. Es werden daher zwar über einen weiten Bereich Elektronen erzeugt, allerdings kann nur ein Bruchteil davon ohne inelastische Streuung den Festkörper tatsächlich verlassen. Daher ist zu zunächst erwarten, dass insbesondere der inkohärente Prozess, bzw. Elektronen aus Sekundärkaskaden, einen deutlichen Beitrag zur Gesamtintensität liefern. Bisher existieren keine Rechnungen,

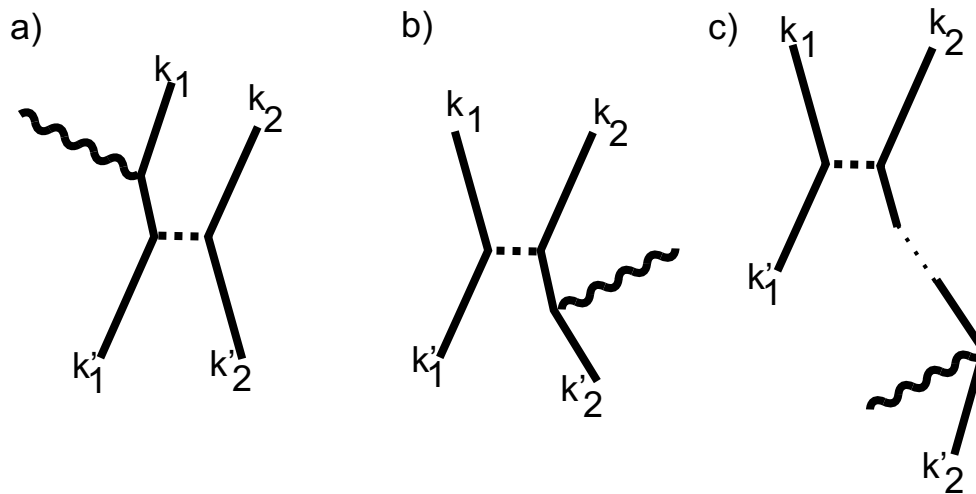


Abbildung 2.7: Feynman-Diagramme niedrigster Ordnung zur Doppel-Photoemission. a) die Wechselwirkung der Elektronen findet im Grundzustand statt vor Einkopplung des Photons ("ground state correlation", shake-off), b) Absorption des Photons durch eines der Elektronen im Grundzustand und anschließender Wechselwirkung im Endzustand ("final state interaction", FSI), c) Inkohärenter Beitrag: ein Elektron absorbiert das Photon und streut nach einer Wegstrecke mit dem zweiten, die Phaseninformation geht hierbei verloren [FOM03].

die diese Effekte innerhalb eines einzigen Modells beschreiben, so dass Abschätzungen über die relative Intensität der Prozesse noch nicht vorliegen.



# Kapitel 3

## Experiment

### 3.1 Anforderungen an das Experiment

Der koinzidente Nachweis von Elektronenpaaren, die bei einer Reaktion an einer Oberfläche emittiert werden, bringt einige experimentelle Probleme mit sich. Diese Probleme liegen hauptsächlich in der geringen Koinzidenzwahrscheinlichkeit begründet. Es ist sicherlich wünschenswert, mit einer möglichst hohen Nachweis- bzw. Datenaufnahmerate messen zu können. Dies liegt zum einen daran, dass nicht unbegrenzt Messzeit an einer Großforschungsanlage zur Verfügung steht, die Messung daher innerhalb eines Rahmens von 1-2 Wochen abgeschlossen sein sollte. Zum anderen lassen sich bei einer geringen Ereignisrate manche experimentellen Parameter nur schwer kontrollieren (Sauberkeit der Probe, Stabilität der Felder, etc.). Diese Problematik soll im folgenden näher erläutert werden.

#### 3.1.1 Nachweiseffizienz

Unter der sehr vereinfachten Annahme einer von Winkel und Energie der Elektronen unabhängigen Verteilung  $f(E, \theta, \phi) = 1$  und einer angenommenen optimalen Effizienz von  $P_{1,2}$  der Detektoren, ist die Koinzidenzwahrscheinlichkeit  $P_c$  gegeben durch das Produkt der Öffnungswinkel der Detektoren (siehe auch Abb. 3.1) im Verhältnis zum gesamten Raumwinkel:

$$P_c = P_1 P_2 f(E, \theta, \phi) = \frac{\Delta\Omega_1}{2\pi} \frac{\Delta\Omega_2}{2\pi} \quad (3.1)$$

Der Öffnungswinkel ist dabei im Allgemeinen in der Größenordnung von wenigen Grad (ca.  $5^\circ$ ), um eine gute Winkelauflösung zu erreichen. Der abgedeckte Raumwinkel

berechnet sich so zu

$$\Delta\Omega_{1,2} = \int_0^{2\pi} \int_0^{2.5^\circ} \sin\theta \, d\theta \, d\phi \approx 0.6 \times 10^{-3} \text{ sterad} \quad (3.2)$$

Auf der Grundlage dieser Werte ergibt sich eine Koinzidenzwahrscheinlichkeit von lediglich

$$P_c \approx 1 \times 10^{-6} \quad (3.3)$$

Bei einer angenommenen Erzeugungsrate der Elektronenpaare von ca. 1 kHz beträgt die Zahl der Koinzidenzen lediglich etwa  $10^{-3}$  Hz! Dabei wurde in dieser Rechnung noch nicht berücksichtigt, dass selbstverständlich auch noch die jeweiligen Energien dispersiv gemessen werden sollen. Hinzu kommen noch Verluste in der Nachweiseffizienz durch Gitter, welche die einzelnen Feldregionen im Spektrometer voneinander abtrennen, sowie die Ansprechwahrscheinlichkeit der Detektoren. Wenn dies einbezogen wird, verringert sich die Wahrscheinlichkeit einer echten Koinzidenz um weitere Größenordnungen.

### 3.1.2 Ereignisse aus unkorreliertem Untergrund

Eine zunächst auf der Hand liegende Lösung des Problems der geringen Koinzidenzrate wäre sicherlich die Erhöhung des Photonенflusses auf die Probe und damit eine größere Ereignisrate. Aber auch dies bringt weitere Probleme mit sich.

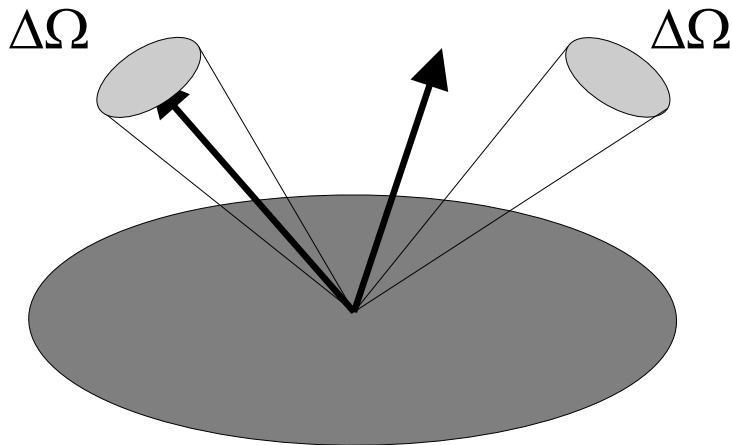


Abbildung 3.1: Eine Koinzidenz erfordert den gleichzeitigen Nachweis der emittierten Elektronen innerhalb der Raumwinkel  $\Delta\Omega$  der Detektoren.



Die Strahlintensität des Synchrotrons ist nicht notwendigerweise kontinuierlich, sondern wird (im "Single-Bunch"- oder "Double-Bunch"-Modus) in kurzen (ca. 50 ps Länge) Pulsen mit einer Frequenz von üblicherweise, je nach Umlaufzeiten der Elektronenpakete, 1 – 5 MHz abgegeben. Jeder dieser Pulse enthält dabei bis zu  $10^6$  Photonen. Nun kann bei der Messung prinzipiell nicht zwischen Elektronenpaaren unterschieden werden, die in einem Doppel-Photoemissionsprozess durch *ein* Photon erzeugt wurden oder Paaren, die durch *zwei* unabhängigen Photonen an verschiedenen Orten auf der Probe als Einfach-Photoemission emittiert wurden.

Ist die Strahlintensität nun zu hoch, d.h. die Anzahl der Photonen pro Puls, so stammt ein wesentlicher Teil der detektierten "Elektronenpaare" aus diesem Untergrundprozess. Die Rate der echten Koinzidenzen  $R_{true}$  wächst offensichtlich linear mit der Intensität  $I_{photo}$  an ( $\sigma^{++}$  : Wirkungsquerschnitt für Doppel-Photoemission):

$$R_{true} \sim \sigma^{++} I_{phot} \quad (3.4)$$

Die Erzeugungsrate der falschen Koinzidenzen  $R_{false}$  dagegen ist ein unabhängiger Prozess, so dass sich die Wahrscheinlichkeiten multiplizieren ( $\sigma^+$  : Wirkungsquerschnitt für Einfach-Photoemission):

$$R_{false} \sim \sigma^+ I_{phot} \sigma^+ I_{phot} \quad (3.5)$$

Für eine genauere Betrachtung müssten noch die absoluten Wirkungsquerschnitte für die Einfach- bzw. Doppel-Photoemission einbezogen werden, allerdings lässt sich schon hier feststellen, dass das Signal- zu Untergrund-Verhältnis ( $R_{true}/R_{false}$ ) bei steigender Strahlintensität mit  $I_{phot}^{-1}$  abfällt. Das einfache Erhöhen des Strahlstromes für eine bessere Koinzidenzrate bleibt damit auf einen engen Rahmen begrenzt.

Es sei hier noch angemerkt, dass es natürlich auch möglich ist, die Messungen im so genannten "Multi-Bunch"-Modus durchzuführen. Hierbei sind die Abstände zwischen den Photonenpulsen lediglich wenige ns ( $\sim 2$  ns) voneinander getrennt. Die Photonendichte pro Puls ist somit geringer bei (absolut) gleichem oder auch höherem Strahlstrom. Damit ließe sich das Problem bis zu einem gewissen Grad umgehen, allerdings fällt so die Möglichkeit einer Flugzeitmessung zur Energiebestimmung der Elektronen weg. Diese erfordert ja gerade die diskrete Zeitstruktur des Photonen-signals.

Der Vollständigkeit halber sollte hier noch erwähnt werden, dass dieses Problem bei Experimenten an Gasen eine nur untergeordnete Rolle spielt. Zum einen ist die Massenbelegung in einem typischen Überschall-Gasjet, wie er in vielen atomphysikalischen

Experimenten verwendet wird, wesentlich geringer ( $\sim 10^{10}$  Atome/cm<sup>2</sup>, siehe z.B. [DÖA98]) als an einer Oberfläche (bereits eine Monolage hat ca.  $10^{15}$  Atome/cm<sup>2</sup>). Damit wird die Wahrscheinlichkeit der Absorption von zwei Photonen im gleichen Puls deutlich unterdrückt. Zum anderen bleibt nach der Doppel-Photoionisation an einem freien Atom bzw. Molekül ein zweifach geladenes Ion zurück, welches zum Auslösen einer Koinzidenzschaltung mit den emittierten Elektronen verwendet werden kann. Der unkorrelierte Untergrund lässt sich so (fast) vollständig beseitigen.

### 3.1.3 Lösungsmöglichkeiten

Wie in den vorangegangenen Abschnitten erläutert wurde, muss zum einen bei einem relativ geringen Strahlstrom gemessen werden, wobei die Wahrscheinlichkeit eines Nachweises einer Koinzidenz stark von der Raumwinkelakzeptanz des Spektrometers abhängt. Die einzige Möglichkeit ein solches Experiment mit sinnvoller Datenaufnahmerate durchzuführen, ist daher, einen möglichst großen Winkelbereich abzudecken, um alle Emissionsrichtungen der Elektronen zu erfassen. Elektrostatische Analytoren (Platten-, Zylinderspiegel-Spektrometer etc.) scheiden daher aufgrund der im Allgemeinen sehr kleinen Eintrittspalte aus.

Trotz allem bieten sich nun verschiedene Lösungsmöglichkeiten an. Ein Spektrometer-Typ, der dieses Problem bereits im Grunde löst, wurde für die Untersuchung von Elektronen, die in Reaktionen von langsamen, hochgeladenen Ionen mit Oberflächen erzeugt wurden, entwickelt und von Morosov *et al.* [MOR96] beschrieben. In diesem Aufbau wird (nahezu) der gesamte Raumwinkel über der Probe mit 16 einzelnen Detektoren abgedeckt. Die einzelnen Detektoren sind hierbei nicht ortsauflösend, sondern messen lediglich die Flugzeiten ("time-of-flight", TOF) der einzelnen Elektronen. Da die jeweiligen Flugstrecken bekannt sind, können so die Energien berechnet werden. Probleme mit diesem Aufbau ergeben sich allerdings dahingehend, dass die Winkelauflösung nur sehr grob ist. Um dies zu umgehen, müssten die einzelnen Detektoren ortsauflösend sein, was neben den technischen Problemen der Implementierung von 16 einzelnen orts- und zeitauflösenden Detektoren in eine Vakuumkammer auch noch sehr kostenintensiv ist.

Ein recht erfolgreiches Spektrometer-Design für Koinzidenzmessungen an Oberflächen wurde von Samarin und Kirschner *et al.* entwickelt [FED98]. Dabei wird auf die vollständige Abdeckung des Raumwinkels verzichtet und nur zwei einzelne Detektoren verwendet, die allerdings ortsauflösend sind. Dieser Typ wurde bereits mehrfach

erfolgreich für Messungen zu  $(e, 2e)$  oder  $(\gamma, 2e)$  Reaktionen an Oberflächen eingesetzt [FED98, HER98]. Die Raumwinkelabdeckung liegt hierbei im Bereich von etwa 10%. Eine mögliche Erweiterung dieses Designs ist die Verbindung mit elektrostatischen Spiegeln, die den abdeckbaren Raumwinkel weiter vergrößern [WINK].

Ein dritter Weg ist die Messung der Elektronenpaare mit *einem einzigen* orts- und zeitauflösenden Detektor mit Mehrfachhitakzeptanz. Dieser Detektor könnte sehr nahe an der Probe positioniert sein, so dass der Raumwinkel über der Probe möglichst gut abgedeckt ist. Dies bringt aber das Problem mit sich, dass zum einen der Photonenstrahl die Probe noch erreichen muss, und zum anderen, aufgrund der dann sehr kurzen Flugstrecke, die Dispersion in der Flugzeit der Elektronen nur gering ist und damit nur eine schlechte Energie-Auflösung erreicht wird. Dies alles lässt sich aber vermeiden, indem zusätzlich zur Driftbewegung der Elektronen noch ein zusätzliches Feld angelegt wird, das die Reaktionsprodukte auf den Detektor projiziert. Dieser kann dann in einem größeren Abstand von der Probe positioniert sein. Bei geeigneter Wahl der Felder können so alle Elektronen auf einem Detektor abgebildet werden und unter Bestimmung von Flugzeit und Auftreffort der Startvektor rekonstruiert werden. Spektrometer dieses Typs werden bereits erfolgreich für Experimente an Gasen eingesetzt, sind aber im Bereich der Photo-Elektronen-Spektroskopie an Oberflächen bisher nicht zum Einsatz gekommen.

## 3.2 Das Flugzeit-Spektrometer

Wie im vorangegangenen Abschnitt erläutert wurde, kann eine sinnvolle Koinzidenzrate nur durch ein TOF-System in Verbindung mit einem ortsauflösenden Detektor erreicht werden. Solche Systeme kommen in Experimenten mit Gastargets bereits vielfach zum Einsatz und sind im Allgemeinen unter dem Begriff Cold Target Recoil Ion Momentum Spectroscopy (COLTRIMS) bekannt. Eine Übersicht bieten [DÖR00, ULL03] Diese Technik findet verschiedenste Anwendungen in der modernen experimentellen Atom- und Molekülphysik. Dazu gehören beispielsweise langsame und schnelle Ion-Atom- oder Ion-Molekül-Stöße (z.B. [WEB01, MOS99, SCZ00, MOS97, MER96, SCH00]), Einfach- und Doppel-Photoionisation von Atomen und einfachen Molekülen mit Synchrotron- oder intensiver Laserstrahlung (z.B. [DÖR98, DÖA98, WEB03, WEJ01, WEC01]) oder auch Sekundärionenemission von Festkörperoberflächen [JAL02, JAN02].

Das wesentliche Prinzip dieses Spektromertyps liegt in der Kombination aus elektrischen und magnetischen Führungsfeldern, die die Reaktionsprodukte auf einen

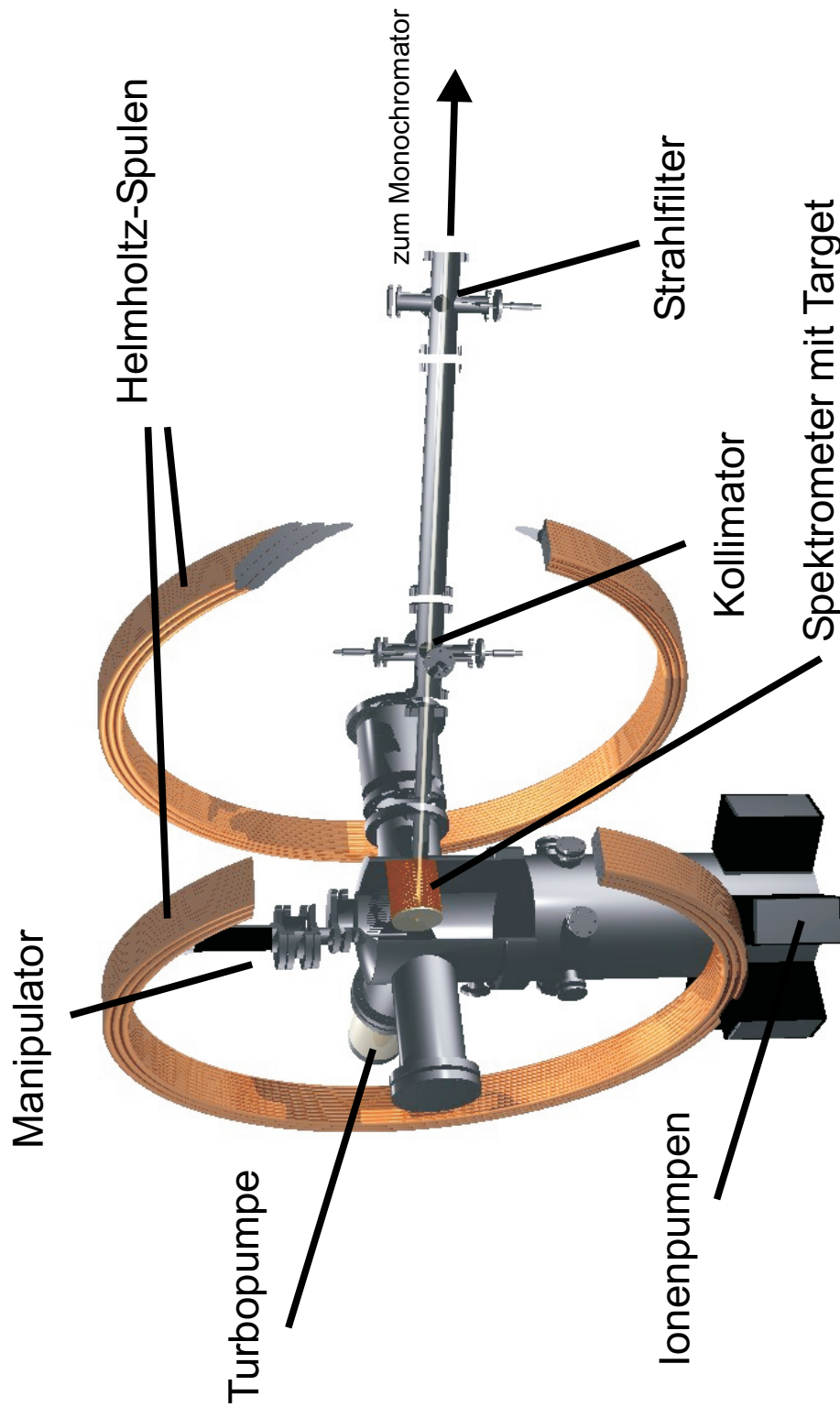


Abbildung 3.2: Gesamtansicht der experimentellen Aufbaus.

oder mehrere orts- und zeitauflösende Detektoren abbilden. Das elektrische Feld liegt dabei - je nach zu untersuchender Reaktion - meist in der Größenordnung von wenigen V/cm und magnetischen Feldern bis etwa 20 Gauß. Auf diese Weise kann - bei geeigneter Wahl der Felder - der gesamte Impulsraum abgebildet werden. Es findet keinerlei Vorauswahl einer bestimmten Geometrie oder Energieaufteilung der Teilchen statt. Aus den Flugzeiten und Auftrefforten der Elektronen bzw. Ionen auf den Detektoren können schließlich die Anfangsimpulse rekonstruiert werden. Da sämtliche Informationen für jedes Ereignis individuell gespeichert werden, kann in der nachfolgenden Analyse eine beliebige Differenzierung oder Projektion der Daten vorgenommen werden. Durch den großen Akzeptanzbereich dieser Spektrometer können so wesentlich höhere Koinzidenzraten erzielt werden.

Das Design des in dieser Arbeit verwendeten Spektrometers stellt einen Kompromiss zwischen der für die Messung nötigen Auflösung sowie der Implementierbarkeit in das vorhandene UHV-System dar. In Abbildung 3.3 ist ein Skizze des Spektrometers dargestellt. Das Kernstück des Spektrometers besteht aus dem Extraktionsbereich von 256 mm Länge. Dieser setzt sich aus 46 Ring-Elektroden von jeweils 0.5 mm Dicke und einem Innendurchmesser von 90 mm (Außendurchmesser 120 mm) zusammen. Jede der Elektroden ist mit dem jeweiligen Nachbarn über einen Widerstand von 2.4 M $\Omega$  verbunden. Wird über die sich so ergebende Spannungsteilerkette eine Spannung angelegt, bildet sich im Inneren des Käfigs ein homogenes elektrisches entlang der Achse aus. Um einen definierten Abstand zwischen den Elektroden zu gewährleisten, befinden sich in den Zwischenräumen Keramikhülsen von 5 mm Länge, die wiederum zusammen mit den Elektroden auf insgesamt 5 Keramikstäbe aufgefädelt sind. Den Abschluss auf der Seite der Probe bildet eine 5 mm dicke Aluminium-Scheibe mit einer zentralen Öffnung von 10 mm durch die die Probe in das Spektrometervolumen eingebracht wird. Die Details zur Probenpositionierung sind in Abbildung 3.13 dargestellt. Um den Projektilstrahl in das Spektrometer einzulassen, sind acht der Elektroden seitlich um 5 mm geöffnet, so dass der Strahl unter 45° auf die Probe treffen kann. Die sich daraus ergebende Inhomogenität im Inneren ist vernachlässigbar, so lange das Verhältnis von Länge zu Breite nicht unterhalb ca. 2.5 liegt (in dieser Konfiguration beträgt das Verhältnis 3) [JAL02].

In Richtung des Detektors wird der Extraktionsbereich durch ein Gitter (Maschenweite 250 $\mu$ m, Transmission 80 %) abgeschlossen. Danach folgt die Nachbeschleunigung der Elektronen auf den Detektor. An dieser Stelle ist der Abstand des letzten Gitters zur Detektor-Oberfläche von entscheidender Bedeutung: durch die endliche Transmission

des Gitters (hier ca. 80 %) werden durch die primären Elektronen am Gitter weitere niederenergetische Sekundärelektronen erzeugt, die, aufgrund der Nachbeschleunigung zum Detektor, diesen ebenfalls erreichen. Für die Zeitverzögerung zwischen den primären, zu messenden, Elektronen, sowie der unerwünschten Streuelektronen, kommt der Abstand des Gitters zum tragen. Ist die Zeitverzögerung zu groß (einige ns), erscheint das Streuelektron als primäres Elektron, allerdings mit einer veränderten Flugzeit. Dies erzeugt einen Untergrund, der in der Größenordnung der Gitterabsorption liegt, d.h. ca. 20 % (siehe Abb. 3.5 a).

Ist der Abstand dagegen sehr kurz (wenige mm), so liegt die Zeitverzögerung unterhalb der TDC Auflösung von 0.5 ns, und das Streuelektron ist vom primären Elektron nicht mehr zu unterscheiden (aufgrund der hohen Feldstärke in diesem Bereich ist auch der Auftreffort nahezu identisch). In der praktischen Ausführung wurde dies durch die Verwendung von zwei Gittern erreicht. Aus Konstruktionsgründen konnte das Abschlussgitter des Spektrometers nicht unmittelbar vor das MCP montiert werden, so dass ein Abstand von ca. 2 cm zwischen MCP und Spektrometerende entsteht. Dieser Abstand würde zu einer Driftzeit der niederenergetischen Streu-Elektronen von wenigen Nanosekunden führen, die somit eine deutliche - aber trotzdem nicht eindeutig trennbare - Zeitverzögerung zu den primären Elektronen aufweisen würden. Um dies zu vermeiden, wird ein zweites Gitter direkt (im Abstand von ca. 1 mm) vor das MCP eingebaut, dessen Potential um ca. 10 V unter dem des vorigen Gitters liegt. Dadurch werden die niederenergetischen Elektronen, die am ersten Gitter erzeugt wurden, vom zweiten Gitter abgebremst, während die primären Elektronen diese Schwelle noch leicht überwinden können, da sie im Spektrometer bereits 200 V aufgenommen haben (siehe Abb. 3.4). Die Streu-Elektronen erreichen so den Detektor erst nach einer Zeitverzögerung von 60 – 70 ns, die nun eindeutig von den primären Elektronen getrennt werden kann. Die Feldstärke zwischen dem *zweiten* Gitter und der MCP-Oberfläche ist schliesslich hoch genug ( $\sim 1000$  V/cm), so dass die an diesem Gitter erzeugten Streu-Elektronen nicht mehr von den primären zu unterscheiden sind. Das so entstandene Abbremsfeld für die primären Elektronen kann in der Analyse leicht herausgerechnet werden, da es sich nur auf die Bewegung entlang der Spektrometer-Achse auswirkt.

Das elektrische Extraktionsfeld von wenigen V/cm alleine ist nicht ausreichend, um Elektronen bis zu einer Energie von 50 eV mit dem vollständigen Raumwinkel von  $2\pi$  auf den Detektor zu projizieren. Zwar könnte das Feld deutlich erhöht werden, allerdings würde daraus eine wesentlich geringere Flugzeit als auch Flugzeit-Differenz der Elektronen resultieren. Folglich ließe sich nur eine sehr schlechte Auflösung auf

Elektronen-Impulse entlang der Spektrometer-Achse erzielen lassen, als auch nur eine sehr geringe Multi-Hit-Effizienz. Aus diesem Grund wird dem elektrischen Feld ein paralleles Magnetfeld überlagert. Dies führt zu einer Zyklotron-Bewegung der Elektronen in der Proben-Ebene mit einem Gyrationradius von

$$r = \frac{mv}{eB} \quad (3.6)$$

Dabei sind (leicht zu erzeugende) Magnetfelder in der Größenordnung von 10 Gauß bereits ausreichend, um Elektronen bis ca. 60 eV innerhalb des Spektrometer-Volumens einzuschließen. Die Technik des magnetischen Einschlusses im Flugzeit Spektrometer wurde ebenfalls in Verbindung mit der Rückstoßionen-Impulsspektroskopie entwickelt und erstmals von Moshhammer *et al.* angewandt [MOS96].

Das Magnetfeld zum Einschluss der Elektronen in das Spektrometer wird durch ein außen am Kammergestell angebrachtes Helmholtz-Spulen-Paar erzeugt. Dieses hat einen Durchmesser von ca. 1.40 m und ist nach der Helmholtz-Bedingung im Abstand  $d/2 = 0.7$  m montiert. Dabei ist die Montierung so ausgeführt, so dass die Positionen (Höhe) der einzelnen Spulen um einige Zentimeter nachkorrigiert werden können. Dadurch lässt sich die Richtung des resultierenden Magnetfeldes je nach Lage des Erdmagnetfeldes am Messplatz leicht ausgleichen. Die Spulen können dabei bis zu einem Strom von 14 A betrieben werden, ohne dass eine gesonderte Kühlung nötig wird. Das entsprechende Magnetfeld liegt bei knapp 19 Gauß. In Abbildung 3.2 ist eine schematische Darstellung des gesamten Aufbaus zu sehen.

Zur Veranschaulichung der Elektronen-Trajektorie ist in Abb. 3.6 eine Simulation der Bewegung mit dem Programm SIMION 7.0 dargestellt.

### 3.2.1 Berechnung der Trajektorie im Spektrometer

Um aus den gemessenen Auftrefforten und Flugzeiten den Anfangsimpuls des Elektrons zu berechnen, muss die Trajektorie im Spektrometer exakt bekannt sein. Die Bewegungsgleichung des Elektrons gestaltet sich relativ einfach, wenn das elektrische und magnetische Feld parallel zur Achse des Spektrometers (im folgenden wird dies die z-Achse sein) orientiert sind, d.h. die Komponenten  $E_{x,y}$  und  $B_{x,y}$  verschwinden. Auf diese Weise entkoppelt sich die Bewegung in der xy-Ebene von der Bewegung entlang der z-Achse. Die Newtonschen Bewegungsgleichungen können dann folgendermaßen aufgestellt werden:

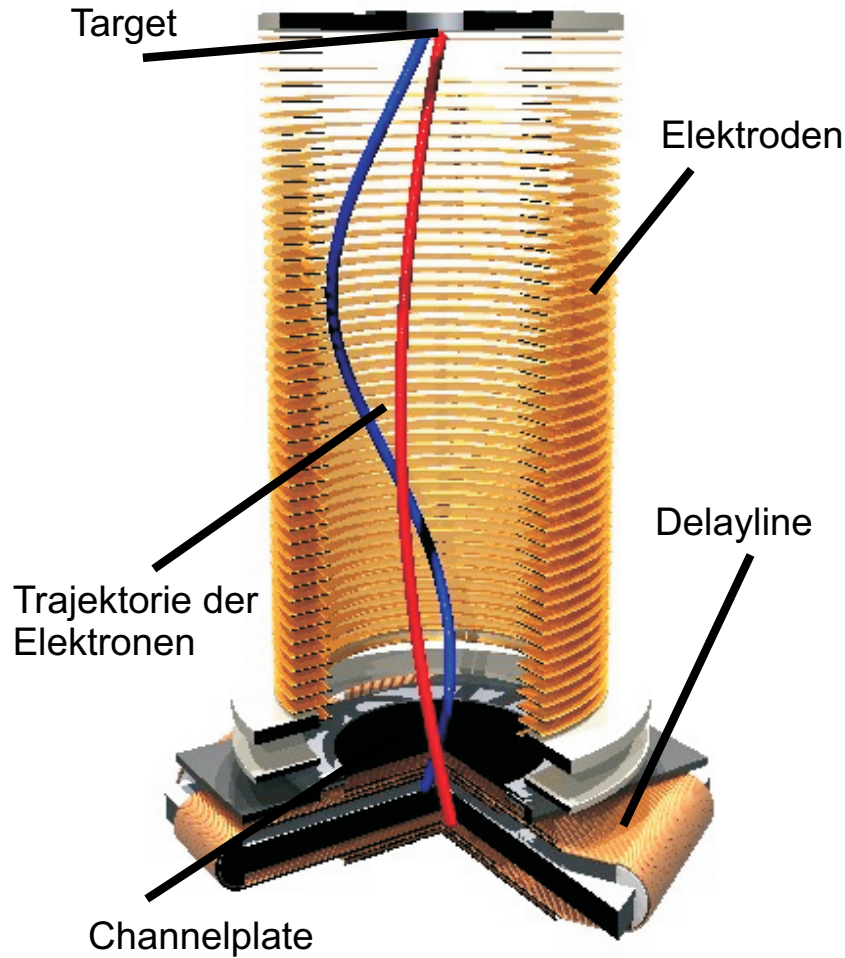


Abbildung 3.3: Schematische Darstellung des Flugzeit-Spektrometers mit Detektor.

$$\begin{aligned}
 m\ddot{x} &= eyB_z \\
 m\ddot{y} &= -exB_z \\
 m\ddot{z} &= eE_z
 \end{aligned}
 \tag{3.7}$$

wobei  $m$  die Masse,  $e$  die Ladung, sowie  $B_z$  und  $E_z$  die Komponenten des magnetischen bzw. elektrischen Feldes entlang der Spektrometerachse sind.

Die Lösung dieser gekoppelten Differentialgleichung lautet nach Berücksichtigung der Anfangsbedingungen  $x(0) = y(0) = 0$  und  $\dot{x} = v_x$ ,  $\dot{y} = v_y$ :



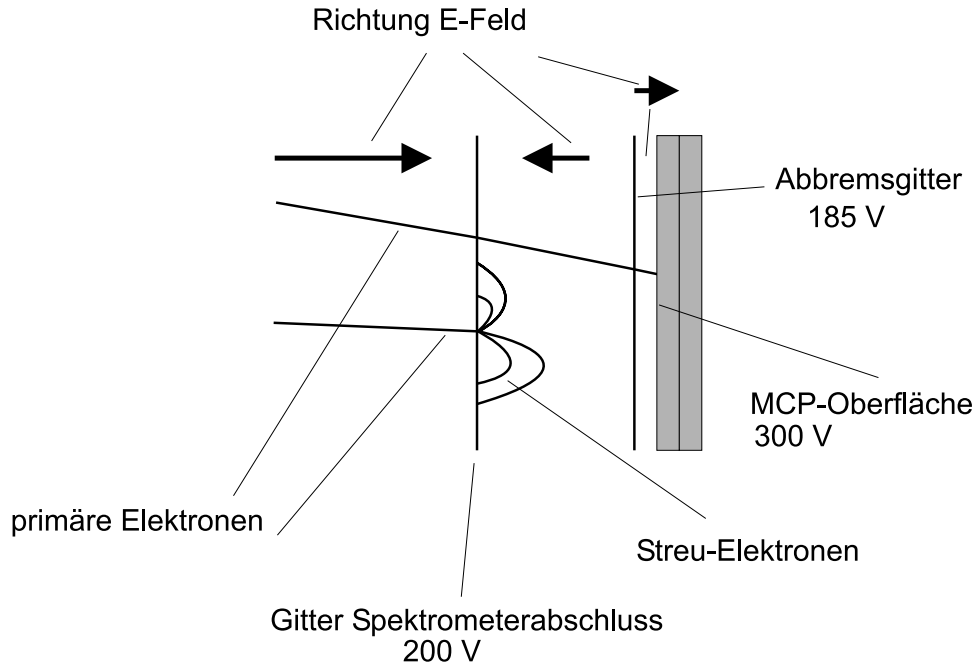


Abbildung 3.4: Erzeugung und Vermeidung von Streu-Elektronen. Aufgrund der endlichen Transmission des Gitters treffen primäre Elektronen auf das Gitter und lösen niederenergetische Sekundärelektronen aus. Um zu verhindern, dass diese den Detektor erreichen, wird ein zweites Gitter eingebaut, das ein entgegengesetztes Feld erzeugt.

$$\begin{aligned} x(t) &= \frac{v_y}{\omega}(1 - \cos(\omega t)) + \frac{v_x}{\omega} \sin(\omega t) \\ y(t) &= \frac{v_x}{\omega}(\cos(\omega t) - 1) + \frac{v_y}{\omega} \sin(\omega t) \end{aligned} \quad (3.8)$$

$$z(t) = \frac{e}{2m} E_z t^2 + v_z t \quad (3.9)$$

Aufgelöst nach den Anfangsgeschwindigkeiten ergibt sich schließlich

$$\begin{aligned} v_x &= \frac{-xa - by}{a^2 + b^2} \\ v_y &= \frac{xb - ay}{a^2 + b^2} \\ v_z &= \frac{s}{t} - \frac{eE_z}{2m} t \end{aligned} \quad (3.10)$$

wobei

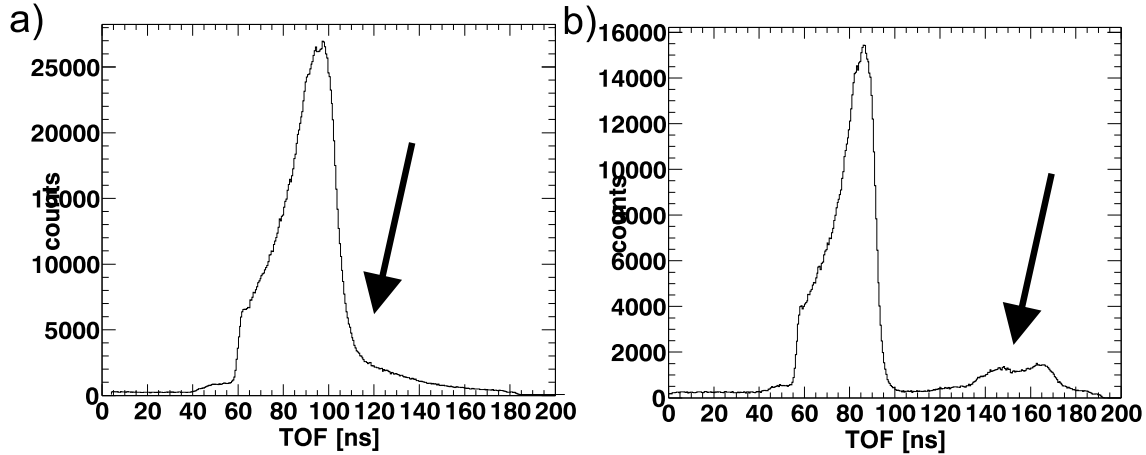


Abbildung 3.5: Auftreten der Streu-Elektronen im Flugzeitspektrum. a) ohne zusätzliches Feld liegen die Streu-Elektronen unter den "echten" Elektronen. b) Einfügen eines zweiten Gitters mit einer leichten Verzögerungsspannung (ca. 10 V) verlängert die Driftzeit der unerwünschten Streu-Elektronen, so dass diese keinen Flugzeit-Überlapp mehr mit den zu messenden Elektronen besitzen. Entweder durch eine Hardware-Koinzidenz oder einen entsprechende Auswahl der Ereignisse auf der Software-Seite können diese Ereignisse heraus gefiltert werden.

$$a = \frac{1 - \cos \omega t}{\omega}, \quad b = \frac{\sin \omega t}{\omega} \quad (3.11)$$

### 3.2.2 Energie- und Winkelauflösung des Flugzeit-Spektrometers

Wie schon in der Herleitung der Elektronen-Trajektorie deutlich wurde, setzt sich die Bewegung zum einen aus der Zyklotronbahn in der Ebene parallel zur Probe sowie der Bewegung senkrecht dazu, d.h. entlang der Spektrometerachse zusammen. Dementsprechend sind für die Auflösung des Spektrometers in den einzelnen Impulskomponenten die Fehler in den jeweiligen Ausbreitungsrichtungen aufgrund der Unsicherheit der Orts- und Zeitbestimmung zu betrachten. Dabei kommt natürlich nicht nur die Auflösungsbegrenzung des Detektors in Ort und Flugzeit in Betracht, sondern auch die Genauigkeit der Referenzwerte, d.h. des Startortes der Elektronen sowie des Flugzeit-Referenzsignals ("bunch-marker"). Zusätzlich kommt noch die Zeitauflösung des Datenaufnahmesystems (TDC) zum Tragen.

Die Auflösung des Spektrometers für Impulse entlang der Achse ( $k_{\perp}$ ) lässt sich folgendermaßen aus (3.11) ableiten

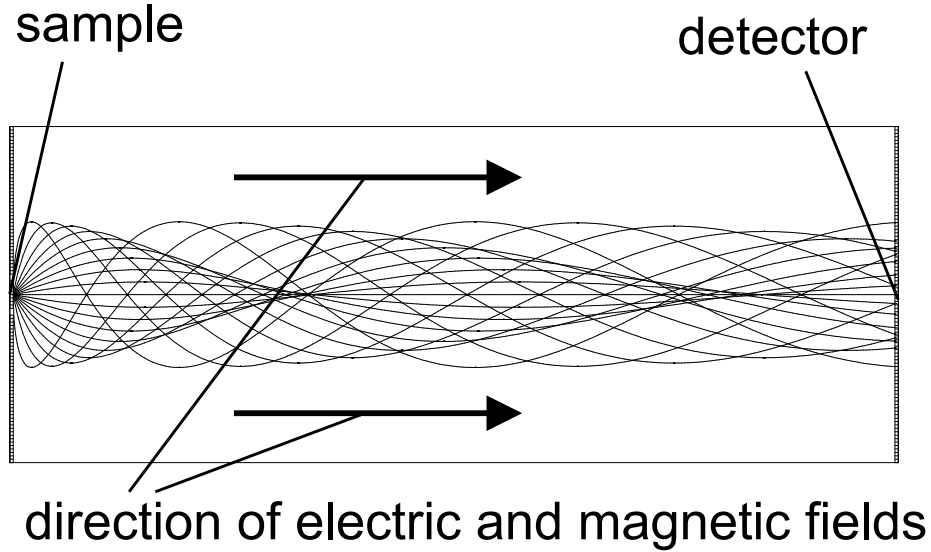


Abbildung 3.6: Simulation der Elektronen-Trajektorie im Spektrometer mit der Software SIMION 7.0.

$$\Delta k_{\perp} = \sqrt{\left(\frac{s}{t^2} + \frac{eE_z}{2m}\right)^2 (\Delta t)^2} \quad (3.12)$$

wobei  $s$  die Länge der Beschleunigungsstrecke,  $t$  die gesamte Flugzeit,  $E_z$  die elektrische Feldstärke,  $e$  und  $m$  Elektronenladung und Masse sowie  $\Delta t$  die Zeitauflösung ist. Die Zeitauflösung  $\Delta t$  setzt sich dabei aus den Beiträgen durch das Referenzsignal, des Multi-Channel-Plates, sowie des TDCs zusammen :

$$\Delta t = \sqrt{\Delta t_{\text{bunchmarker}}^2 + \Delta t_{\text{MCP}}^2 + \Delta t_{\text{TDC}}^2}. \quad (3.13)$$

Den größten Beitrag liefert dabei der verwendete TDC mit  $\Delta t_{\text{TDC}} = 0.5$  ns Zeitauflösung. Die Zeitauflösung des Multi-Channelplates an sich liegt bei ca.  $\Delta t_{\text{MCP}} = 200$  ps, während die Genauigkeit des Referenzsignals im Allgemeinen bei  $< 50$  ps liegt und daher im Vergleich zu den anderen Beiträgen vernachlässigt werden kann.

Für die Auflösung der Impulse in der Ebene parallel zur Probe bzw. Detektoroberfläche ( $k_{\parallel}$ ) lässt sich aus (3.11) folgende Beziehung herleiten :

$$\Delta k_{\parallel} = \frac{m\omega}{2} \sqrt{\left[|\Delta r| \sqrt{1 + \left(\frac{\sin \omega t}{1 - \cos \omega t}\right)^2}\right]^2 + \left(r|\Delta t| \sqrt{\left[\frac{\omega \cos \omega t}{1 - \cos \omega t} - \frac{\omega \sin^2 \omega t}{(1 - \cos \omega t)^2}\right]^2}\right)^2}. \quad (3.14)$$

wobei  $\omega$  die Zyklotron-Frequenz der Elektronen im angelegten Magnetfeld ( $\omega = e/mB$ ),  $t$  die gesamte Flugzeit,  $m$  die Elektronenmasse,  $r$  der Abstand der Auftreffortes von der Spektrometerachse, sowie  $\Delta r$  die Ortsauflösung ist. Der erste Term unter der Wurzel beschreibt den Fehler durch die Unsicherheit in der Ortsbestimmung, während der zweite durch die Unsicherheit in der Flugzeitbestimmung gegeben ist. Auch hier besteht  $\Delta r$  aus den verschiedenen Beiträgen aus Ungenauigkeit im Startort  $\Delta r_{Start}$  (gegeben durch die Größe des Strahlflecks auf der Probe) und Ortsbestimmung auf dem Detektor  $\Delta r_{Detektor}$ .  $\Delta r_{Start}$  lässt sich leicht über die Kollimation in der Strahlführung einstellen, wobei allerdings ein Kompromiss aus Strahlfleckgröße und Photonenfluss gefunden werden muss. Der Wert von  $\Delta r_{Start}$  liegt dabei bei etwa 0.3 mm. Die Ortsauflösung des Detektors ist wiederum durch die Zeitauflösung des TDCs gegeben, da die Orte über die Laufzeiten der Signale auf der Verzögerungsleitung bestimmt werden.  $\Delta r_{Detektor}$  bewegt sich hierbei ebenfalls im Bereich von 0.3 mm.

Zusätzlich wird durch das vor dem MCP montierte Gitter zur Abtrennung der verschiedenen Feldbereiche die Ortsauflösung begrenzt (maximal in der Größenordnung der Maschenweite von  $250\mu\text{m}$ ). Durch den Feldsprung entstehen hier Mikro-Linsen, die die Trajektorie beeinflussen können. Dieser Effekt ist allerdings wesentlich ausgeprägter für langsame Ionen, als für Elektronen, da hier aus experimentellen Gründen (Nachweiseffizienz der Detektoren) ein größerer Feldsprung entsteht. Der Einfluss dieses Feldsprungs auf die Flugzeit ist für Elektronen vernachlässigbar klein. Eine ausführliche Simulation dieser Effekte findet sich in [SCÖ02]

Die Wahl der elektrischen und magnetischen Felder legt schließlich die erreichbare Auflösung des Spektrometers fest. In der Messung wurde ein Absaugfeld von  $E_z = 7.81\text{V/cm}$  sowie ein Magnetfeld von  $B_z = 10.8$  Gauß verwendet. Damit liegt die maximal mögliche Auflösung in  $k_{\parallel}$  (atomare Einheiten) bei  $\Delta k_{\parallel} = 2.2 \times 10^{-2} a.u.$ . Für  $\Delta k_{\perp}$  ergeben sich Werte von  $\Delta k_{\perp} = 0.01 a.u.$  bei  $k_{\perp} = 0.5 a.u.$  und  $\Delta k_{\perp} = 0.03 a.u.$  bei  $k_{\perp} = 2.0 a.u.$ .

Um einen besseren Überblick über die Energie- und Winkelauflösung zu bekommen, die sich aus den Fehlern in der Impulsbestimmung ergeben, wurden die Diagramme in Bild 3.7 berechnet, die den jeweiligen Fehler im Polarwinkel  $\theta$  sowie der kinetischen Energie  $E$  farbkodiert wiedergeben. Hierfür wurden die Feldeinstellungen der späteren Messung verwendet, wobei  $|E| = 7.81 \text{ V/cm}$  sowie  $|B| = 10.8 \text{ Gauß}$ . Um eine brauchbare Auflösung zu erreichen, sollte sich die gesamte Flugzeitverteilung innerhalb einer Zyklotron-Periode bewegen. Liegt ein Teil der Flugzeiten im Bereich eines solchen Knotens (siehe Abbildung 4.5), so sind diese Ereignisse praktisch nicht verwertbar, da keinerlei Auflösung auf die Impulse parallel zur Oberfläche vorhanden ist. Hierzu ist in

Abbildung 3.8 die Auflösung des Spektrometers für ein Extraktionsfeld von 1.95 V/cm dargestellt. Durch das niedrigere Feld ist hier die Flugzeitverteilung der Elektronen über mehrere Zyklotron-Perioden ausgedehnt. Zwar lässt sich dadurch die Auflösung in manchen Bereichen des Phasenraums verbessern, allerdings ergeben sich auch wesentliche Nachteile. Die dunklen Bereiche entsprechen hier Elektronentrajektorien, die durch das Magnetfeld wieder auf einen Punkt fokussiert werden. Für die spätere Auswertung können diese Ereignisse wegen der verschwindenden Auflösung nicht verwendet werden und müssen verworfen werden. Betrachtet man zusätzlich noch koinzidente Ereignisse, so werden dadurch recht komplizierte Schnitte in den Phasenraum der beiden Elektronen hervorgerufen, die eine spätere Interpretation der Spektren wesentlich erschweren.

Systematische Fehler können zusätzlich noch durch die Orientierung der Probe entstehen, falls der Abschluss der Probenoberfläche nicht exakt mit der des Spektrometerabschlusses übereinstimmt (durch Verschiebung oder Verkippung). Bleibt die Abweichung allerdings unterhalb der Toleranzen, die bei der Justierung der Probe entstehen ( $< 0.5$  mm in der Position und ca.  $2^\circ$  im Winkel) so ist der Einfluss auf die Orts- oder Zeitauflösung vernachlässigbar gegenüber den anderen genannten Fehlerquellen.

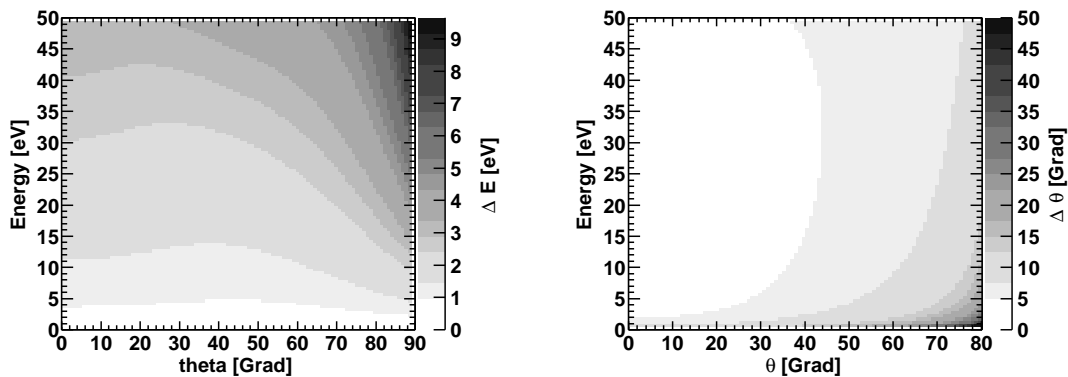


Abbildung 3.7: Energie- und Winkelauflösung des Spektrometers in Abhängigkeit von Energie und Emissionswinkel (Polarwinkel) für ein Extraktionsfeld von 7.81 V/cm (Ortsauflösung 0.4 mm, Zeitauflösung 0.5 ns). Die jeweilige Auflösung ist als Grauwert kodiert.

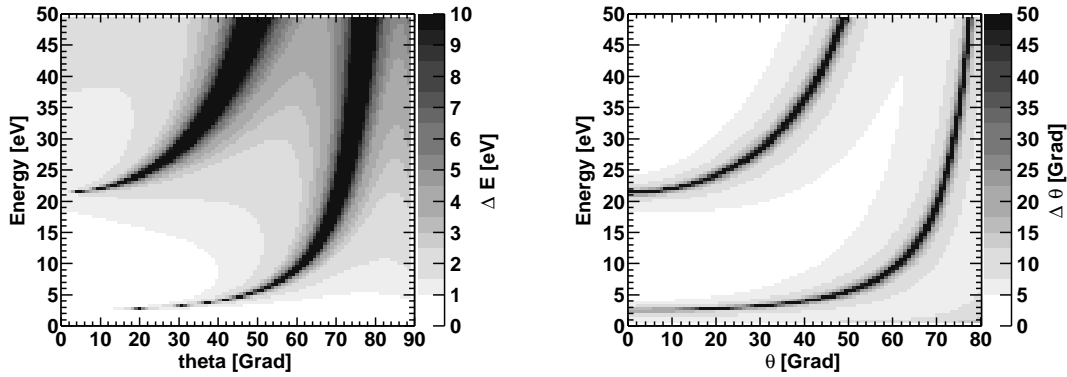


Abbildung 3.8: Energie- und Winkelaufösung des Spektrometers in Abhängigkeit von Energie und Emissionswinkel (Polarwinkel) für ein Extraktionsfeld von 1.95 V/cm (Ortsauflösung 0.4 mm, Zeitaufösung 0.5 ns). Die jeweilige Auflösung ist als Grauwert kodiert.

### 3.2.3 Simulation des Spektrometers

Für die korrekte Rücktransformation der gemessenen Werte  $(x, y, t)$  in die Anfangsimpulse  $(p_x, p_y, p_z)$  ist es natürlich unerlässlich, dass die Rechnung mit korrekten Annahmen durchgeführt wird. Um den Einfluss von Störeffekten auf die Elektronen-Trajektorie abzuschätzen, wurden die Flugbahnen numerisch simuliert. Dazu werden verschiedene Energie- und Winkelverteilungen für die Elektronen angenommen und die Flugbahn iterativ berechnet. Die so erhaltenen Flugzeiten und Auftrefforte können nun wiederum verwendet werden, um auf die Startimpulse zurück zu schließen (siehe Abb. 3.9). So lässt sich beispielsweise der Einfluss der Strahlfleckgröße oder die Parallelität der elektrischen und magnetischen Felder auf die Auflösung des Spektrometers untersuchen. Schließlich können so auch verschiedene Algorithmen zur Korrektur von Störeffekten getestet werden bzw. die Software-Analyse an sich.

#### Alternative Designs für Flugzeitspektrometer

Das vorgestellte Spektrometer ist eine der Möglichkeiten der Realisierung eines Flugzeitspektrometers mit kombinierter Orts- und Flugzeit-Messung. Alternativ sind aber auch andere Designs denkbar.

Beispielsweise könnte ganz auf den Einsatz eines Extraktionsfeldes verzichtet werden (unter Beibehaltung des  $\vec{B}$ -Feldes, da die Elektronen in der Emission von einer Oberfläche naturgemäß auf den Detektor zufliegen würden. Dies führt allerdings zu

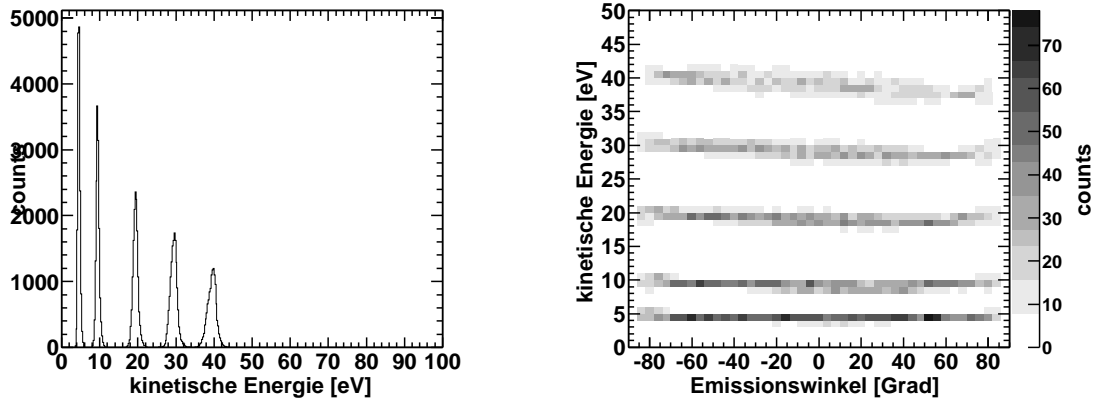


Abbildung 3.9: Simulation der Auflösung des Spektrometers. Links: simulierte Energieverteilung für diskrete Werte der Energie, rechts: Energie gegen Emissionswinkel.

Problemen, wenn die Zeit zwischen zwei Projektilpulsen kleiner ist als die Flugzeit der Elektronen. In diesem Fall kann es zu Verwechslungen zwischen den langsamen Elektronen des ersten Pulses mit den schnellen des zweiten Pulses kommen.

Eine weitere, bereits getestete, Variante ist die Verwendung eines linear ansteigenden elektrischen Feldes ohne zusätzliches Magnetfeld [SCI01]. Der besondere Vorteil bei diesem Design liegt darin, dass durch die Inhomogenität des elektrischen Feldes eine Linseneffekt erzeugt wird, der zu einer Fokussierung der Startorte (aufgrund der Ausdehnung des Strahlflecks) erreicht werden kann. Um allerdings Elektronen nur über das elektrische Absaugfeld mit Energien bis 50 eV vollständig auf den Detektor zu projizieren, sind relativ grosse Feldstärken nötig. Dies hat wiederum eine geringere Auflösung entlang der Flugzeitrichtung zur Folge sowie eine geringe Flugzeitdifferenz für koinzident emittierte Elektronenpaare, was die Mehrfachhit-Akzeptanz des Spektrometers begrenzt. Zusätzlich wird die Rückrechnung der Trajektorie des Elektrons im Spektrometer durch das inhomogene Feld deutlich erschwert.

### 3.3 Der Detektor

Der Detektor setzt sich aus zwei wesentlichen Teilen zusammen: In der ersten Stufe die Vervielfachung des einfallenden Elektrons zu einer elektronisch messbaren und verarbeitbaren Größe und anschließend die Ortsbestimmung auf einem Kollektor (Anode).

Zur Vervielfältigung und Nachweis der Elektronen wird ein Vielkanalplatten-Detektor ("multi channel plate", MCP) verwendet. Das Funktionsprinzip dieser Detektoren basiert auf der Vervielfältigung eines Primärelektrons in einer Sekundärelektronenlawine. Die Oberfläche eines MCPs besteht aus zahlreichen ca.  $25\mu\text{m}$  breiten Kanälen, über die eine Spannung von ca. 1000 V angelegt wird. Trifft ein Elektron in einen der Kanäle werden in der Wand Sekundärelektronen ausgelöst, die wiederum beschleunigt werden und weitere Elektronen auslösen. Dies führt schließlich zu einer Elektronenlawine, die elektronisch verstärkt und weiterverarbeitet werden kann. Üblicherweise werden zwei oder drei MCP-Einheiten hintereinander geschaltet. Der Verstärkungsfaktor liegt im Bereich von  $10^6$  bis  $10^7$ . Die Halterung geschieht zwischen zwei Keramik-Ringen, auf die die Hochspannungskontakte aufgedampft sind.

Die Ortsinformation wird mit Hilfe der Anode gewonnen, die die Elektronenlawine des MCPs aufgesammelt. Es existieren mehrere mögliche Anodentypen, die eine Ortsbestimmung ermöglichen. Ältere ortsauflösende Detektorsysteme verwenden an dieser Stelle häufig Widerstandsanoden ("resistive anode"), bei der der Auftreffort über die Wägung der Ladungslawine auf einer Metallschicht bestimmt wird. Ebenso kommen, auf Grund ihres geometrischen Musters, so genannte "wedge-and-strip"-Anoden zum Einsatz. Hier wird die Ladungslawine auf verschiedenen isolierte Metallflächen gesammelt und deren Pulshöhe verglichen, was ebenfalls eine Ortsbestimmung ermöglicht. Diese beiden Anodentypen sind für das vorliegende Experiment allerdings nicht anwendbar, da hier ladungsempfindliche Verstärker zum Einsatz kommen, die wegen ihrer vergleichsweise langen Integrationszeit ( $\mu\text{s}$ ) und der sich anschließenden langsamen Elektronik keine Mehrfach-Hit-Akzeptanz (innerhalb der benötigten  $< 50\text{ ns}$ ) besitzen. Bei dem in diesem Experiment verwendeten Detektortyp wird die Ortsbestimmung mit einer Verzögerungsleitung ("delay line") erreicht. Wesentlich ist bei diesem Typ, dass die Ortsberechnung nicht mehr über den Vergleich von Pulshöhen geschieht, sondern über eine Zeitmessung, die wesentlich präziser durchgeführt werden kann.

Das Prinzip der Ortsbestimmung ist in Abbildung 3.10 a) dargestellt. Das auf das MCP auftreffende Elektron wird zunächst über den oben beschriebenen Prozess vervielfältigt. Anschließend wird die an der Rückseite austretende Elektronenlawine weiter auf die Drahtstruktur der Andode beschleunigt. Auf dem Draht bilden sich zwei Pulse aus, die zu den jeweiligen Enden der Leitung laufen. Die Position  $x$  des Auftreffortes lässt sich dann sehr leicht aus der Zeitdifferenz der Signale  $t_{1,2}$  bestimmen :

$$x = c(t_1 - t_2) \quad (3.15)$$

Aufgrund der konstanten Ausbreitungsgeschwindigkeit der Signale  $c$ , kann so die



Zeitmessung direkt in eine Ortsmessung umgewandelt werden.

In der praktischen Ausführung besteht die Verzögerungsleitung allerdings aus zwei parallel gewickelten, voneinander isolierten Wicklungen. Dies erfüllt gleichzeitig zwei Funktionen: zum einen kann so das Signal verlustarm, nach dem Prinzip der Lecher-Leitung, über die Anode transportiert werden, zum anderen dient sie der Rauschunterdrückung. Um eine effektive Unterdrückung des Rauschens zu erreichen, wird durch geeignete Wahl der Spannungen auf den Drähten, die Elektronen-Lawine des MCP nur auf einem der Drähte gesammelt. Typischerweise wird hier eine Spannungsdifferenz von 20-40 V angelegt. Wegen der parallelen Wicklung sind die eingekoppelten Störsignale auf beiden Leitungen nahezu identisch. Wird die Lawine nun lediglich auf einem Draht absorbiert, so kann in der anschließenden Differenzverstärkung der Signale der Drahtenden, der Untergrund praktisch vollständig beseitigt werden, während der zu messende Puls erhalten bleibt. Im hier verwendeten Detektor wird die Differenzverstärkung über Pulstransformatoren erreicht, deren Ausgang auf einen nachfolgenden schnellen Vorverstärker (2 GHz Bandbreite) gegeben wird (siehe auch Abb. 3.11).

Zur Berechnung der Position werden zwei unabhängige Koordinaten benötigt, d.h. jeweils eine Drahtwicklung für X- als auch Y-Richtung. Delay-line-Anoden dieses Typs werden bereits häufig eingesetzt und sind für die meisten Experimente ausreichend. Im hier vorliegenden Fall allerdings werden besondere Ansprüche an die Mehrfach-Hit-Akzeptanz gestellt. Da die maximale Flugzeitdifferenzen der Elektronen bis zum Detektor nur  $\sim 20$  ns beträgt, treten zusätzliche Schwierigkeiten auf. Bei kurzen Flugzeitdifferenzen und kleinen Ortsdifferenzen der Elektronen kann es zum Überlapp der Signale kommen und die nachfolgende Elektronik ist nicht mehr in der Lage, diese Signale getrennt zu verarbeiten, so dass nur noch einer der Pulse weitergeleitet wird. Dies hätte zur Folge, dass eine Vielzahl von Ereignissen nicht verwertbar wären. Eine Möglichkeit zur Umgehung dieses Problems ist der Einbau einer dritten Drahtebene. Auf diese Weise ist es möglich, den Auftreffort auf verschiedene Methoden zu berechnen, da nun eine Überbestimmung vorliegt. Sind  $p_{1,2,3}$  die Positionen auf den jeweiligen Wicklungen so kann der Ort beispielsweise folgendermaßen berechnet werden:

$$\begin{aligned} x_1 &= p_1 \\ y_{23} &= \sqrt{\frac{1}{3}}(p_2 + p_3) \end{aligned} \tag{3.16}$$

$$y_{12} = \sqrt{\frac{1}{3}}(2p_2 - p_1) \tag{3.17}$$

wobei noch weitere Kombinationen möglich wären, indem eine jeweils andere Ebene als X-Richtung verwendet wird. Zusätzlich zum Problem des Signalüberlapps, kommt es zur Vertauschung der logischen Signalreihenfolge (siehe Abb. 3.10 b)), d.h. das erste detektierte Anoden-Signal am Ende einer Wicklung stammt unter Umständen von einem Elektron, das eigentlich eine längere Flugzeit als das vorangegangene hatte. Diese Vertauschung erfordert in der späteren Analyse eine Überprüfung der Signale. Hierauf wird in Kapitel 4 näher eingegangen.

### 3.4 Vakuumsystem

Um eine ausreichend lange Stabilität der Probe im Vakuum zu gewährleisten, müssen die Experimente im Ultra-Hochvakuum durchgeführt werden. Da bei einem Haftkoeffizienten von  $S = 1$  und einem Gasangebot von  $10^{-6}$  mbar die Wiederbelegungszeit der Oberfläche lediglich 1s beträgt, sind Restdrücke im Bereich von  $< 10^{-10}$  mbar erforderlich. Glücklicherweise ist der Haftkoeffizient der meisten Gase auf Kupfer bei Raumtemperatur deutlich geringer als 1, so dass ein Restvakuum von  $< 5 \times 10^{-10}$  mbar ausreichend ist, um über mehr als 10 Stunden eine saubere Oberfläche zu erhalten. Die in diesem Experiment verwendete Vakuum-Kammer der Firma Varian wurde ursprünglich als Komplett-System für Auger-Untersuchungen an Oberflächen konzipiert. Für die Anforderungen des hier vorgestellten Experimentes wurden daher einige Umbauten am Gestell und der Ausstattung der Kammer durchgeführt. Einen Überblick des gesamten Aufbaus gibt Abbildung 3.2. Die Kammer besteht dabei im Wesentlichen

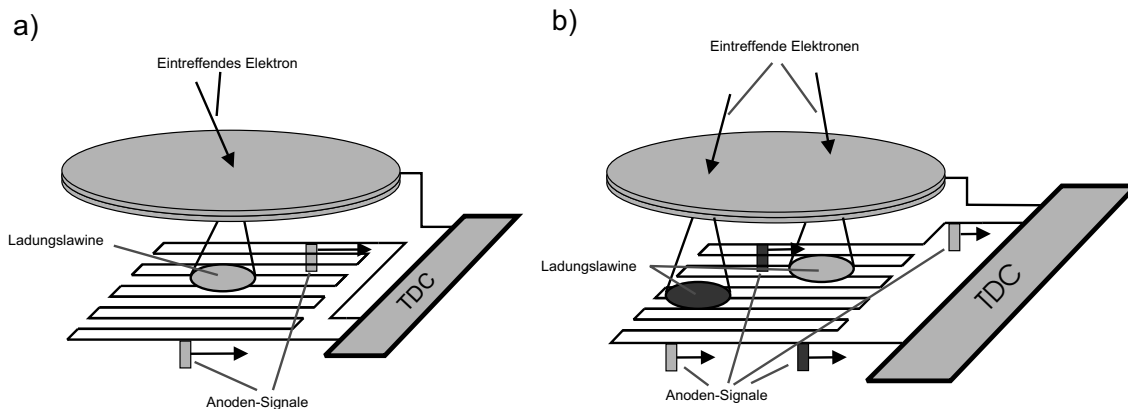


Abbildung 3.10: Schematisches Prinzip der Ortsbestimmung über eine Verzögerungsleitung. a) Detektion einzelner Elektronen, b) Nachweis eines Mehrelektronen-Ereignisses.

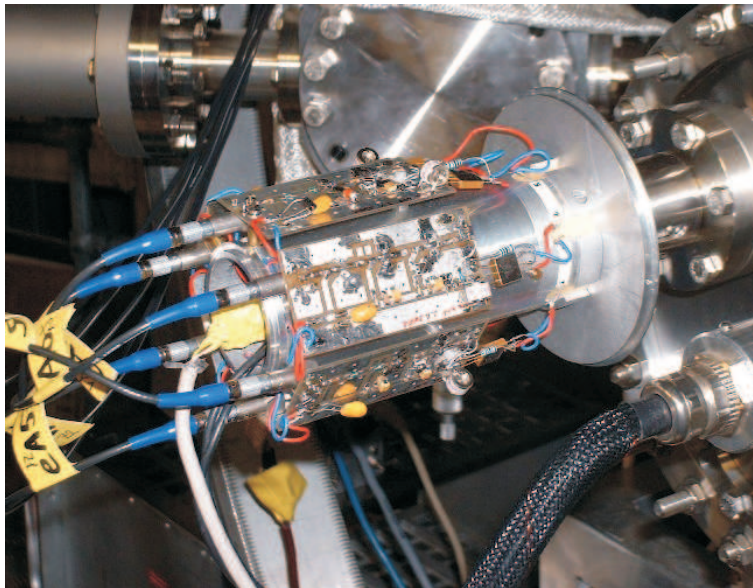


Abbildung 3.11: Photographie der Einheit zur Auskopplung und Differenzverstärkung der Signale. Die Einheit wird direkt an Hochspannungsdurchführung aus der Kammer montiert, um kurze Signalwege zu gewährleisten.

aus zwei Abschnitten. Im oberen Teil der Kammer wird die Reaktion der Photonen mit der Probe untersucht, während der untere Teil lediglich der Vakuum-Erzeugung und Erhaltung dient. Für das Vorvakuum wird eine Scroll-Pumpe (Varian) verwendet, die einen Druckbereich von etwa  $1 \times 10^3$  mbar erreicht. Danach folgt eine 260 l/sec Turbomolekular-Pumpe (Pfeiffer), die das erforderliche Ultra-Hochvakuum erzeugt. Um kürzere Pumpzeiten zu erreichen, kann im unteren Teil der Kammer eine Batterie aus Ionenpumpen (Varian) hinzu geschaltet werden. Diese muss allerdings während des eigentlichen Experimentes ausgeschaltet werden, da hierdurch eine große Anzahl von Streuelektronen erzeugt werden, die die Koinzidenzmessung wesentlich stören. Zur Erhaltung eines niedrigen Restgasdrucks, befindet sich zusätzlich eine Titansublimationspumpe im unteren Kammerbereich, die periodisch im Abstand von einigen Stunden betrieben wird.

Um zunächst eine gutes Grundvakuum zu erhalten, wurde die Vakuum-Kammer bei ca.  $180^\circ$  C für etwa 20 Stunden ausgeheizt. Mit dem beschriebenen System konnte der Restdruck in der Kammer stets unterhalb von  $5 \times 10^{-10}$  mbar gehalten werden.

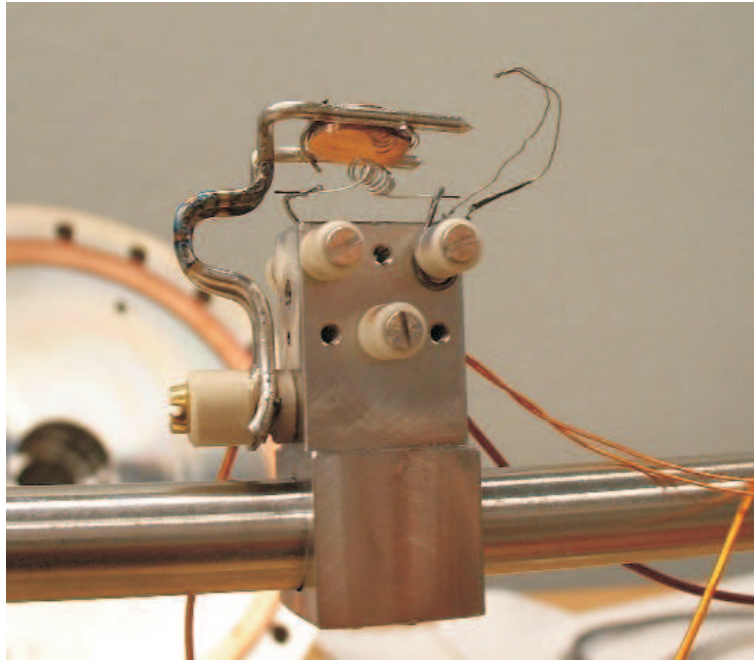


Abbildung 3.12: Montage der Probe auf dem Halter. Zu erkennen ist der Montageblock mit Titan-Gabel zur Halterung des Kupfer-Kristalls. Das Heizfilament ist unterhalb der Probe befestigt, während das Thermoelement (frei hängender Draht oben rechts) noch nicht mit der Probe verbunden ist.

### 3.5 Einbau und Präparation der Probe

Der in diesem Experiment verwendete Kupfer-Kristall wurde vom Max-Planck-Institut für Mikrostrukturphysik in Halle zur Verfügung gestellt. Dieser besitzt einen Durchmesser von etwa 8 mm und eine Dicke von ca. 3mm. Für die Messung wird der Kristall auf einer Gabel aus Titandraht befestigt, welcher an einem Halter aus Edelstahl montiert ist (siehe Abb. 3.12). Dieser lässt sich über einen 4-Achsen-Manipulator in die jeweilige Position bewegen. Für eine Messung wird der Kristall wie in Abbildung 3.13 positioniert. In der Spektrometer-Abschlussplatte befindet sich eine Öffnung von 3 cm Durchmesser. In diese wird ein weiterer Ring eingesetzt, der auf eine Dicke von 0.5 mm gefräst wurde und eine Öffnung von 0.9 mm besitzt. Dies hat den Vorteil, dass nicht das gesamte Spektrometer bei Verwendung einer Probe anderer Größe oder Typs umgebaut werden muss, sondern lediglich das Einsatzteil. Durch die rückwärtige Ausfräsung kann die Probe nun so positioniert werden, dass die Oberfläche der Probe exakt mit der Oberfläche des Spektrometers abschließt (siehe Abb. 3.13).

Zur Reinigung wird der Kristall aus der Spektrometer-Öffnung heraus gefahren und auf

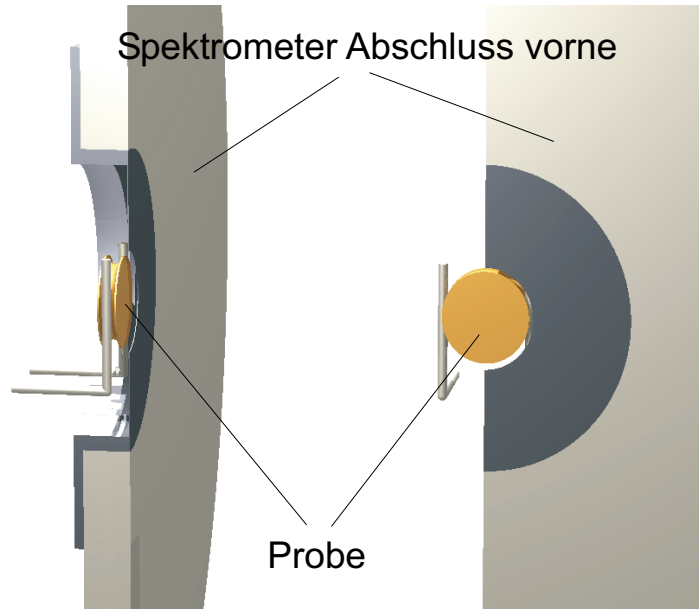


Abbildung 3.13: Positionierung der Probe im Spektrometer. Links : Seitenansicht (Schnitt), rechts Ansicht von vorne. Durch das sehr dünn gefräste Einsatzteil, kann die Probe so positioniert werden, dass deren Oberfläche mit der Vorderseite der Spektrometer-Abschlussplatte zusammenfällt.

eine, ebenfalls in der Kammer vorhandene, Ionenkanone ("sputter gun") gerichtet. Diese erzeugt bei Gaseinlass von Argon bei einem Druck von wenigen  $1 \times 10^{-6}$  mbar einen Ionenstrahl, der unter einem Winkel von ca.  $45^\circ$  auf die Probe trifft. Durch den Einschlag der Ionen auf die auf der Oberfläche befindlichen (Adsorbat-)Atome aus dem Restgas, werden diese durch elastische Stöße abgetragen ("sputter cleaning"). Typischerweise kommen dabei Ionenströme (bzw. Stromdichten) von  $j_{Ion} = 1 \times 10^{-6}$  A/cm<sup>2</sup> zum Einsatz, welche über einen Kontakt am Probenhalter überwacht werden können. Die dadurch abgetragene Oberflächenschicht lässt sich folgendermaßen abschätzen. Die Abtragungsausbeute "sputter yield") für Ar<sup>1+</sup> Ionen im verwendeten Energiebereich (ca. 1 keV) beträgt etwa  $Y_{Ion} \sim 1 \text{ Atom}/\text{Ion}$ , während die Flächendichte einer Monolage etwa  $\rho_{Monolage} \sim 10^{15}$  Atome/cm<sup>2</sup> beträgt. Damit ergibt sich die Zeit zur Abtragung einer Monolage

$$T_{Monolage} = \frac{q}{Y_{Ion} I_{Ion}} \rho_{Monolage} \approx 160s \quad (3.18)$$

Um eine gleichmäßige Bestrahlung der Oberfläche zu gewährleisten, wird der Ionenstrahl zusätzlich durch eine automatische Steuerung periodisch über die Probe bewegt.

Nach der Zerstäubungsreinigung wird der Kristall durch eine Elektronenstoßheizung kurzzeitig auf eine Temperatur von ca.  $500 - 550^\circ\text{C}$  aufgeheizt. Dies führt zu einem Ausheilen der Oberfläche, die durch das Zerstäubungsreinigen mikroskopisch aufgeraut wurde. Zu diesem Zweck ist hinter der Probe ein Filament aus Wolfram angebracht, das mit einem Strom von 3-4 A betrieben wird. Die am Filament durch Glühemission freigesetzten Elektronen werden schließlich mit einer an der Probe angelegten Spannung von 1 kV auf die Rückseite der Probe beschleunigt.

Um eine saubere Probe zu erhalten, wurden nach dem ersten Einbau mehrere Reinigungszyklen durchgeführt, bestehend aus etwa 20 Minuten Zerstäubungsreinigen, sowie anschließendem Heizen der Probe. Der Erfolg der Reinigungsprozesse kann direkt in den winkelaufgelösten Einfach-Photoemissionspektren verfolgt werden (siehe dazu Abbildung 3.14). Nachdem eine ausreichend saubere Oberfläche hergestellt wurde, wird die Probe ca. alle 8 Stunden einem weiteren Reinigungszyklus unterzogen. Da der Haftkoeffizient von Kupfer bei Zimmertemperatur typischerweise im Bereich  $< 10^{-3}$  liegt, ist dieser Abstand zwischen den Reinigungsvorgängen ausreichend. Es konnte kein Unterschied in den Spektren festgestellt werden, die unmittelbar vor bzw. nach einer Reinigung aufgenommen wurden.

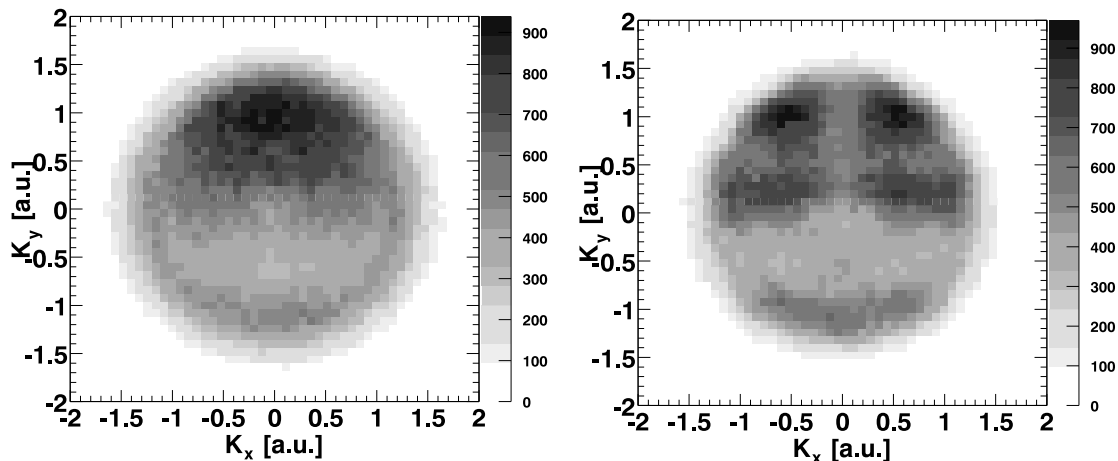


Abbildung 3.14: Effekt der Probenreinigung auf die Impulsverteilung der Elektronen. Gezeigt sind die Impulskomponenten in der Oberflächenebene (XY-Ebene) im Bereich von 0-10 eV Bindungsenergie ( $\hbar\omega = 40$  eV). Links : Spektrum vor Reinigung der Probe, rechts : nach zwei Sputter/Heiz-Zyklen. Insgesamt wurden beim ersten Einbau 6 Zyklen durchgeführt.

## 3.6 Elektronik

Die Verschaltung der für die Datenaufnahme nötigen Schaltelektronik gestaltet sich relativ einfach, da "nur" zwei Elektronen gemessen werden sollen. Das Schaltbild gestaltet sich dann wie in Abbildung 3.15. Die Signale der Anodenenden sowie des MCPs werden zunächst über ein RC-Glied (RC in der Zeichnung) von der Hochspannung (HV) führenden Leitung entkoppelt. Anschließend folgt die Verstärkung in einem Differenzverstärker (Differenzbildung der Signal-/Referenzdrähte) bzw. einem herkömmlichen schnellen Verstärker (IKF-Eigenbau). Nach der Diskriminierung und Umwandlung der Signale in einem "Constant Fraction Discriminator" (CFD, Ortec 938) werden die Signale der Anode direkt auf den "Time-to-Digital-Converter" (TDC, Roentdek mit LeCroy Chip) zum Start der einzelnen Kanäle gegeben. Der TDC kann bis zu 16 Hits über eine Zeit von  $32 \mu\text{s}$  mit einer Auflösung von  $0.5 \text{ ns}$  pro Kanal aufzeichnen. Er wird im "COMMON-STOP" -Modus betrieben, d.h. die Kanäle werden mit individuellen Signalen gestartet und alle gleichzeitig durch ein einzelnes Signal gestoppt. Das Signal des MCPs wird verzweigt (FAN), wobei eines ebenso einen TDC-Kanal startet, während das andere für die Koinzidenz mit dem Signal des Synchrotrons verwendet wird. Dieses "bunch-marker"-Signal wird am Messplatz in Form eines logischen Pulses zur Verfügung gestellt. Auch dieses Signal wird verzweigt, wobei eines einen weiteren Kanal des TDCs startet. Zur Verschaltung der Koinzidenz wird nun in beide der übrigen Signalwege (MCP und bunch-marker) eine Verzögerung (delay) eingefügt. Die beiden Signale werden so zu einem zeitlichen Überlapp gebracht, wobei das erlaubte Zeitfenster auf etwa  $100 \text{ ns}$ , was der grob der maximalen Flugzeit der Elektronen im Spektrometer entspricht, eingestellt wird 3.24. Diese beiden Signale werden auf ein logisches AND gegeben, dessen Ausgang das COMMON-STOP-Signal des TDCs darstellt. Diese Koinzidenzschaltung ist allerdings für dieses Experiment nicht zwingend notwendig. Da die Wiederholfrequenz des Synchrotrons bei etwa  $5 \text{ MHz}$  liegt, die einzelnen Pulse also einen zeitlichen Abstand von  $200 \text{ ns}$  besitzen, beträgt die Unterdrückung des statistischen Untergrundes lediglich etwa  $50 \%$ .

Bei der Verschaltung der Elektronik wird aus zwei Gründen auf die Verwendung einer expliziten Zwei-Elektronen-Koinzidenz verzichtet. Zum einen würde durch die Verwendung einer Überlapp-Koinzidenz eine kurze Totzeit in der Größenordnung der Signalbreite der CFDs erzeugt, die in der späteren Analyse nicht mehr korrigiert werden kann. Zum anderen würde dies bei der Reduktion von Untergrund nur bedingt hilfreich sein. Wie bereits zuvor erwähnt (siehe auch Kapitel 4 zur Datenanalyse), besteht der Untergrund hauptsächlich aus Ereignissen, in denen zwei Elektronen durch zwei Photonen

erzeugt wurden. Diese Ereignisse sind allerdings von den erwünschten - zumindest an dieser Stelle der Datenaufnahme - nicht trennbar. Zusätzlich können so die ebenfalls in den Daten vorhandenen Ereignis aus Einfach-Photoemission gleichzeitig mit ausgewertet und für die Eichung des Spektrometers verwendet werden. Dadurch wird zwar - für ein typisches atomphysikalisches Experiment - ein relativ großer Datenanfall erzeugt (ca. 500 MB pro Stunde), der aber kein wesentliches Problem darstellt.

## 3.7 Synchrotron und Strahlpräparation

Die Entwicklung von Synchrotron-Strahlungsquellen war ein wesentlicher Meilenstein für viele Bereich der physikalischen Grundlagenforschung. Sie liefern eine kontinuierlich durchstimmbare, intensive Quelle elektromagnetischer Strahlung vom Infrarot- bis in den Röntgenbereich, sowie eine sehr gut definierte Zeitstruktur. Damit sind sie in verschiedensten Disziplinen wie der Photoelektronen-Spektroskopie an Gasen oder Festkörper-Oberflächen, Kristallographie oder Mikroskopie nicht mehr wegzudenken. In den nächsten Abschnitten sollen daher die Grundlagen der Erzeugung von Synchrotron-Strahlung sowie deren Bereitstellung für Experimente beschrieben werden.

### 3.7.1 Erzeugung und Charakterisierung von Synchrotron-Strahlung

Während die Erzeugung von Strahlung in einem Synchrotron ursprünglich nur als unerwünschter Nebeneffekt bei der Speicherung hochenergetischer Teilchen angesehen wurde, stellte sich dies im Laufe der Entwicklung als Glücksfall für andere Bereiche der Physik heraus. Eine der ersten ausführlichen Beschreibungen der Erzeugung von Synchrotron-Strahlung findet sich in [TOM56]. Synchrotron-Anlagen der II. und III. Generation werden daher bereits einzig für die Erzeugung von Strahlung konstruiert. Die Erzeugung von Synchrotron-Strahlung beruht auf dem gleichen Prinzip wie die Strahlungserzeugung in einer Röntgenröhre, nämlich der Beschleunigung eines geladenen Teilchens. In beiden Fällen wird durch eine plötzliche Richtungsänderung der Flugbahn eines Elektrons die Emission von Strahlung erzwungen. Während in der Röntgenröhre die Ablenkung des Elektrons durch das Abbremsen im Feld eines Atomkerns (Bremsstrahlung) erreicht wird, so wird in einem Synchrotron diese Ablenkung durch äußere Magnetfelder erreicht. Die abgestrahlte Leistung eines Elektrons auf einer



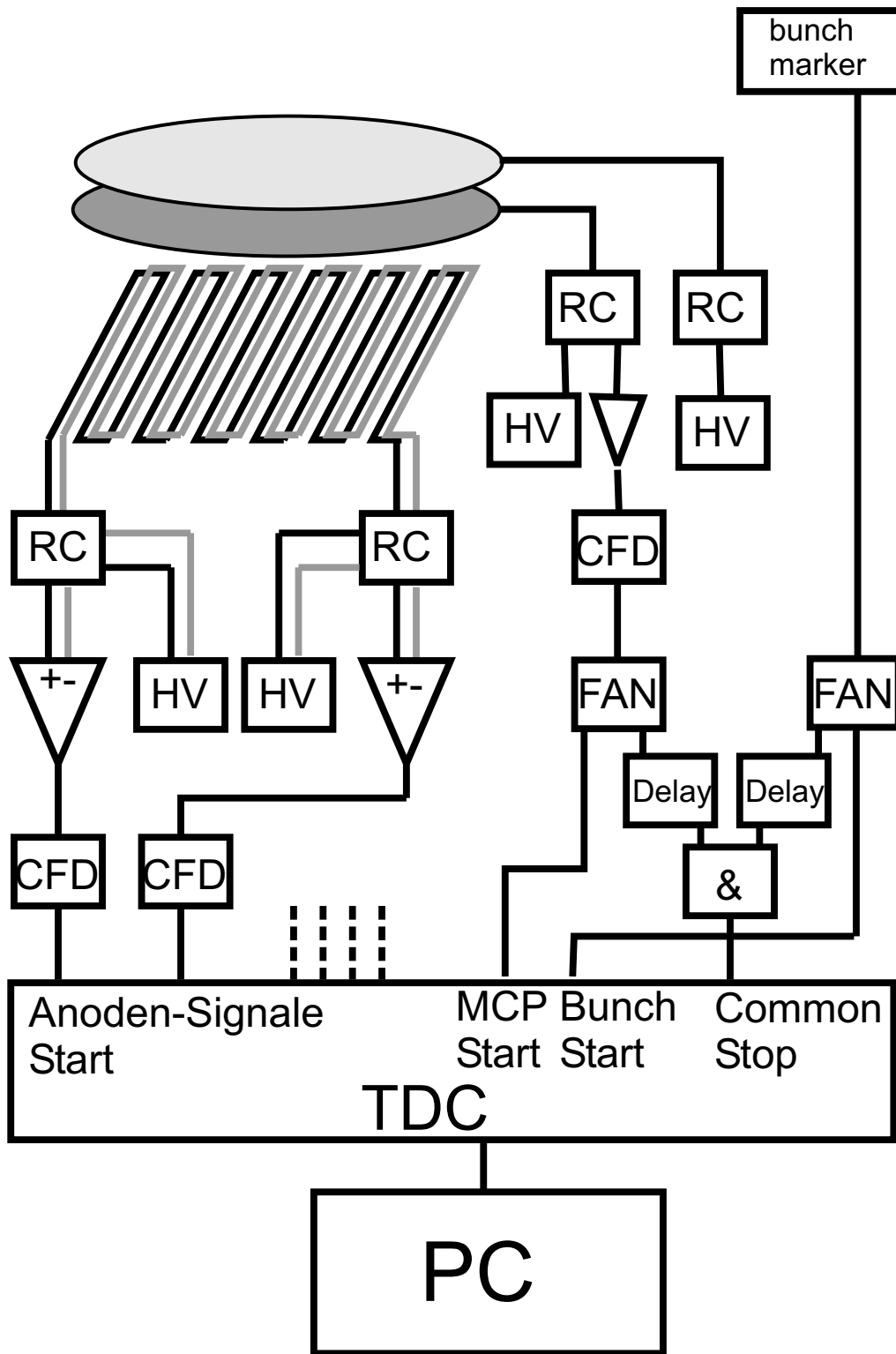


Abbildung 3.15: Skizze der Verschaltung der verwendeten Elektronik

Kreisbahn ist gegeben durch [BET90]

$$P = \frac{2e^2c}{3R^2} \frac{E^4}{(m_0c^2)^4} \quad (3.19)$$

An dieser Gleichung lassen sich bereits die wichtigsten Parameter zur effizienten Erzeugung von Synchrotron-Strahlung ablesen : die Leistung steigt stark mit der Elektronen-Energie  $E$  an, sowie mit kleinerem Radius  $R$  und kleinerer Masse  $m_0$  der Teilchen. Für die praktische Realisierung ist daher die Verwendung von Elektronen (oder Positronen) als leichteste geladene Teilchen bei möglichst hohen kinetischen Energien die Methode der Wahl. Die kinetischen Energien bewegen sich dabei üblicherweise in einem Bereich von  $> 1$  GeV. Da die Bewegung des Elektrons bei solchen Energien ultra-relativistisch ( $E_{kin} \gg m_0c^2$ ) behandelt werden muss, treten weitere, für die Strahlungserzeugung nutzbare, Effekte auf. Während die Strahlung bei niedrigen Geschwindigkeiten in einer Dipolkeule um die Beschleunigungsrichtung ausgesandt wird, wird bei hohen Geschwindigkeiten ( $v \approx c$ ) in einen engen Kegel in Vorwärtsrichtung - tangential zur Kreisbahn - emittiert (siehe Abb. 3.16). Die starke Ausrichtung der Strahlung ermöglicht dabei eine um viele Größenordnungen höhere Intensität der Strahlung auf der Probe, als dies ohne relativistische Effekte möglich wäre. Der Öffnungswinkel des Strahlungskegels ist durch

$$\theta = \sqrt{1 - \beta^2} = \frac{m_0c^2}{E} \quad (3.20)$$

gegeben. Die kritische Wellenlänge (Maximum in der spektralen Verteilung, siehe auch Abb. 3.17) lässt sich mit

$$E_c = \frac{4}{3}\pi R \left( \frac{m_0c^2}{E} \right)^3 \quad (3.21)$$

angeben [BET90].

Eine wichtige Größe zur Charakterisierung der Synchrotron-Strahlung ist der spektrale Fluss, d.h. die Anzahl der Photonen, die pro Sekunde und einer gegebenen Bandbreite emittiert werden. Üblicherweise wird der spektrale Fluss durch

$$\mathbf{Spektraler\ Fluss} = \frac{\mathbf{Photonen}}{\mathbf{sec} \times \mathbf{0.1\%} \Delta E/E} \quad (3.22)$$

definiert. Dies stellt allerdings eine sehr integrale Größe dar, da hier über alle Raumrichtungen integriert wird. Für die praktische Anwendung und Charakterisierung eines

Messplatzes an einer Synchrotron-Einrichtung ist daher auch die Divergenz des Strahles, sowie die Größe des Quellpunktes entscheidend. Die sich ergebende Größe wird im Allgemeinen als "Brillanz" bezeichnet und wird folgendermaßen definiert :

$$\mathit{Brillanz} = \frac{\mathit{Photonen}}{\mathit{mrad}^2 \times \mathit{mm}^2 \times \mathit{sec} \times 0.1\% \Delta E/E} \quad (3.23)$$

Zur Speicherung werden die Elektronen dazu zunächst in einem Booster-Synchrotron vorbeschleunigt. Danach folgt die Injektion in den Speicherring. Dieser besteht im wesentlichen aus den Magnetstrukturen zur Strahlungserzeugung, sowie Beschleunigerkavitäten, in denen dem Strahl die verlorene Energie wieder zugeführt wird. Durch die Einkopplung der Hochfrequenz zur Beschleunigung der Teilchen, ist die Strahlintensität nicht kontinuierlich, sondern auf mehrere einzelne Pakete ("buckets") verteilt. Läuft eines der Teilchenpakete aus seiner Sollposition heraus, so wird es durch das Wechselfeld entweder leicht beschleunigt oder abgebremst, so dass es sich wieder in der richtigen Phasenlage befindet (siehe Abb. 3.18). Je nach Umlauffrequenz und eingekoppelter Hochspannung, befinden sich so wenige hundert dieser Pakete im Speicherring. Da es für viele Messungen von Vorteil ist, ein definiertes Referenzsignal mit einem Abstand von einigen 100 ns z.B. für eine Flugzeitmessung zu haben, werden häufig nicht alle dieser buckets gefüllt sondern lediglich einige wenige in einem festen zeitlichen Abstand ("single-" oder "double-bunch"-Modus). Dadurch wird die Synchrotron-Strahlung nicht quasi-kontinuierlich (wie im "multi-bunch"-Modus) abgegeben, sondern in nur kurzen Strahlungsblitzen denen jeweils eine Dunkelphase folgt. Für die Lebensdauer des im Speicherring umlaufenden Elektronenpaketes sind verschiedene Prozesse verantwortlich. Zum einen führen die Stöße der Elektronen mit dem Restgas zum Verlust einzelner Elektronen aus den buckets. Zusätzlich werden durch die negative Raumladung des Elektronenstrahls Ionen aus dem Restgas in die Bahn der Elektronen gezogen. Diese Effekte lassen sich allerdings durch ausreichend gute Vakua ( $< 10^{-10}$  mbar) innerhalb des Speichrings begrenzen. Die Lebensdauer eines gespeicherten Strahls beträgt zumeist zwischen 2 und 10 Stunden.

### 3.7.2 Spezielle Komponenten zur Strahlungserzeugung

In der praktischen Ausführung wird der Elektronenstrahl im Synchrotron nicht permanent auf einer Kreisbahn gehalten, sondern lediglich auf kurzen Teilstrecken abgelenkt und zur Strahlungsemission gezwungen, während in den Zwischenbereichen gerade Abschnitte liegen, in denen dem Strahl die durch Strahlung verlorene Energie wieder zugeführt wird.

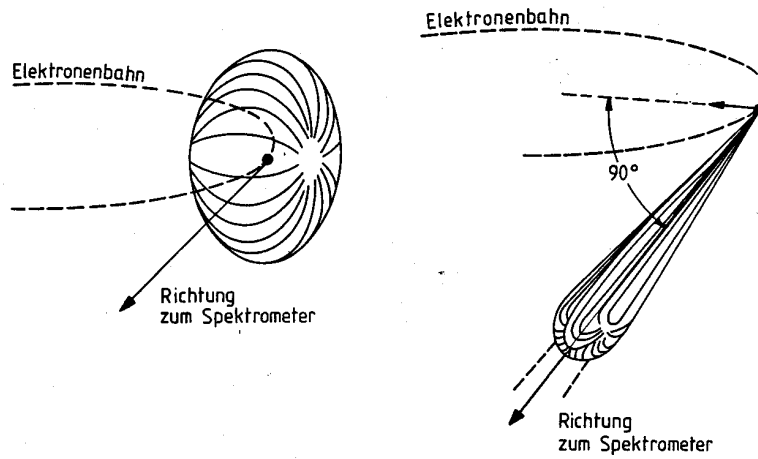


Abbildung 3.16: Die Abstrahlcharakteristik einer bewegten Ladung für die Fälle a)  $v \ll c$  und b)  $v \approx c$  (aus [BET90])

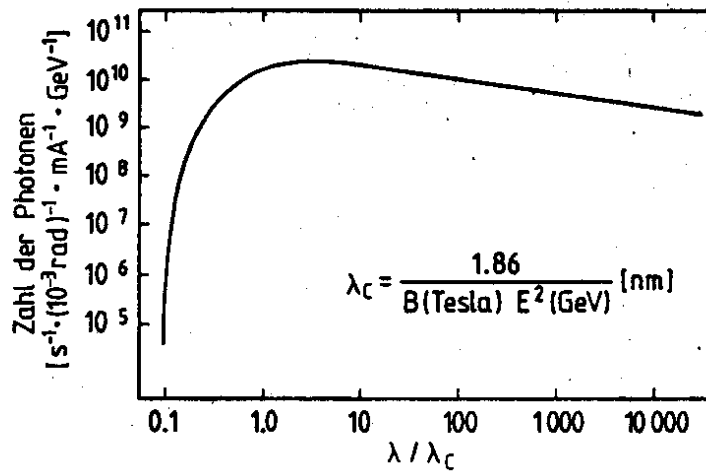


Abbildung 3.17: Intensität der Synchrotron-Strahlung über einen weiten Wellenlängen-Bereich (aus [BET90])

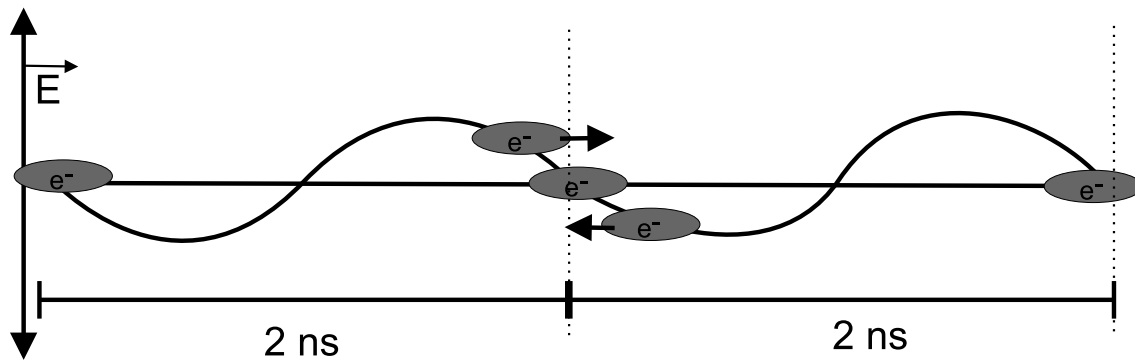


Abbildung 3.18: Die Strahlintensität im Speicherring wird durch die Hochfrequenz in einzelne Pakete aufgeteilt. Sollte eines der Pakete sich nicht in der richtigen Phasenlage befinden, so wird dieses durch das Wechselfeld wieder in die Sollposition abgebremst oder beschleunigt.

Da ein einzelner Ablenkmagnet nicht die optimale Ausbeute an Strahlung ermöglicht, werden in modernen Synchrotron-Anlagen neben einfachen Ablenkmagneten ("bending magnets") daher auch weitere Magnetstrukturen wie Wiggler und Undulatoren eingesetzt. Hierbei überstreicht der Elektronenstrahl eine Abfolge von abwechselnd gepolten Magnetfeldern im Abstand von einigen Zentimetern, die in die Strahlführung eingefahren werden können (Abb. 3.19). Durch die mehrfache Ablenkung des Strahls kann so ein Vielfaches der Strahlungsausbeute eines einfachen Ablenkmagneten erreicht werden. Zusätzlich wird durch Interferenzeffekte ein relativ schmales Intensitätsmaximum erzeugt. Das Auftreten der Interferenzen lässt sich verstehen, wenn die relativistische Geschwindigkeit der Elektronen beachtet wird. Im mitbewegten Bezugssystem der Elektronen, führen diese eine periodische Bewegung im Takt der Wechsel der Magnetpole aus. Deren Abstand (Periodenlänge) erscheint allerdings durch die hohe Geschwindigkeit entlang der Flugbahn um den Faktor  $\gamma = 1/\sqrt{1-\beta^2}$  ( $\beta = v/c$ ) Lorentz-kontrahiert. D.h. die im Ruhesystem des Elektrons erzeugte Strahlung besitzt eine um den Faktor  $\gamma$  reduzierte Wellenlänge. Im "ruhenden" Bezugssystem des Experimentators erscheint diese Strahlung allerdings wieder durch den Doppler-Effekt um einen Faktor  $\gamma$  erhöht. Insgesamt wird die Periodenlänge der Magnete so um einen Faktor  $\gamma^2$  verkürzt; dieser liegt dabei im Bereich von  $10^6 - 10^8$ . Die entsprechende Fundamental-Frequenz überlagert sich nun mit der relativ breiten spektralen Verteilung, die bei jeder individuellen Ablenkung des Strahles entsteht. Übrig bleibt ein Spektrum mit vergleichsweise scharfen Linien. Deren Positionen liegen bei

$$\lambda_\gamma = \lambda_p \frac{1 + 0.5K^2}{2n\gamma} \quad (3.24)$$

wobei  $n$  die Zahl der Harmonischen beschreibt und  $K$  durch

$$K = 0.934B_0[T]\lambda_0[cm] \quad (3.25)$$

gegeben ist. Die Position der Maxima lässt sich schließlich über die magnetische Feldstärke einstellen. Das Magnetfeld wird dabei durch Permanentmagnete erzeugt, deren Abstand ("gap") kontinuierlich verändert werden kann.

Der Erzeugungsmechanismus von Synchrotron-Strahlung in einem Undulator kann so als Streuung von relativistischen Elektronen an virtuellen Photonen (die periodisch gepolten Magnetfelder stellen gerade ein solches dar) verstanden werden. Tatsächlich wird dieser Mechanismus auch mit reellen Photonen ausgenutzt, indem einem relativistischen Elektronenstrahl ein intensiver Laserstrahl entgegen gerichtet wird (inverse Compton-Streuung). Durch die zweimalige Transformation des Bezugssystems und die dadurch entstehende Doppler-Verschiebung der Frequenz kann so die Energie der Laserphotonen um einige Größenordnungen (bis in den MeV-Bereich) gesteigert werden. Wird die Undulator-Struktur ausreichend lang und die auftretenden Magnetfelder gross genug ausgelegt, so kann ein Lawinen-Effekt erzeugt werden : die in der Schwingung der Elektronen erzeugten Photonen im oberen Undulator-Bereich regen diese wiederum zur stimulierten Emission von Photonen der gleichen Frequenz an. Dieses Verhalten entspricht exakt dem des Lasers ("Light Amplification by Stimulated Emission of Radiation"). Einrichtungen dieser Art werden deshalb auch als "Free-Electron-Laser" (FEL) bezeichnet. Mehrere Anlagen dieses Typs sind derzeit im Bau (z.B. in Verbindung des TESLA Beschleunigers bei DESY/HASYLAB).

### 3.7.3 Der Messplatz BW3 bei HASYLAB/DESY

Das hier vorgestellte Experiment wurde im wesentlichen am Hamburger Synchrotron-Strahlungs-Labor (HASYLAB) durchgeführt, wobei der Messplatz BW3 verwendet wurde (siehe Abb. 3.21).

Das Synchrotron DORIS wurde ursprünglich als erster Speicherring am DESY konzipiert, wurde aber mittlerweile zur alleinigen Erzeugung von Synchrotron-Strahlung umgebaut. Eine Besonderheit des DORIS-Speicherrings ist, dass hier keine Elektronen gespeichert werden, sondern deren Anti-Teilchen - Positronen. Dies hat den Vorteil, dass - im Gegensatz zu einem Elektronenstrahl - eine positive Raumladung entsteht, die verhindert, dass driftende Ionen in den Strahl geraten und so durch Stöße mit den

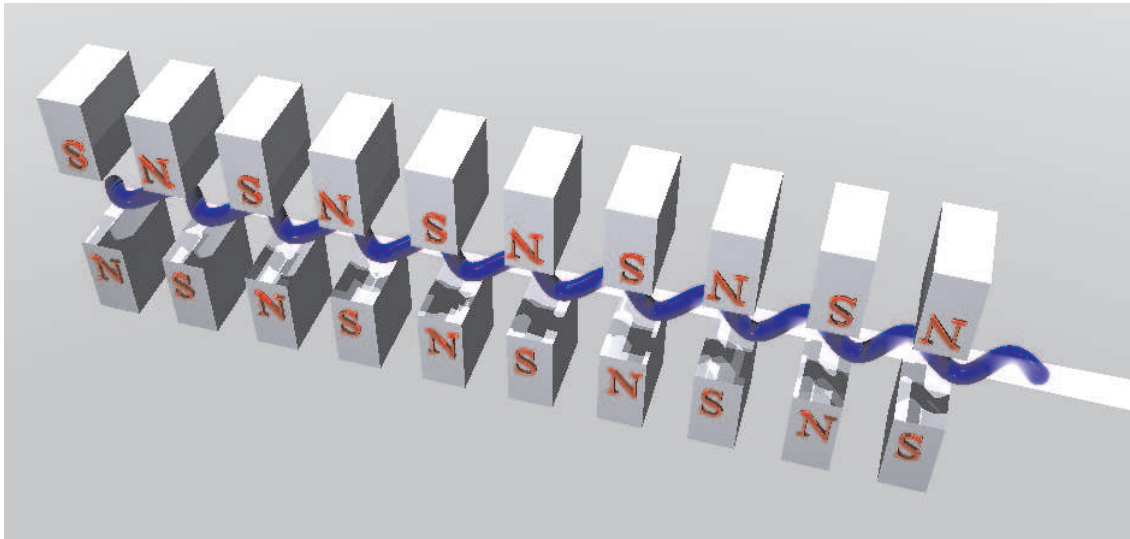


Abbildung 3.19: Strahlungserzeugung mit einem Undulator.

gespeicherten Teilchen zu deren Verlust führen. Auf diese Weise lässt sich die Lebensdauer der des gespeicherten Stromes deutlich verlängern.

Die Synchrotron-Strahlung wird hier mit einem Undulator erzeugt, dessen Intensitätsmaxima je nach Größe des Undulator-Gaps einen Energiebereich von 15-1800 eV abdecken. Der Undulator ist hierbei als "Revolver"-Undulator ausgelegt, d.h. je nach gewählter Energie kann durch Rotation des Undulators eine andere Magnetstruktur eingesetzt werden. Nach der Auskopplung folgt zunächst ein Spiegel (BW3.1), der die Strahlung in einen modifizierten SX-700-Monochromator (Zeiss) lenkt. Dieser besteht im wesentlichen aus einem Vorspiegel (PM), einem nachfolgenden ebenen Gitter (PGM) und schließlich einem sphärischen Spiegel (FM). Der so in seine verschiedenen Wellenlängen aufgespaltene Strahl wird nun durch einen Austrittsspalt (ES) gelenkt, der im Fokus des letzten Spiegels liegt. So werden alle außer der gewählten Energie herausgeschnitten. Das nun monochromatisierte Licht wird wiederum auf einen zweiten fokussierenden Ellipsoid-Spiegel (BW3.2) gegeben, der den Strahl auf die zu untersuchende Probe lenkt. Der Fokus besitzt hier einen Durchmesser von ca.  $150\mu\text{m}$ . Die Steuerung des Monochromators geschieht mit einem  $\mu$ -Vax-Computer, der über einen CAMAC-Bus mit der Steuerung verbunden ist [BW3WE].



Abbildung 3.20: Blick in den Speicherring DORIS III bei HASYLAB. Zu erkennen sind die Magnete zur Umlenkung des Strahles (blau) entlang des Speicherrings, sowie ein Strahlrohr, das tangential aus dem Speicherring führt und der Auskopplung der Synchrotron-Strahlung dient (entnommen von [BW3WE])

### 3.7.4 Unterdrückung höher harmonischer Reflexionen des Monochromators

Die Dispersion des Photonenstrahls wird im Allgemeinen über einen Monochromator erreicht. Hierbei wird der "weiße" Strahl an einem Gitter reflektiert und so in seine verschiedenen Wellenlängen aufgespalten. Aus der Gleichung für die Positionen der Maxima

$$d \sin \alpha = n\lambda \quad (3.26)$$

wird sofort ersichtlich, dass die Reflexionswinkel für verschiedene Ordnungen der Reflexion und Wellenlängen bei gleichem Produkt  $n\lambda$ , identisch sind. Da das Intensitätsmaximum des weißen Strahls, der vom Undulator erzeugt wurde, relativ breit ist, findet sich so bei einer gewählten Photonenenergie jeweils noch ein (in der Intensität abfallender) Untergrund mit Photonen der zweifachen, dreifachen, usw. Energie. Dies



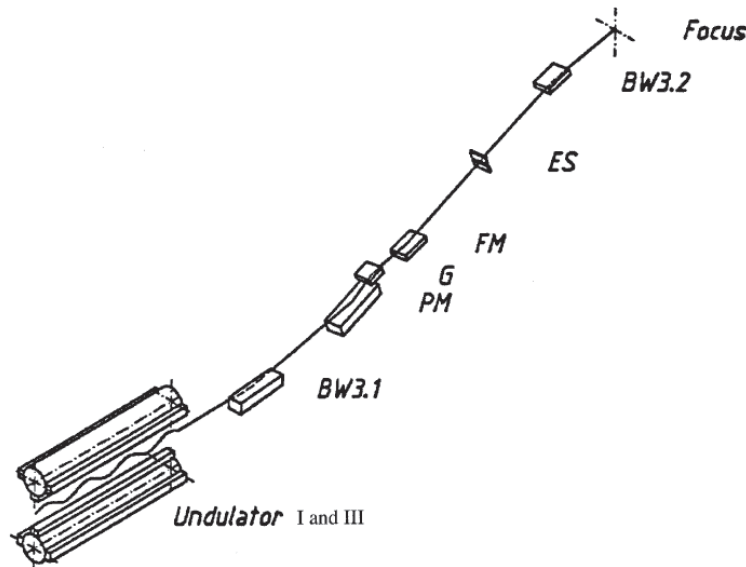


Abbildung 3.21: Schematischer Aufbau der Beamline BW3 bei HASYLAB (aus [BW3WE])

stellt für viele Messungen kein allzu grosses Problem dar, da die Wirkungsquerschnitte für Photoabsorption ca. mit  $E^{-3}$  abfallen. Dadurch werden Ereignisse, die von Photonen höherer Energie ausgelöst werden, automatisch unterdrückt (sofern dadurch nicht ein neuer Anregungskanal geöffnet wird). Bei Photoemissionsmessungen an Oberflächen, insbesondere im hier betrachteten Energiebereich von  $20\text{eV}$  -  $100\text{eV}$ , ist dies dagegen ein wesentliches Problem. Zum einen ist die Target-Dichte im Vergleich zu einem Gasphasen-Experiment um viele Größenordnungen größer, so dass das Photon mit Sicherheit an einer Stelle im Festkörper (wenn auch in tieferen Lagen) absorbiert wird. Da nun jede Photo-Linie ihren eigenen Sekundärelektronen-Untergrund besitzt, wird unter Umständen die interessierende Linie z.B. bei  $\hbar\omega = 35\text{eV}$  zu einem Teil von Sekundärelektronen zugedeckt, die aus einer Reaktion mit  $70\text{eV}$  Photonen stammt (siehe dazu Abbildung 3.22). Hinzu kommt, dass der Wirkungsquerschnitt für Doppel-Photoemission mit steigender Energie in diesem Bereich zunimmt ([BIE87], bzw. siehe Kapitel 5), so dass der Untergrund in den Koinzidenz-Spektren zusätzlich verstärkt wird.

Um den Untergrund aus diesem Effekt zu vermeiden, wird in die Strahlführung ein Filter eingesetzt, der alle Photonen mit Energien über einer bestimmten Schwelle absorbiert. Für die hier durchgeführten Experimente bieten sich insbesondere Filter aus Aluminium an. Die jeweiligen Absorptionskanten der  $2p_{1/2}$  und  $2p_{3/2}$ -Niveaus liegen

Positronen Energie	4.45 GeV
Strahlstrom nach Injektion (5 bunches):	120 mA
Umfang :	289.2 m
Anzahl der "buckets":	482
Anzahl "bunches":	1, 2 oder 5
Bunch Abstand (Minimum):	964 nsec, 480 nsec oder 192 nsec
Horizontal Positronenstrahl-Emittanz:	404 pi nmrad
Kopplungsfaktor :	3%
Vertikale Positronenstrahl-Emittanz:	12 pi nmrad
Positronenstrahl Energiebreite (rms):	0.11%
Krümmungsradius der Ablenkmagnete :	12.1849 m
Magnetische Feldstärke der Ablenkmagnete :	1.2182 T
Kritische Photonenenergie der Ablenkmagnete :	16.04 keV

Tabelle 3.1: Einige der Parameter der Speicherrings DORIS III bei HASYLAB (entnommen von [BW3WE].)

bei  $\hbar\omega = 72.5$  eV und  $\hbar\omega = 72.9$  eV. Jenseits dieser Kanten fällt die Transmission durch eine Schicht des jeweiligen Materials um mehr als eine Größenordnung ab (siehe Abb. 3.23). Die Filterfolien besitzen eine Dicke von etwa 200 nm und haben im erlaubten Energie-Bereich eine Transmission von 60-80%. Wird nun am Monochromator eine Energie von 40 eV ausgewählt, enthält der Strahl die "Verunreinigung" durch Photonen der Energie 80 eV, 120 eV etc. Diese liegen oberhalb der Schwelle und werden so effektiv unterdrückt. Zusätzlich wurde beobachtet, dass es durch den Einsatz der Filterfolie in den Strahlengang zu einer leichten Aufstreuung des Strahls kommt. Dies führt zu einer vergrößerten Unsicherheit im Startort der Elektronen. Durch den Einsatz eines Kollimators, der zusätzlich zwischen Filter und Target eingebaut wird, kann dies jedoch unterdrückt werden (siehe auch Abb. 3.2).

### 3.8 Datenaufnahme

Die Daten werden im so genannten „event-mode“-Verfahren aufgezeichnet. Dies bedeutet, dass für jedes Ereignis, sämtliche Messwerte einzeln aufgenommen werden. Damit ist es möglich, in der anschließenden Analyse der Daten alle beliebigen Schnitte und Projektionen in den Parameterräumen durchzuführen, ohne dass durch die Art der Datenaufnahme eine Vorauswahl getroffen wurde. Die Datenaufnahme geschieht, wie bereits erwähnt, mit einem Time-To-Digital-Converter (TDC, Roentdek). Dieser ist in der Lage, für acht unabhängige Kanäle jeweils bis zu 16 Ereignisse über eine Zeit

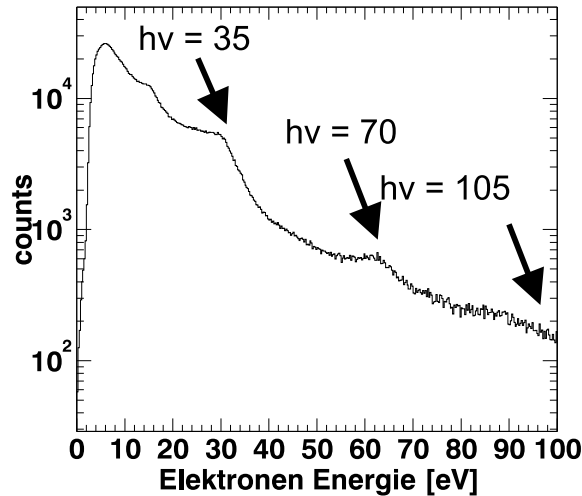


Abbildung 3.22: Spektrum der kinetischen Energie der Elektronen. Durch die Mischung verschiedener Photonenenergien treten neben der gewählten Energie (hier  $\hbar\omega = 35$  eV) höherenergetische Elektronen auf, die durch Photonen der nächsten Harmonischen des Monochromators erzeugt wurden.

von  $32 \mu\text{s}$ , aufzuzeichnen, wobei die Zeit-Auflösung  $0.5$  ns beträgt. Der TDC wird im "common-stop"-Modus betrieben. Hierbei wird die Zeitmessung der einzelnen Kanäle mit den jeweiligen Signalen des Detektors gestartet. Die Messung geschieht dabei relativ zu einem Stop-Signal, das für alle Kanäle identisch ist (siehe Abb. 3.24). Der TDC liefert als Ergebnis die Zeiten aller Start-Signale rückblickend vom Stop-Signal. Dieser Betriebs-Modus hat gegenüber dem "common-start"-Modus den Vorteil, dass es leichter möglich ist, eine Vorauswahl der Ereignisse auf der Hardware-Seite (d.h. vor der Aufzeichnung der Daten im Computer) zu treffen. Bei der hier durchgeführten Messung wurde das "common-stop" mittels einer Koinzidenz-Schaltung des eintreffenden Elektrons mit dem Signal des Synchrotrons erzeugt. Durch die hierfür nötigen Delays, liegt das Ergebnis-Signal der Koinzidenz zwangsläufig immer nach den zu messenden Signalen, kann also nicht mehr dazu dienen, die Datenaufnahme zu *starten*. Für dieses Experiment wurden nur bis zu 4 statt der möglichen 16 Start-Signale aufgezeichnet. Aufgrund des sehr geringen Untergrundes von zufälligen Pulsen ist dies ausreichend, um das Ereignis vollständig zu rekonstruieren.

Für die Darstellung und Speicherung der Daten wird das Software-Paket COBOLD

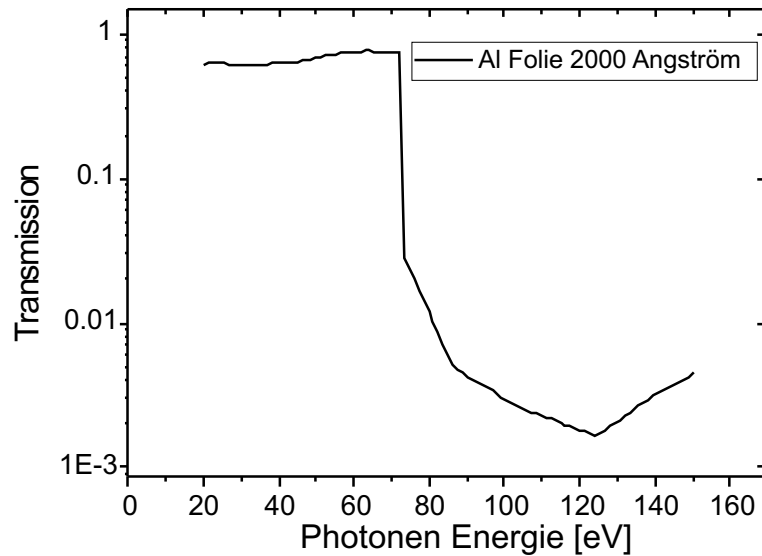


Abbildung 3.23: Transmission durch eine Aluminium-Folie der Dicke 2000 Å. Jenseits der Absorptionskante bei ca. 72 eV fällt die Intensität deutlich ab. Auf diese Weise können höher harmonische Reflexionen (z.B. Primärenergie 40 eV, HH bei 80 eV) effektiv unterdrückt werden.

(Roentdek) verwendet. Hiermit ist es möglich, während der Messung einige wichtige Parameter zu überwachen, wie die Flugzeitverteilung oder das Ortsbild des Detektors. Die Daten werden in schließlich einzelnen Dateien von jeweils  $1 \times 10^6$  Ereignissen gespeichert, wobei diese sowohl Einfach- als auch Zwei-Elektronen-Ereignisse sein können. Durch diesen Verzicht auf eine Zwei-Elektronen-Koinzidenz, ist der primäre Datenanfall im Bereich von knapp 500 MB/Stunde, der aber später deutlich komprimiert werden kann.

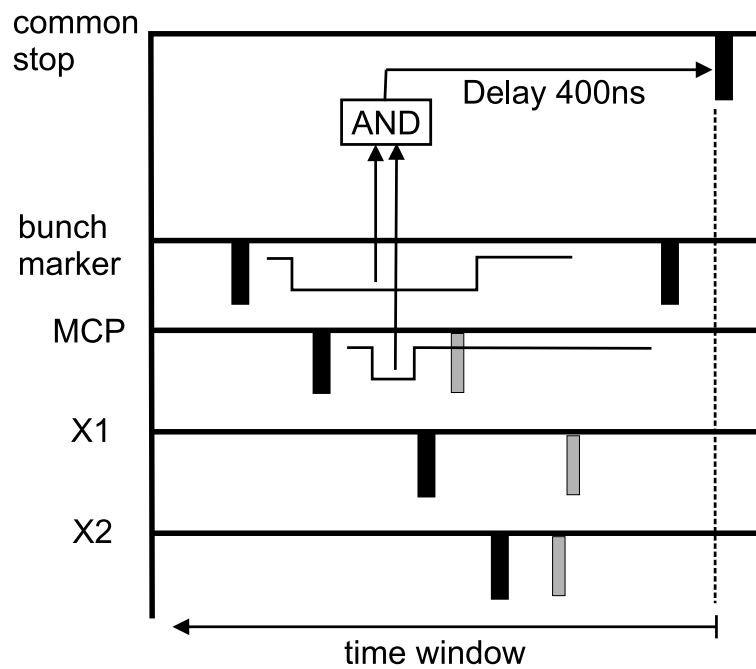


Abbildung 3.24: Verschaltung des Datenaufnahme-Signals (common-stop). Durch das bunch marker Signal wird ein Zeitfenster geöffnet und auf ein AND gegeben. Bei gleichzeitigem Eintreffen eines Signals vom MCP, wird über ein Delay von 400 ns die Auslese des TDC gestartet.



# Kapitel 4

## Datenanalyse

Wenn auch der Nachweis zweier Elektronen zunächst als kein allzu großes Problem erscheint, so ist ein solches Experiment doch mit verschiedenen Schwierigkeiten verbunden. Da anders als bei einem Experiment, in dem sequentiell Energie und Winkel der Teilchen vermessen werden, sich die Auswertung auf den Vergleich der Häufigkeiten einer bestimmten Energie-Winkel-Kombination beschränkt, so steht hier zunächst die intensive Bearbeitung der Roh-Daten im Vordergrund. Zuerst müssen Energien und Emissionswinkel aus den indirekt gewonnenen Größen ermittelt und anschließend verglichen werden. Da hier tatsächlich ein 6-dimensionaler Phasenraum vorliegt (je drei Impulskomponenten pro Elektron, wobei keine Erhaltungssätze diesen weiter einschränken), ist dieser Aufwand nicht zu unterschätzen. Genauer betrachtet werden pro Elektron 7 Größen gemessen (6 Anodensignale + 1 MCP Signal), deren Zuordnung und Interpretation von weiteren mehr als 10 Parametern abhängt (elektrische und magnetische Feldstärken, Zeit-Offset, Orts-Offset, Skalenfaktoren, etc.), die sehr genau bekannt sein müssen. D.h. es gilt insgesamt deutlich mehr als 20 Größen zu kontrollieren und miteinander in Einklang zu bringen, bevor die eigentliche Interpretation der Daten beginnen kann. Aus diesem Grund wird hier der Analyse der Daten ein eigenes Kapitel gewidmet, in der die Gewinnung der entscheidenden Parameter, sowie die Technik der Bearbeitung der Roh-Daten beschrieben werden soll.

### 4.1 Eichung der Detektor-Parameter

Der orts aufgelöste Nachweis von Ereignissen mit mehr als einem Elektronen benötigt eine sehr gute Kenntnis der Parameter des jeweiligen Detektor-Arrangements. Die hierbei wesentlichen Parameter sind die Summenlaufzeiten der Signale auf den jeweiligen Anodenwicklungen, die relativen Zeitoffsets, sowie die Skalenfaktoren zur Umrechnung

der Laufzeiten in Positionen. Insbesondere bei der Verwendung der hexagonalen Anode kommt diesen Parametern eine wichtige Bedeutung bei. Da bei der Rekonstruktion von fehlenden Detektorsignalen, z.B. aufgrund der kurzen Flugzeitdifferenz und/oder einer geringen Trennung der Elektronen im Auftreffort, auf die konstanten Detektor-Parameter zurückgegriffen werden muss, wird deutlich, dass diese sehr gut bekannt sein müssen, um keine falschen Ereignisse zu rekonstruieren.

Zur Eichung können entweder direkt die Messdaten verwendet werden, die größtenteils aus Einzel-Elektronen-Ereignissen bestehen, oder separat gewonnene Daten aus der Bestrahlung des Detektors z.B. mit niederenergetischen Elektronen aus einer Messzelle. Die Parameter können aus dabei aus einzelnen Spektren direkt gewonnen werden.

Die Laufzeitsummen werden im Allgemeinen aus der Auftragung der Größe

$$sum = x_1 + x_2 - 2mcp \quad (4.1)$$

gewonnen (siehe Abb. 4.1 a)). Hierbei steht  $x_{1,2}$  für den Zeitpunkt der Signale der Anodenenden einer jeweiligen Wicklung, sowie  $mcp$  für den Zeitpunkt des Signals des MCPs. Durch diese Art der Berechnung ist die Größe  $sum$  unabhängig von der zeitlichen Distanz der einzelnen Signale zum COMMON-STOP-Signal des TDCs.

Der nächste wichtige Parameter ist der des zeitlichen Offsets der dritten Drahtlage zu den beiden anderen. Die Notwendigkeit dieses Parameters wird bei folgender Überlegung deutlich: Betrachtet man nur zwei Lagen, so kann die Hälfte der Gesamtlaufzeit der Signale auf der Anode als Mittelpunkt des Detektors in der jeweiligen Nachweisrichtung angenommen werden. Durch montierungsbedingte Gründe, ist die Mitte der dritten Lage dagegen nicht zwangsläufig mit der durch die anderen beiden Lagen exakt identisch. Zusätzlich können noch Abweichungen durch verschiedene Kabellängen nach dem Abgriff der Signale am Detektor auftreten. Da in der späteren Analyse der Auftreffort über verschiedene Methoden berechnet wird (jeweils zwei der drei Drahtlagen sind linear unabhängig), so stimmt der berechnete Ort unter Umständen nicht für alle Kombinationen überein. Daher muss zur Laufzeit einer der Lagen noch ein Zeit-Offset addiert werden, so dass keine Uneindeutigkeit auftritt. Dieser Offset kann beispielsweise bestimmt werden, indem die Laufzeitdifferenz der zu verschiebenden Lage für Ereignisse, die in der Mitte der jeweils anderen Lagen liegen, aufgetragen wird (siehe Abb. 4.1 b)).

Die Bestimmung der Skalenfaktoren ist etwas aufwändiger, als die der vorhergegangenen Parameter. Die Skalenfaktoren dienen der Umrechnung der Laufzeiten (ns) in Positionen (mm). Da mit Hilfe dieser Faktoren überprüft wird, ob Mehr-Elektronenereignisse zusammengehörig sind, kommt diesen eine besondere Bedeutung in der Analyse zu



und müssen daher möglichst genau bestimmt werden. Dies geschieht über ein iteratives Verfahren. Dazu wird ein Skalenfaktor als fest angenommen (nur die relative Genauigkeit ist zunächst wichtig). Dann werden die Skalenfaktoren der anderen beiden Lagen so lange verändert, bis die Abweichung des berechneten Ortes für die verschiedenen Berechnungsmethoden minimal wird. Dies lässt sich in einem graphischen Verfahren feststellen, indem in einem 2-dimensionalen Diagramm die verschiedenen Werte für die Skalenfaktoren, gegen die Abweichung der jeweiligen Kombination aufgetragen wird (siehe Abb. 4.2).

## 4.2 Der Resortierungsalgorithmus

Wie in den vorangegangenen Abschnitten bereits mehrfach erwähnt wurde, kommt es aufgrund der kurzen Flugzeitdifferenzen der Elektronen, teilweise zur Veränderung der Signalreihenfolge an den Enden der Verzögerungsleitung (zur Veranschaulichung siehe Abb. 3.10). Dies ist sofort aus der Tatsache ersichtlich, dass der zeitliche Abstand des

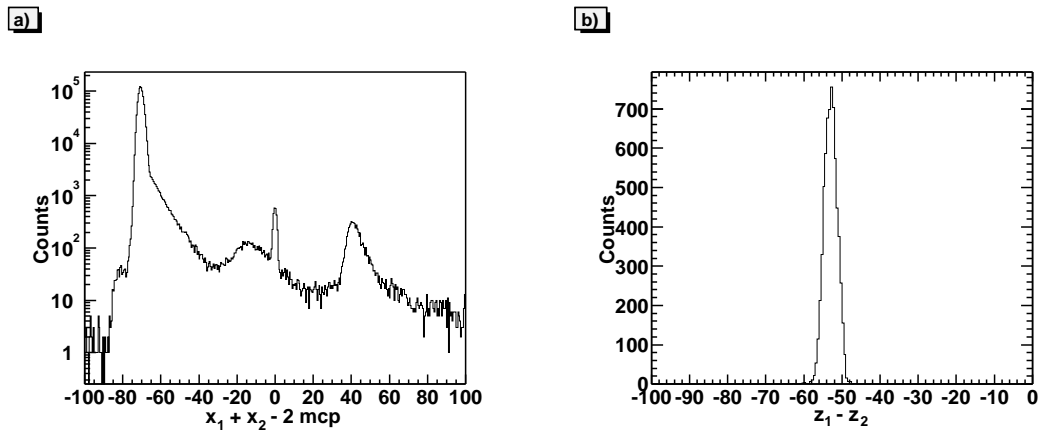


Abbildung 4.1: Eichung der Detektor Parameter : a) Spektrum der Laufzeitsummen auf einer der Anoden-Lagen. Die Laufzeitsumme, die zu einem gültigen Ein-Elektronen-Ereignis gehört, liegt bei  $-70.5$  ns. In der logarithmischen Darstellung sind die Ereignisse, die aus der Detektion mehrerer Elektronen stammen als Schulter zur positiven Achse hin sichtbar. Die weiteren Strukturen stammen aus Reflektionen der Signale an verschiedenen Stellen auf dem Signalweg sowie entstehen durch das Fehlen eines der Signale. b) Der zeitliche Offset ( $-52.9$  ns) der Mitte der dritten Lage gegen die ersten beiden. Dieser entsteht durch unterschiedliche Kabellängen an den jeweiligen Signalabgriffen sowie die Konstruktion der Anode.

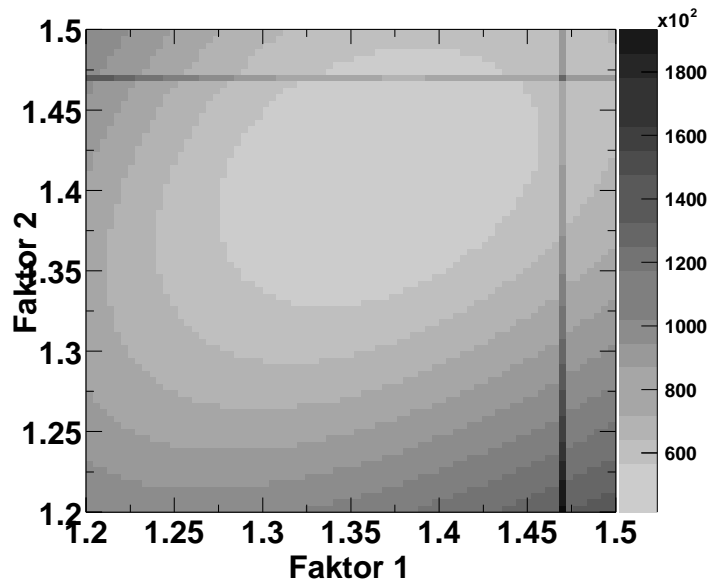


Abbildung 4.2: Zur Bestimmung der Skalenfaktoren werden die Positionen der einzelnen Ereignisse mit jeweils zwei unabhängigen Methoden berechnet. Dabei werden iterativ verschiedene Skalenfaktoren für die einzelnen Drahtwicklungen verwendet. Aufgetragen auf der z-Achse ist nun die Ortsdifferenz für die beiden Berechnungsmethoden (relative Einheiten). Die beste Übereinstimmung liegt im Bereich des Minimums.

Eintreffens der Elektronen am Detektor im Bereich von lediglich maximal etwa 30 ns beträgt, während die Laufzeit der Signale auf der Anode im Bereich von 120 ns liegt. Es ist daher unerlässlich, eine Korrektur in der Signalreihenfolge vorzunehmen. Zu diesem Zweck wurde von A. Czasch ein Algorithmus entwickelt, der sukzessive für jedes registrierte Ereignis die Konsistenz der Signale überprüft und sie gegebenenfalls in ihrer Reihenfolge korrigiert. Bei diesem Vorgang wird auf die zuvor bestimmten, detektor-spezifischen Parameter zurückgegriffen. Zusätzlich zur Sortierung der Signale können, wieder auf der Basis der bekannten Parameter, einzelne Signale rekonstruiert werden, die sonst durch die Totzeit des Constant Fraction Discriminators oder des TDCs nicht mehr direkt gemessen werden konnten. Das Funktionsprinzip des Algorithmus soll hier näher dargestellt werden.

### 4.2.1 Resortierung von Signalen

Der zunächst einfachste Fall tritt ein, wenn alle Signale (6 Anoden-Signale sowie 1 MCP Signal) für ein Zwei-Elektronen-Ereignis vorhanden sind. Hier muss nur die Reihenfolge mittels der bekannten Zeitsummen gefunden werden. Für eine korrekte Zeitsumme gilt (innerhalb eines gewissen Akzeptanzbereichs) :

$$sum = x_1 + x_2 - 2mcp \quad (4.2)$$

wobei  $x_{1,2}$  und  $mcp$  für die Signale an den jeweiligen Enden einer Wicklung bzw. das MCP Signal steht. Treffen nun zwei Elektronen innerhalb der Signallaufzeiten auf der Anode auf den Detektor, so kann es zur Vertauschung der Reihenfolge der Signale kommen. D.h. die einzelnen Signale werden aufgrund ihrer Ankunftszeit dem falschen Elektron zugeordnet. Dieser Fall ist in Abbildung 4.3 veranschaulicht. Um festzustellen, welche der Signale zusammen gehören, kann die bekannte Laufzeitsumme verwendet werden. Hierzu werden z.B. die Kombinationen

$$sum = x_{1hit1} + x_{2hit1} - 2mcp_{hit1} \quad (4.3)$$

sowie

$$sum = x_{1hit1} + x_{2hit2} - 2mcp_{hit1} \quad (4.4)$$

berechnet. Die Ergebnisse werden verglichen und gegebenenfalls die Reihenfolge bzw. Zuordnung der Signale vertauscht.

### 4.2.2 Rekonstruktion von Signalen

Der Fall, dass alle von einem Elektron stammenden Signale tatsächlich im TDC gemessen werden, tritt nur für wenige Ereignisse ein, da hierfür eine ausreichende Trennung in Ort und Flugzeit nötig ist. Wesentlich häufiger wird eines der Signale nicht nachgewiesen. Ist beispielsweise die Flugzeit-Differenz der Elektronen nur sehr gering (kleiner 8 ns), so erreichen die Signale des Channelplates den TDC in einem zu kleinem Abstand, so dass das zweite eintreffende Signal noch nicht verarbeitet werden kann (siehe Abb. 4.4). Würde an dieser Stelle völlig auf die Resortierung vertraut, so ließen sich eine Vielzahl der Ereignisse nicht mehr verwerten. Einen Ausweg bietet wieder der Vergleich der Zeitsummen. Zunächst muss der vollständige Signal-Satz eines der nachgewiesenen Elektronen gefunden werden. Hierzu werden wieder die einzelnen Zeitsummen der Signale berechnet und mit den bekannten Werten verglichen. Ist eine passende

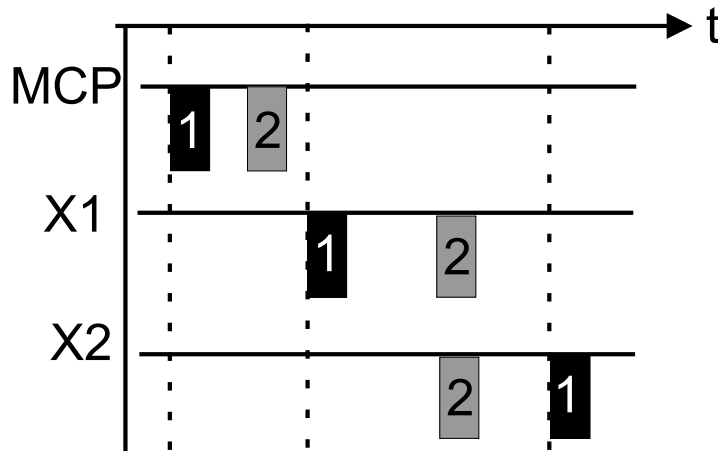


Abbildung 4.3: Zeitliche Signalreihenfolge bei einem Mehr-Elektronen-Ereignis. Signale, die vom ersten eintreffenden Elektron stammen, sind schwarz markiert, die des zweiten Elektrons grau. In diesem Fall trifft das erste Elektron einen Randbereich des Detektors (grosse Differenz  $x_1 - x_2$ ), während das zweite in der Nähe des Zentrums detektiert wird. Durch die unterschiedlichen Orte vertauscht sich die Reihenfolge der Signale am Ende der Leitung.

Kombination gefunden, so müssen die übrigen Signale zum zweiten, nicht vollständig gemessenen, Elektron gehören. Nun kann wieder aus der bekannten Zeitsumme, die Position des fehlenden MCP-Signals rekonstruiert werden :

$$mcp = \frac{1}{2}(x_1 + x_2 - sum) \quad (4.5)$$

Ist die Trennung im Auftreffort ausreichend (d.h. alle Signale der Anoden-Drähte werden nachgewiesen), so kann auf diese Weise die Totzeit des MCPs praktisch auf Null reduziert werden. Entscheidend für den Erfolg dieser Methode ist allerdings, dass die Signalleitung möglichst rauscharm ist, es also möglichst keine zufälligen Signale (Überschwinger des ersten Pulses, Dunkelpulse des MCPs, Rauschen der Verstärker, etc.) auf der Leitung gibt.

Auf ähnliche Weise können auch Signale der Anoden-Drähte rekonstruiert werden, wenn die Trennung in der Flugzeit ausreichend ist, nicht aber die Trennung im Ort.

Insbesondere für die Rekonstruktion der Signale ist die hexagonale Auslegung der Delay-line-Anode von Bedeutung. Durch das Vorhandensein einer dritten Drahtwicklung, besteht die Möglichkeit, dass Signale, die aufgrund ihrer zeitlichen Differenz auf einer der Drahtlagen nicht mehr nachgewiesen werden könnten, in der dritten Lage wiederum separiert sind. Bei der üblichen, quadratischen Ausführung der Anode, wäre das

Ereignis verloren, sobald eine der Lagen zur Positionsbestimmung ausfällt. Hier bleibt aber stets eine linear unabhängige Drahtwicklung als Ausweichmöglichkeit bestehen. Schließlich hilft die hexagonale Struktur bei der Vermeidung von Uneindeutigkeiten bei der Resortierung von Signalen.

### 4.3 Aufbereitung der Rohdaten

Um die spätere Analyse der Datensätze zu erleichtern wird eine gewisse Vorauswahl der Ereignisse getroffen. Hierbei gilt es insbesondere Signale von "scheinbaren" Zwei-Elektronen-Ereignissen zu verwerfen, die nur durch Effekte im Detektor bzw. der Anode erzeugt wurden. Da keine Überbestimmung der Messung vorliegt, d.h. die Möglichkeit der Berechnung einzelner physikalischer Größen aus weiteren unabhängigen Messwerten (z.B. Berechnung des Impulses eines Elektrons aus dem Rückstoß des Ions bei der Photoionisation von Gasen aufgrund der Impulserhaltung), muss den vorhandenen Daten völlig vertraut werden.

Abgesehen von zufälligen Pulsen des MCPs und "Rauschen" des Verstärkers, können Störsignale auch aus zunächst echten Ereignissen erzeugt werden. Beispiele hierfür sind "Überschwinger", d.h. Signale mit einem zweiten Anstieg des Pulses kurz ( $< 50$  ns) nach dem primären Puls. Der zweite Puls kann hier (bei ausreichender Größe), ein weiteres Signal des Diskriminators erzwingen. Diese Signale offenbaren sich in einer konstanten Zeitdifferenz  $x_{hit1} - x_{hit2}$  und können so in der Analyse herausgeschnitten werden. Desweiteren können Reflexionen der Signale am Ende einer Wicklung auftreten. Dies

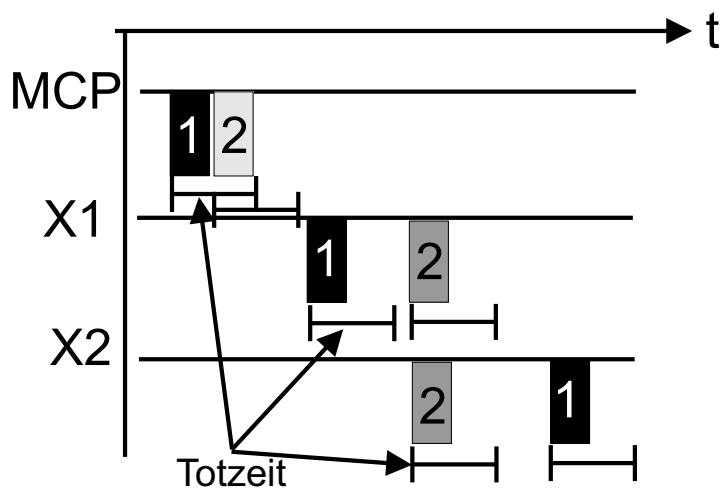


Abbildung 4.4: Verlust von Signalen aufgrund der Totzeit.

geschieht durch eine mangelnde Impedanzanpassung der Verögerungsleitung auf die aus der Vakuumkammer führenden Leitungen. Hier wird an der Übergangsstelle ein Teil der Intensität reflektiert und läuft in die Gegenrichtung zurück. Am dortigen Ende wird der Puls schließlich als scheinbar zweites Elektron gewertet. In diesem Fall ist die Summe der Laufzeiten  $x_{hit1} + x_{hit2}$  konstant. Fälle dieser Art müssen vor der Resortierung und Rekonstruktion verworfen werden, da sonst die Gefahr besteht, diesen scheinbaren Zwei-Elektronen-Signaturen ein physikalisches Ereignis zuzuordnen.

Nachdem dies geschehen ist, werden die Daten dem Algorithmus zugeführt. Dieser liefert die Auftrefforte sowie die relativen Flugzeiten der Elektronen. Um für die spätere (physikalische) Analyse der Daten Rechenzeit zu sparen, werden die Daten zusätzlich in eine neue Datei geschrieben. Diese vorsortierten Daten beanspruchen nur noch ca. 1/6 des Speicherplatzes.

## 4.4 Eichung des Spektrometers

Zur Umrechnung der gemessenen Größen  $x, y, t$  in die zugehörigen Startimpulse  $p_x, p_y, p_z$  der Elektronen, ist die genaue Kenntnis der Spektrometerparameter nötig, d.h. die elektrischen und magnetischen Feldstärken, der Quellpunkt der Elektronen (Auftreffort des Photonenstrahls), sowie der Offset der gemessenen Flugzeiten zur absoluten Flugzeit. Theoretisch ließen sich diese Größen auch aus den angelegten Spannungen, Kabellängen, etc. berechnen, allerdings ist es wesentlich einfacher und genauer, diese aus Eichmessungen direkt abzuleiten.

### **Bestimmung der absoluten Flugzeit und der magnetischen Feldstärke**

Die absolute Stärke des Magnetfeldes, sowie die Lage des Zeit-Offsets kann recht leicht aus den Spektren bei einem niedrigen Absaugfeld abgelesen werden. Dazu wird die Flugzeit des Elektrons gegen den Auftreffort aufgetragen. Durch die Zyklotron-Bewegung wird die Trajektorie zu jedem ganzzahligen Vielfachen der Periodendauer der Bewegung, wieder auf einen Punkt fokussiert (siehe Abb.4.5). Erstreckt sich die Flugzeitverteilung über mehrere Periodendauern, so kann der Abstand  $T$  der sich so abzeichnenden Knoten durch Lineare Regression sehr gut bestimmt werden. Dieser kann über die Beziehung  $\omega = \frac{2\pi}{T}$  bzw.  $B = \frac{m}{e}\omega$  in die Zyklotron-Frequenz bzw. die magnetische Feldstärke umgerechnet werden. Die dem ersten Knoten entsprechende Flugzeit ist zusätzlich identisch mit dem Ursprung der absoluten Flugzeit  $t = 0$ .

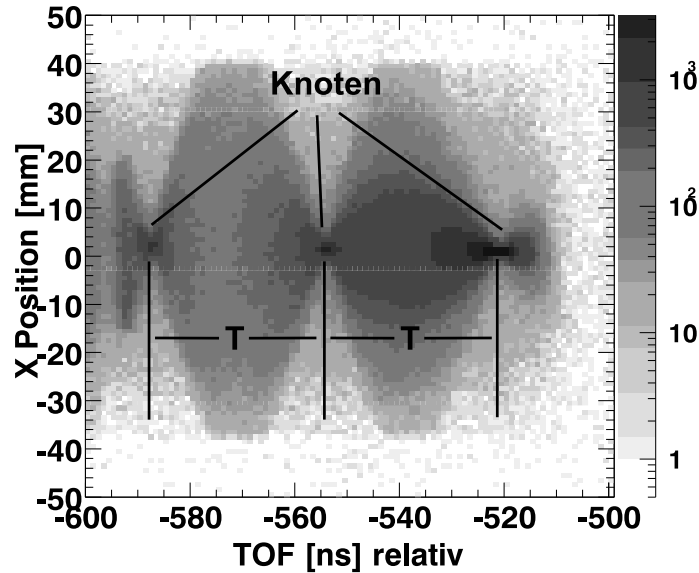


Abbildung 4.5: Flugzeit der Elektronen aufgetragen gegen den Auftreffort in X-Richtung. Durch die Zyklotronbewegung im Magnetfeld werden alle Trajektorien zu ganzzahligen Vielfachen der Periodendauer auf einen Punkt fokussiert.

### Bestimmung des Quellpunktes

Diese Fokussierung kann des weiteren noch verwendet werden, um den Quellpunkt der Elektronen zu bestimmen. Diesen erhält man durch Abbildung der Auftrefforte zu einer Flugzeit, die genau dem Vielfachen der Zyklotron-Frequenz entspricht. Sollten die elektrischen und magnetischen Felder nicht exakt parallel zueinander sowie jeweils zur Spektrometerachse sein, so wandert dieser Fokuspunkt leicht als Funktion der Flugzeit. Dies kann allerdings in der späteren Analyse in einer linearen Korrektur des Quellpunktes berücksichtigt werden.

### Bestimmung der elektrischen Feldstärke

Die im Spektrometer herrschende elektrische Feldstärke wird entweder über die Länge des Spektrometers  $s$  und die angelegte Spannung  $U$  berechnet, oder kann aus Messungen bei konstantem Feld und verschiedener Photonenenergien abgeleitet werden. Idealerweise wird mit der Strahlenergie eine gewünschte Elektronenenergie eingestellt,

deren Flugzeit bestimmt wird. Dieses Verfahren bietet sich für die Eichung eines Spektrometers ähnlichen Typs für Gase an, ist allerdings im Fall der Photoemission von Oberflächen nur bedingt einsetzbar. Die Schwierigkeit liegt im Einstellen einer festen kinetischen Energie der Elektronen. Da die Anwendung auf Photoemission von Valenzelektronen beschränkt ist, sind in den Spektren keine (im Sinne der Energieauflösung) scharfen Linien vorhanden, da die Emission aus einem relativ breiten Band geschieht. Selbst unter Vernachlässigung dieser Tatsache, stößt man auf Probleme, weil verschiedene Photonenenergien unterschiedliche Bereiche der Brioullin-Zone abbilden. Die Bindungsenergien aus denen die Elektronen emittiert werden, sind daher nicht konstant, sondern ändern sich als Funktion der Energie der Photonen. Auch die Verwendung von "scharfen" Linien aus der enger gebundenen Orbitalen ("core-levels"), bringt keinen wesentlich Vorteil, da diese jeweils auf dem Sekundärelektronen-Untergrund der höheren Photolinien liegen. Die einzig nutzbare Größe ist die Lage der Fermi-Kante in den Spektren, die allerdings häufig nur schwach ausgeprägt ist, da die Zustandsdichte bei größeren Bindungsenergien meist deutlich überwiegt. In der Auftragung der Photonenenergie gegen Flugzeit der Elektronen ist die Fermi-Kante als gebogene Begrenzung zu kürzeren Flugzeiten erkennbar (siehe Abb.4.6 a)). Die Position der Kante kann durch einen automatischen Algorithmus bestimmt werden, und anschließend, unter Verwendung der zuvor bestimmten absoluten Flugzeit (s.o.) und Gleichung 3.11, die Feldstärke als Ergebnis eines Fits an die Datenpunkte bestimmt werden (Abb.4.6 b)).



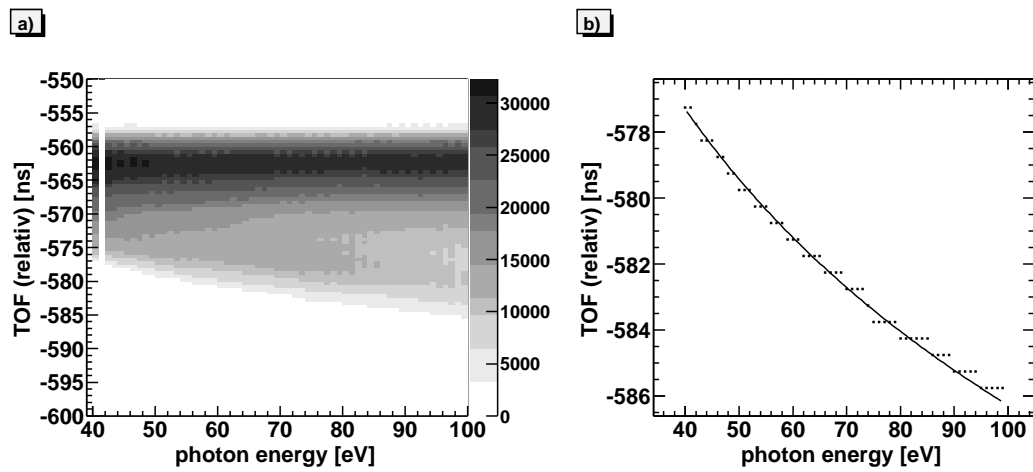


Abbildung 4.6: Eichung des elektrischen Feldes im Spektrometer. a) Flugzeitverteilung gegen Photonenenergie, der untere Rand ist durch die Elektronenemission nahe der Fermienergie (kurze Flugzeiten) und der obere (lange Flugzeiten) durch die Flugzeit von 0 eV Elektronen gegeben. b) Position der Fermi-Kante gegen Photonenenergie mit Fitfunktion zur Eichung des Feldes.



# Kapitel 5

## Ergebnisse und Diskussion

Mit dem in den vorangegangenen Kapiteln beschriebenen System wurden Messungen an einer Kupfer (111) Oberfläche durchgeführt. Die Energie der Photonen wurde im Bereich von 40 eV bis 150 eV variiert. Dabei wurden Elektronen mit einer Energie bis ca. 50 eV mit dem vollen Raumwinkel von  $2\pi$  energie- und winkelaufgelöst nachgewiesen.

### 5.1 Ergebnisse aus Einfach-Photoemission

#### 5.1.1 Geometrie

Zur Erklärung des Koordinaten-Systems ist in Abb. 5.1 die Emissionsgeometrie im Detail aufgezeichnet. Der Lichteinfall geschieht unter  $45^\circ$  entlang der Y-Achse. Die Polarisation ist dabei in der YZ-Ebene orientiert. Die Y-Achse fällt mit der  $[\bar{1}10]$ -Richtung des Kristalls zusammen, so dass durch die experimentelle Anordnung eine Symmetrie zur Y-Achse vorliegt.

#### 5.1.2 Spektren

Da keine explizite Koinzidenzschaltung verwendet wurde, enthalten die Datensätze neben den Koinzidenzereignissen auch die Ereignisse, die aus Einfach-Photoemission stammen. Zur Kontrolle der Abbildungseigenschaften des Spektrometers, kann nun zunächst dieser Teil der Daten analysiert werden. Einige ausgewählte Ergebnisse sollen hier dargestellt werden.

In Abbildung 5.2 ist hierzu die Elektronen-Energieverteilung für  $\hbar\omega = 40$  eV dargestellt. Das Spektrum ist integriert über alle Emissionswinkel. Zwei wesentliche Peaks treten hier auf : zunächst die Emission aus Zuständen des Valenzbandes. Dieses beginnt bei  $E_{kin} = \hbar\omega - W_\phi$  bis zu einer Energie von  $E_{kin} = \hbar\omega - W_\phi - E_{Fermi}$ . Da über die

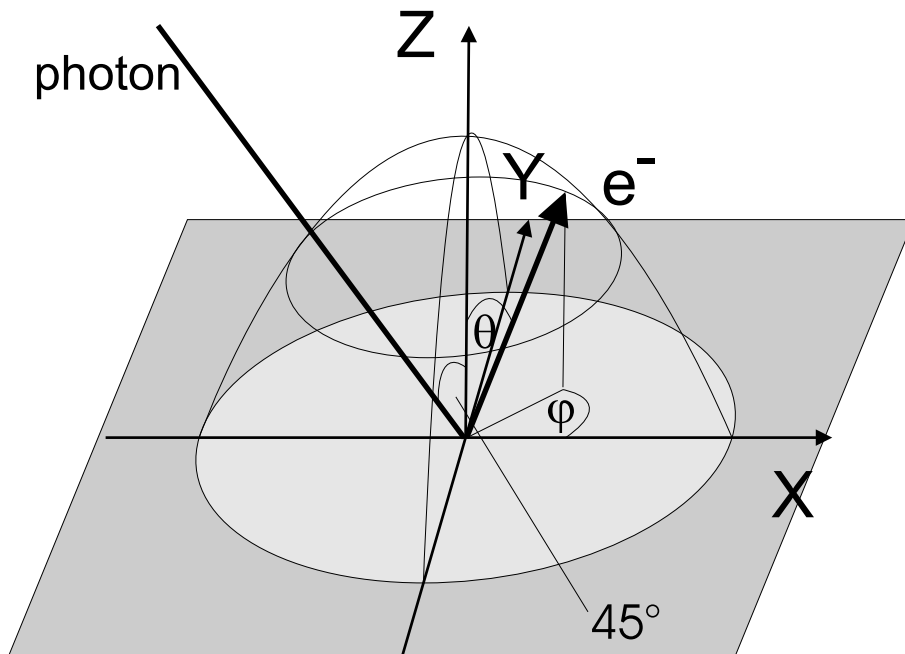


Abbildung 5.1: Geometrie der Mess-Anordnung. Der Lichtfallswinkel liegt unter  $45^\circ$  zur Z-Achse in der YZ-Ebene.

verschiedenen Emissionswinkel integriert wird, tragen verschiedene Ausgangszustände zur Gesamtintensität bei. Durch die relativ geringe Energieauflösung von ca. 3 – 4 eV können hier keine weiteren Details aufgelöst werden. Der zweite auftretende Peak bei ca. 3 eV stammt von Sekundärelektronen, die durch inelastische Streuung erzeugt wurden.

Mehr Informationen lassen sich aus einer Abbildung der Bandstruktur gewinnen. Ein einfaches Verfahren, das die Abbildung der Bandstruktur erlaubt, ergibt sich aus einem "normal emission"-Experiment, wobei die Photonenenergie variiert wird. Durch Beschränkung auf die Emission entlang der Oberflächennormalen werden nur Ereignisse ausgewählt, deren Wellenvektor entlang der  $[111]$ -Richtung ( $\Gamma L$ ) orientiert ist. Unter Verwendung eines "Freie-Elektronen-Endzustandes" (free electron final state) kann unter Berücksichtigung der Energieerhaltung und einer Modell-Annahme für den unteren Rand des Valenzbandes (hier  $E_F = 8.6$  eV aus [THI79]), der Wellenvektor entlang  $\Gamma L$  (bis auf einen reziproken Gittervektor) berechnet werden. Das Ergebnis zeigt Abbildung 5.3 (links). Der Vergleich mit theoretischen Modellen der Bandstruktur von Kupfer (5.3 rechts) zeigt, dass zumindest der parabolische sp-Anteil sowie die Deformierung am Rand der Brillouin-Zone innerhalb der (für diese Zwecke sehr schlech-

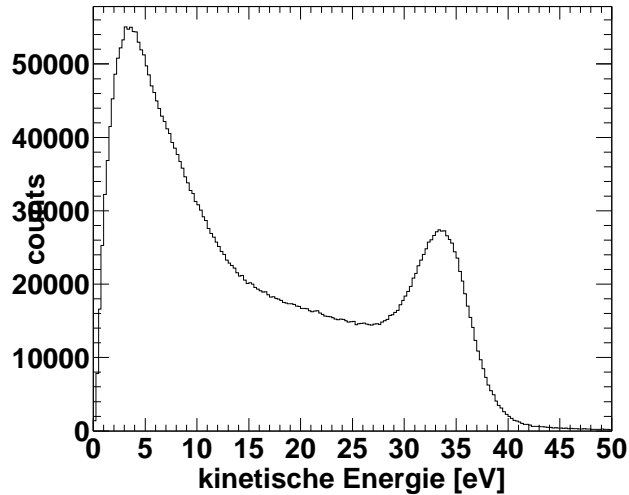


Abbildung 5.2: Energieverteilung aus Einfach-Photoemission bei  $\hbar\omega = 40$  eV, integriert über alle Emissionswinkel : Emission aus dem Valenzband bei ca. 34 eV, Maximum der Sekundärelektronenemission bei ca. 4 eV.

ten) Auflösung reproduziert werden kann. Dabei muss allerdings beachtet werden, dass durch die Polarisierung und den schrägen Lichteinfall aufgrund der Auswahlregeln nicht alle Anfangszustände beitragen.

Wird die Winkel- und Energieauflösung des Spektrometers voll genutzt, so kann auch ein Abbild der Fermi-Oberfläche erzeugt werden. Dazu ist in Abbildung 5.4 die orthographische Projektion der Impulse parallel zur Oberfläche für Elektronen, deren Emissionsniveau nahe um die Fermi-Kante liegen, dargestellt. Deutlich zu erkennen ist die periodische Variation in der Winkelverteilung, die durch die Struktur der [111]-Oberfläche hervorgerufen wird. Auch hier tragen allerdings nicht alle Anfangszustände gleichermaßen bei. Die Polarisierung und der schräge Lichteinfall erzeugen eine deutliche Ausrichtung der Verteilung zur positiven Y-Achse.

## 5.2 Doppel-Photoemission

Der bisherige Stand der experimentellen Erkenntnisse zur Doppel-Photoemission beschränkt sich - neben dem reinen Nachweis des Effektes und ersten Studien zur Energieabhängigkeit [BIE87] - auf die Auswertung von Zwei-Elektronen-Energieverteilungen

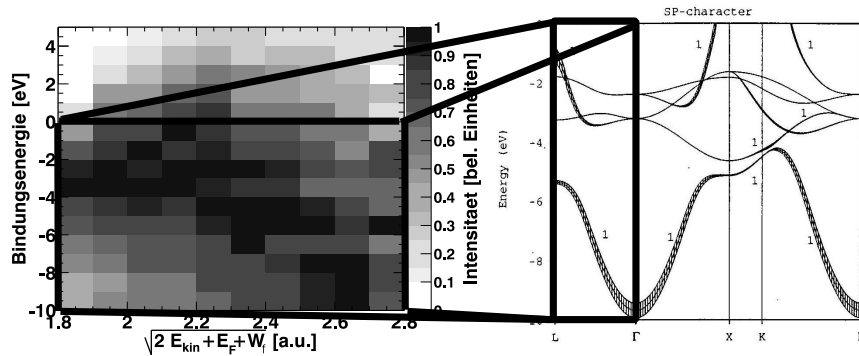


Abbildung 5.3: Links : aus den Daten erzeugtes Spektrum der Bandstruktur von Cu entlang der [111]-Richtung ( $\Gamma L$ -Zweig der Bandstruktur). Rechts : Bandstruktur von Kupfer mit s-p Charakter nach einer LMTO-Rechnung von Guo *et al.* [GUO98]

[HER98], d.h. die Energieaufteilung des Paares unter einer fest vorgegebenen Emissionsgeometrie. Hier wurden bei senkrechtem Lichteinfall die Elektronen-Energie-Verteilungen unter jeweils  $40^\circ$  Emissionswinkel bei einer Kupfer- und Nickelprobe vermessen. Das Ergebnis war die Feststellung einer im wesentlichen asymmetrischen Energieaufteilung  $s = (E_1 - E_2)/(E_1 + E_2)$  der Elektronen. Dies wurde im Zusammenhang mit den ersten Modellrechnungen [BER98] als Hinweis auf die Emission durch einen kohärenten Prozess gewertet [HER98, FOM03]. Allerdings wurden in diesem Modell der Einfluss des Kristall-Gitters und der Anfangszustände noch nicht berücksichtigt. Zusätzlich wurde noch die Existenz der Schwelle für die Paar-Energie  $E_{sum}$  der Zwei-Elektronen-Emission von  $E_{sum} \leq \hbar\omega - 2W_\phi$  ( $W_\phi$  : Austrittsarbeit) nachgewiesen, was auf eine Selbstfaltung der Zustandsdichte der einzelnen am Doppel-Photoemissionsprozess beteiligten Bänder hindeutet.

Um nun einen Anschluss an die bisherigen Erkenntnisse zu erreichen, soll die Vorstellung der experimentellen Ergebnisse ebenfalls bei den Zwei-Elektronen-Energieverteilungen beginnen, wobei zunächst winkelintegrierte Spektren behandelt werden.

### 5.2.1 Winkelintegrierte Spektren

Abbildung 5.5 zeigt die Zwei-Elektronen-Energieverteilung bei einer Photonenenergie von  $\hbar\omega = 40$  eV. Deutlich zu erkennen ist ebenfalls die Schwellenenergie von ca. 30 eV. Durch die begrenzte Auflösung und den unkorrelierten Untergrund (siehe Abschnitt

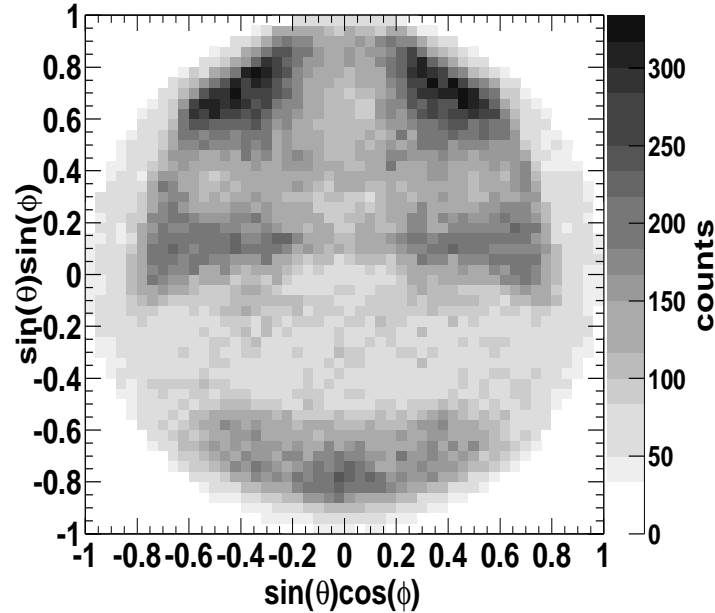


Abbildung 5.4: Darstellung der Fermioberfläche : Winkelverteilung der Elektronen mit Bindungsenergien im Bereich der Fermi-Energie (orthographische Projektion der Elektronenimpulse auf die Oberfläche)

5.2.3) findet sich allerdings noch etwas Intensität oberhalb dieser Schwelle. Die Hauptintensität ist auf einen Bereich knapp unterhalb dieser Schwelle konzentriert, wobei ein Maximum bei der Energie-Kombination (13 eV, 13 eV) auftritt. Abbildung 5.5 b) zeigt das hierzu gehörige Spektrum der Summenenergien ( $E_1 + E_2$ ). Es tritt ein deutlicher asymmetrischer Peak bei  $\sim 27$  eV auf, der zu niedrigen Energien bis ca. 4 eV reicht. Von Interesse ist hier insbesondere die Abhängigkeit der Spektren von der Photonenenergie (siehe Abb. 5.7). Es zeigt sich, dass nur für die niedrigste gemessene Energie (40 eV) die Energieaufteilung an der Schwellenenergie nahezu symmetrisch ist (zwei Elektronen mit gleicher Energie). Dies zeigt sich besonders deutlich in Abbildung 5.6. Aufgetragen ist hier die Energieaufteilung des Elektronenpaares  $(E_1 - E_2)/(E_1 + E_2)$  für Ereignisse im Bereich der Schwelle ( $E_1 + E_2 = E_{phot} - 2W_\phi \pm 2$  eV).

Mit ansteigender Photonenenergie teilt sich die Intensität in diesem Bereich entlang der Schwelle langsam auf und wandert zu den Achsen hin, was einer asymmetrischen Energieaufteilung entspricht. Bemerkenswert ist, dass sich die Haupt-Intensität stets entlang

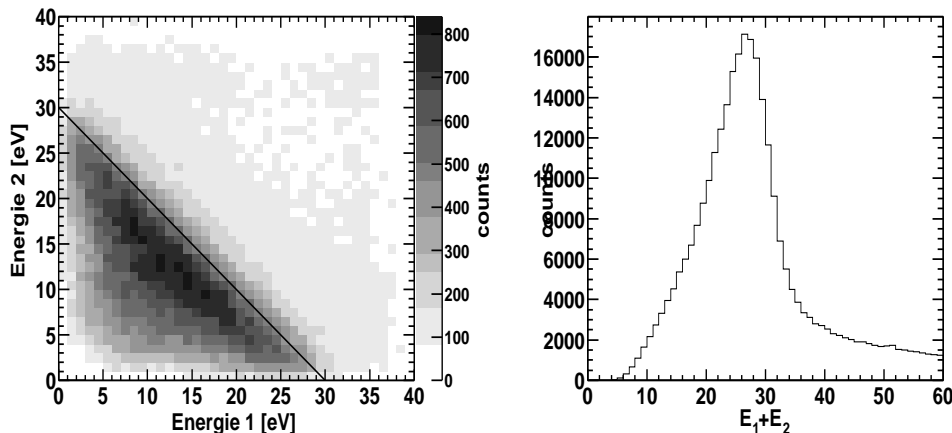


Abbildung 5.5: a) Winkelintegriertes Zwei-Elektronen-Energie-Spektrum bei  $\hbar\omega = 40$  eV, die Energieschwelle bei 30 eV Summenenergie ist durch die Linie (-) angedeutet. b) Summenenergie-Spektrum ( $E_1 + E_2$ )

einer Hyperbel-förmigen Struktur sammelt (Abb. 5.7). Der Abbruch der Verteilung bei ca. 50 eV kinetischer Energie wird dabei möglicherweise durch den eingeschränkten Nachweis-Raumwinkel für Elektronen oberhalb dieser Energie verursacht. Da sich der Scheitelpunkt der Verteilung unabhängig von der eingestellten Photonenenergie stets in der Nähe von  $E_1 = E_2 = 13 - 15$  eV befindet, liegt der Schluss nahe, dass es sich hier nicht um einen direkt mit dem Photoemissionsprozess verknüpften Effekt handelt. Vielmehr kann dieser Effekt teilweise auf den Einfluss der Oberflächenbarriere auf die Transmission der Elektronenpaare zurückgeführt werden.

In Kapitel 2 wurde der Einfluss der Oberflächenbarriere auf die Elektronentrajektorie beim Übergang ins Vakuum beschrieben. Die zugrunde liegende Gleichung ist

$$\sin(\theta_V) = \sin(\theta_S) \sqrt{\frac{E_{kin} + V_0}{E_{kin}}}, \quad (5.1)$$

wobei  $E_{kin}$ : kinetische Energie des Elektrons;  $V_0$  Höhe der Potentialstufe zum Vakuum;  $\theta_V/\theta_S$ : Winkel zur Oberflächennormalen ausserhalb/innerhalb des Festkörpers. Aus der Existenz des kritischen Winkels ( $\sin(\theta_V) = 1$ ) bei

$$\sin(\theta_S) = \sqrt{E_{kin}/(E_{kin} + V_0)}, \quad (5.2)$$

lässt sich bereits erkennen, dass Elektronen mit kleinen kinetischen Energien nur



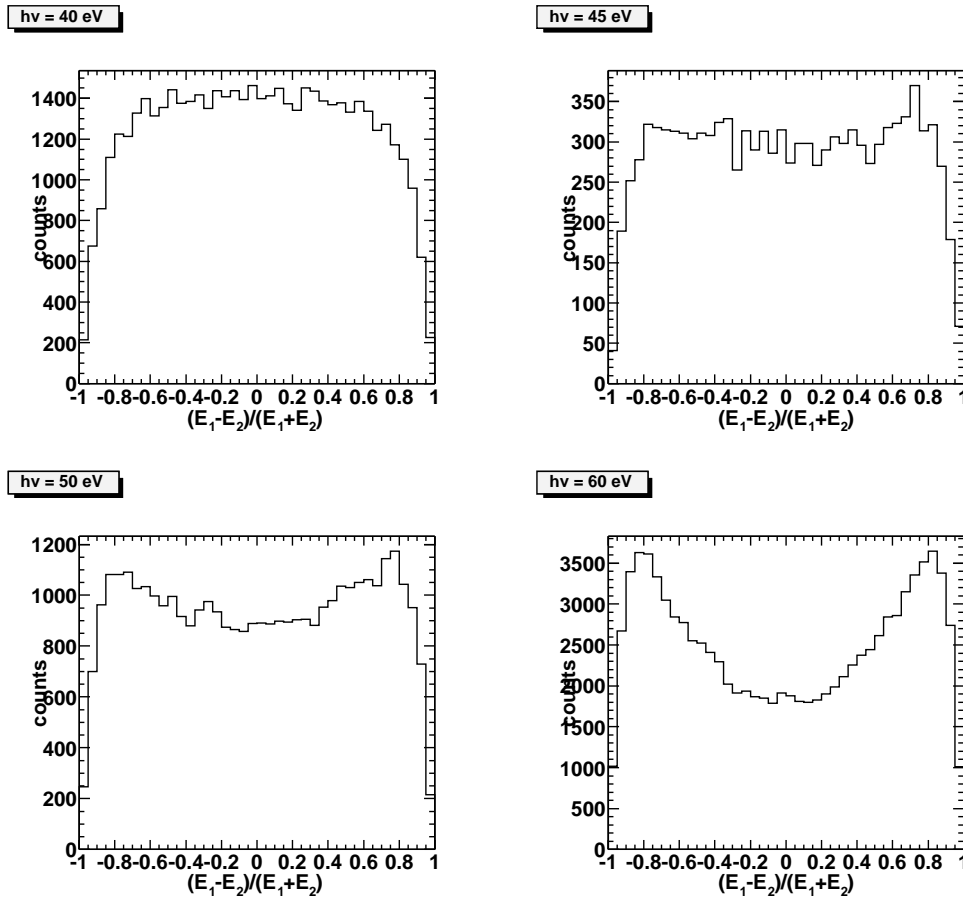


Abbildung 5.6: Energieaufteilung des Elektronenpaares  $(E_1 - E_2)/(E_1 + E_2)$  für Ereignisse im Bereich der Schwelle  $(E_1 + E_2 = E_{phot} - 2W_\phi \pm 2$  eV) bei verschiedenen Photonenenergien.

einen sehr eingeschränkten Fluchtkegel um die Oberflächennormale besitzen. Dies bedeutet, dass Ereignisse bei denen eines oder beide Elektronen innerhalb des Festkörpers eine geringe Energie besitzen, diesen nur mit geringer Wahrscheinlichkeit verlassen - d.h. als korreliertes Paar detektiert - werden. Dieser - allein durch den zugänglichen Raumwinkel begründeten - Effekt, kann also bereits zu einer deutlichen Beeinflussung der Zwei-Elektronen-Energieverteilung führen.

Zur Modellierung dieses Effektes wird zunächst die Transmissions-Wahrscheinlichkeit eines Elektrons berechnet. Hierzu wird angenommen, dass die Winkelverteilung innerhalb des Festkörpers praktisch isotrop ist. Sofern die kinetische Energie des Elektron deutlich von den Bindungsenergien des Valenzbandes entfernt ist, ist diese Annahme dadurch gerechtfertigt, dass das Elektron nur durch inelastische Stöße in diesen Ener-

giebereich gekommen sein kann. Durch die Vielzahl der Stöße, kann davon ausgegangen werden, dass die Winkelverteilung jegliche Information des primären Prozesses verloren hat und damit nahezu isotrop ist. Damit kann der differentielle Wirkungsquerschnitt innerhalb des Festkörpers geschrieben werden als (unter Berücksichtigung der Größe des Raumwinkelelementes  $\Delta\Omega = d\phi d\theta \sin\theta$ ) :

$$\frac{d\sigma}{d\theta_S} = k \sin(\theta_S). \quad (5.3)$$

Von Interesse ist nun die Abhängigkeit des Wirkungsquerschnitts vom Winkel außerhalb des Festkörpers. Dies lässt sich durch folgende Umformung erreichen (mathematisch ist dies formal nicht ganz korrekt, eine genauere Behandlung liefert allerdings das gleiche Ergebnis) :

$$\begin{aligned} \frac{d\sigma}{d\theta_S} &= \frac{d\sigma}{d\theta_V} \frac{d\theta_V}{d\theta_S} = k \sin(\theta_S) \\ \Rightarrow \frac{d\sigma}{d\theta_V} &= k \frac{d\theta_S}{d\theta_V} \sin(\theta_S) = k \frac{d\theta_S}{d\theta_V} \sin(\theta_V) \sqrt{\frac{E_{kin}}{E_{kin} + V_0}} \end{aligned} \quad (5.4)$$

wobei Gleichung (5.1) verwendet wurde. Dies führt zu dem Ergebnis

$$\frac{d\sigma}{d\theta_V} = -k \frac{E_{kin}}{E_{kin} + V_0} \left( \frac{\sqrt{1 - \sqrt{\frac{E_{kin}}{E_{kin} + V_0}}} - 1}{\sqrt{\frac{E_{kin}}{E_{kin} + V_0}}} \right) \quad (5.5)$$

Integration von Gleichung (5.5) über  $\theta_V$  ergibt schließlich

$$\sigma = \int_0^{\frac{\pi}{2}} \frac{d\sigma}{d\theta_V} d\theta_V = \arctan \left( \frac{\sqrt[4]{\frac{E_{kin}}{E_{kin} + V_0}}}{\sqrt{1 - \sqrt{\frac{E_{kin}}{E_{kin} + V_0}}}} \right) \sqrt[4]{\frac{E_{kin}}{E_{kin} + V_0}}. \quad (5.6)$$

$\sigma$  beschreibt nun die Wahrscheinlichkeit (nicht normiert!), dass ein Elektron mit Energie  $E_{kin}$  die Oberflächenbarriere  $V_0$  überwindet. Wird keine feste Winkelkorrelation für das Elektronenpaar vorgegeben, so ist die Wahrscheinlichkeit  $\sigma_{++}$  für die Emission zweier Elektronen durch

$$\sigma_{++}(E_1, E_2) = \sigma(E_1)\sigma(E_2) \quad (5.7)$$

gegeben. In Abbildung 5.8 a) ist diese berechnete Wahrscheinlichkeit in Abhängigkeit der beiden Elektronenenergien aufgetragen. Es zeigt sich auch hier der Hyperbelförmige Verlauf wie in Abb. 5.7. Jede Energieverteilung innerhalb des Festkörpers muss

mit dieser Transmissionsfunktion gefaltet werden. Dadurch ergibt sich die starke Unterdrückung der Intensität für niedrige Elektronenenergien. Auf diese Weise kann die Unterdrückung der niederenergetischen Elektronenpaare am Rand des 2D-Spektrums qualitativ gut erklärt werden. Abbildung 5.8 b) zeigt ein mit diesem Modell simulierte Energieverteilung bei  $\hbar\omega = 40$  eV. Die gemessene Verteilung (Abb. 5.5) lässt sich so bereits gut reproduzieren.

Umgekehrt kann mit Hilfe dieses einfachen Modells versucht werden, die Energieverteilung der Elektronen innerhalb des Festkörpers zu erhalten. Zu diesem Zweck wurde in Abbildung 5.9 jedes Ereignis um die Transmissionswahrscheinlichkeit nach Gleichung (5.6) korrigiert. Hier wird der starke Einfluss der Oberflächenbarriere deutlich. Während in der direkten Messung die Energieaufteilung an der Schwelle bei  $\hbar\omega = 40$  eV einen Trend zu gleichen Energien aufweist (siehe Abb. 5.6 oben links), zeigt das Spektrum hier eine sehr deutliche Asymmetrie in der Energieaufteilung.

Verglichen mit der Energieaufteilung der Elektronen bei der Doppel-Photoionisation von Helium bei ähnlichen Energien über der Doppel-Ionisationsschwelle, ist die Asymmetrie hier wesentlich ausgeprägter (vergl. z.B. [PRO93]). Erst für wesentlich höhere Photonenenergien lassen sich bei Helium ähnliche Verteilungen finden ([KNA02]). Beim freien Atom ist bei niedrigen ( $< 50$  eV) Energien über der Doppel-Ionisationsschwelle hauptsächlich die Coulomb-Wechselwirkung der Teilchen im Kontinuum für die Energieaufteilung verantwortlich. Im Festkörper dagegen führt die Abschirmung der Elektronen durch das umgebende Elektronengas zu einer Verminderung der direkten Wechselwirkung. Dies führt möglicherweise schon bei deutlich niedrigeren Photonenenergien zu den beobachteten Verteilungen.

## 5.2.2 Energieabhängigkeit

Da in diesem Experiment synchron mit den koinzidenten Ereignissen ebenfalls die Ereignisse aus Einfach-Photoemission aufgezeichnet wurden, kann aus diesen Daten eine Abschätzung des Verlaufs der Verhältnisse der Wirkungsquerschnitte von Einfach- zu Doppel-Photoemission  $\sigma_{++}/\sigma_{+}$  in Abhängigkeit der Photonenenergie gewonnen werden. Allerdings muss hier beachtet werden, dass dies nur als grobe Abschätzung des Verhältnisses dienen kann. Gründe hierfür sind die Einflüsse der Totzeit auf die Nachweiseffizienz der Elektronen, sowie die Abnahme des zugänglichen Raumwinkels.

Abbildung 5.10 zeigt das Verhältnis der Anzahl der Ereignisse, bei denen Elektronenpaare in Koinzidenz detektiert wurden, zur Anzahl der Ereignisse ohne zweites Elektron. Die Anzahl der Koinzidenzen als auch der Elektronen aus Einfach-Photoemission

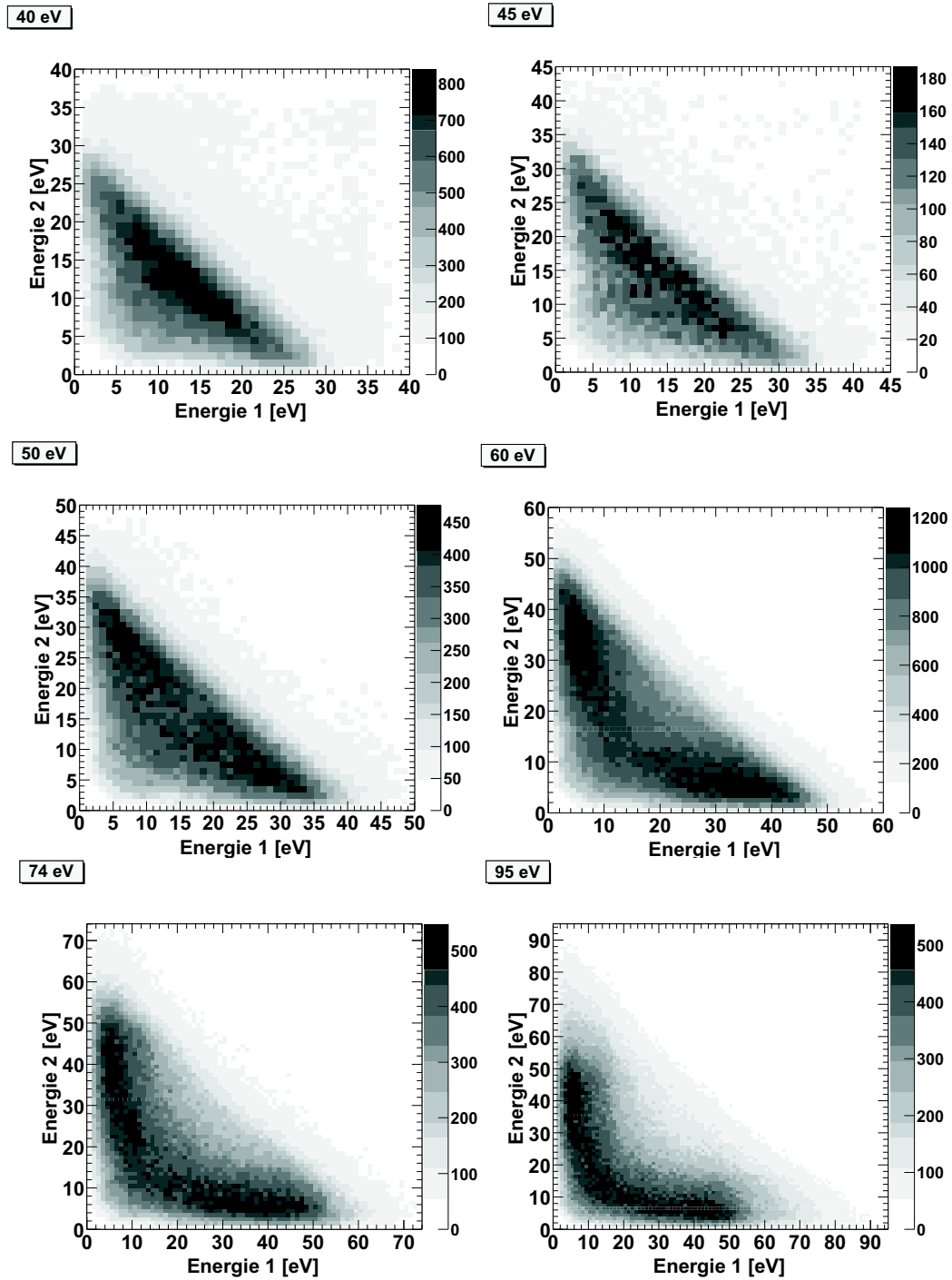


Abbildung 5.7: Veränderung der Zwei-Elektronen-Energieverteilung mit der Photonenenergie. Man beachte die unterschiedliche Achsenskalierung.

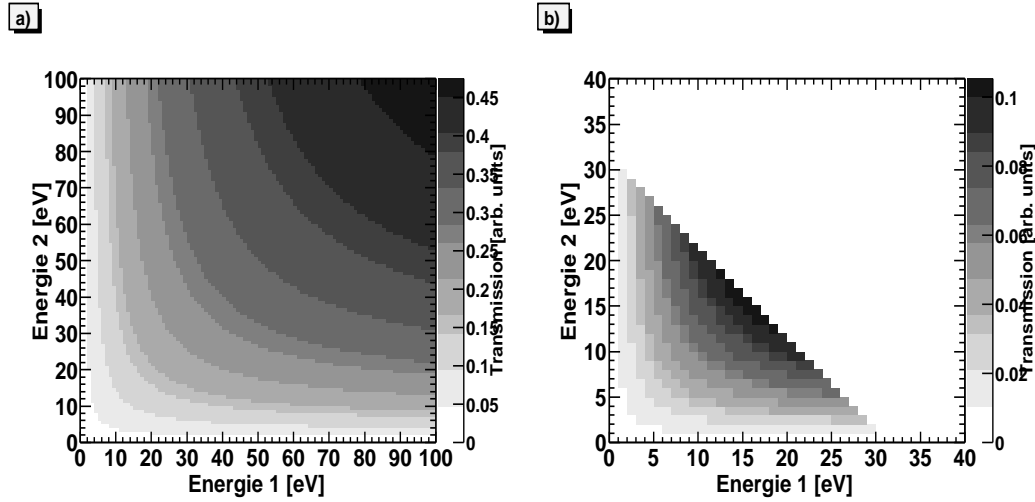


Abbildung 5.8: a) Berechnete Transmission eines Elektronenpaares durch die Oberflächenbarriere, b) Berechnete Verteilung bei  $\hbar\omega = 40$  eV

wurde dabei nach der Analyse (Resortierung und Rekonstruktion) ermittelt. Um Schwankungen zu vermeiden, die durch mögliche systematische Fehler entstehen (Veränderungen in der Nachweiseffizienz der Channelplates, etc.), wurde die Kurve in zwei Durchgängen an verschiedenen Tagen aufgezeichnet und übereinander gelegt. Das Verhältnis steigt im Bereich von 40 eV bis 100 eV um etwa einen Faktor 10 an, wobei der Verlauf nahezu linear ist. Strukturen, die signifikant außerhalb der Fehlerbalken liegen treten dabei nicht auf. Lediglich bei ca. 60 eV sowie bei ca. 74 eV lassen sich sehr schwache Flanken ausmachen, denen ein leichter Anstieg des Verhältnisses folgt.

Der leichte Anstieg bei 74 eV kann dabei wahrscheinlich mit dem Erreichen des Cu  $3p$ -Niveaus erklärt werden. Die Photonenenergie ist hier ausreichend, um Elektronen aus dem  $3p$ -Niveau in einen unbesetzten Valenzband-Zustand zu heben (siehe z.B. [BRU82, GHI90]). Durch die Erhöhung des Wirkungsquerschnittes der Einfach-Photoemission an dieser Resonanz, stehen wiederum mehr Elektronen zur Verfügung, um mit dem primären Elektron weitere Elektronen auszulösen. Oberhalb dieser Energie trägt ein weiterer Prozess zur Emission zweier Elektronen bei. Hierbei handelt es sich um Auger-Photoelektron-Koinzidenzen. Näheres hierzu findet sich im nächsten Abschnitt.

Für die Flanke bei  $\hbar\omega = 60$  eV hingegen findet sich kein vergleichbarer Übergang in der elektronischen Struktur. Möglicherweise handelt es sich hier um einen apparativen Effekt : Bei ca. 55 eV kinetischer Energie entsprechen die Durchmesser der Zyklotron-

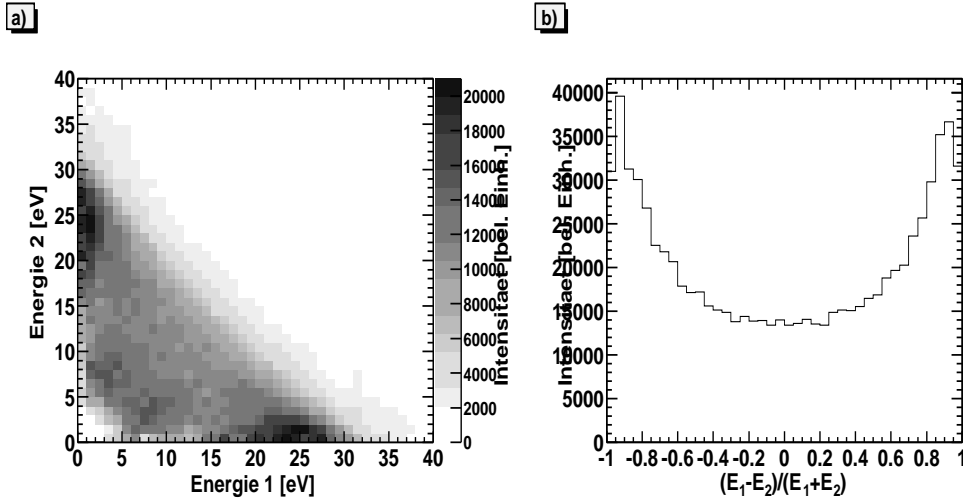


Abbildung 5.9: Korrektur der Daten (Abb. 5.7) für die Oberflächen-Transmissionswahrscheinlichkeit des Elektronenpaares (Gleichung (5.6)) bei  $\hbar\omega = 40$  eV. a) korrigierte Zwei-Elektronen-Energieverteilung b) korrigierte Energieaufteilung.

bahnen der Elektronen im Spektrometer etwa dem Innendurchmesser der Elektroden, die das homogene Feld im Inneren produzieren. Trifft ein Elektron hier auf, werden Sekundärelektronen ausgelöst, die ebenfalls in das Koinzidenz-Fenster fallen können. Andererseits könnten schnelle Elektronen verloren gehen. Beide Effekte würden eine Verschiebung des Verhältnisse zu größeren Werten zur Folge haben.

Zur Interpretation des Verlaufs kann wieder auf das Argument des zugänglichen Raumwinkels zurück gegriffen werden. Da bei höheren Photonenenergien und damit verbundenen höheren Elektronenenergien der Einfluss der Oberflächenbarriere immer geringer wird, steigt der Raumwinkel, d.h. die Größe des Fluchtkegels, der ins Vakuum projiziert werden kann, deutlich an. Im Folge dessen steigt auch die Wahrscheinlichkeit der Detektion eines koinzidenten Elektronenpaares an. Zur Modellierung kann wieder Gleichung (5.6) und (5.7) verwendet werden. Hierzu wird (5.6) über alle Energien von 0 bis  $E_{phot} - W_\phi$  integriert und (5.7) von 0 bis  $E_1 + E_2 = E_{phot} - 2W_\phi$  und das Verhältnis für die jeweilige Photonenenergie gebildet. Damit wird das Verhältnis  $\Gamma$  der Emission zweier Elektronen zur Emission eines Elektrons

$$\Gamma = \frac{\int_0^{E_{phot}-2W_\phi} \int_0^{E_{phot}-2W_\phi-E_2} \sigma_{++}(E_1, E_2) dE_1 dE_2}{\int_0^{E_{phot}-W_\phi} \sigma_+(E_1) dE_1}. \quad (5.8)$$

Das Ergebnis ist ebenfalls in Abb. 5.10 als durchgehende Linie eingezeichnet. Tat-

sächlich steigt das berechnete Verhältnis wie erwartet an, allerdings mit einer wesentlich schwächeren Steigung. Der wesentliche Beitrag stammt daher aus der eigentlichen Energieabhängigkeit der Doppel-Photoemission im Festkörper.

### Auger-Photoelektron-Koinzidenzen

Ist die Energie ausreichend, um Elektronen aus tiefer gebundenen Schalen (*core level*) anzuregen, so setzt ein weiterer Prozess ein, der zur Emission von zwei Elektronen führt. Ist die Energie ausreichend, um das Elektron aus dem *core level* in das Vakuum zu heben, wird die entstandene Lücke durch ein Valenzband-Elektron aufgefüllt. Die frei werdende Energie wird dabei auf ein weiteres Elektron aus dem Valenzband übertragen, so dass schließlich zwei Elektronen emittiert werden. Diese Elektronenpaare treten in der Zwei-Elektronen-Energieverteilung nicht mehr als kontinuierliches Spektrum auf, sondern als diskrete Punkte, da die jeweiligen Übergangsenergien fest sind. Die Spektroskopie von Auger-Photoelektron-Koinzidenzen (APECS) in der Photoemission von

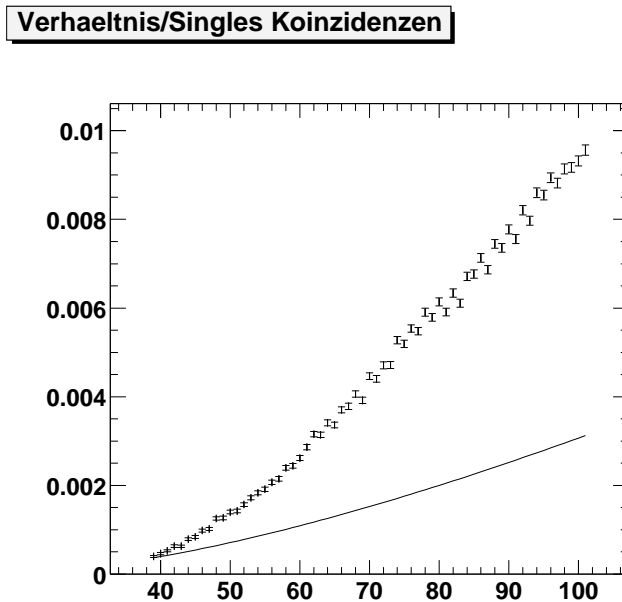


Abbildung 5.10: Verhältnis der Anzahl der koinzidenten Elektronenpaare zur Anzahl der Elektronen aus Einfach-Photoemission in Abhängigkeit der Photonenenergie in eV. Die durchgezogene Linie stellt den Beitrag durch die Zunahme des verfügbaren Raumwinkels dar. Die Normierung wurde so gewählt, so dass die Kurven bei 40 eV zusammenfallen.

Oberflächen wird angewendet, um eine bessere Kontrolle über die Endzustände zu bekommen, da sonst über alle Zustände des nicht detektierten Elektrons integriert wird. Für weitere Details sei auf die Literatur verwiesen, z.B. [HAA78, THU91, JEN89]. Mit einigen Beschränkungen ist auch mit diesem Spektrometer die Detektion von Auger-Photoelektron-Koinzidenzen möglich. Diese Beschränkungen entstehen hauptsächlich durch die hohe Energie der Auger-Elektronen und die damit verbundenen Einschränkungen im Nachweisraumwinkel und in der Energieauflösung. Abbildung 5.11 zeigt die Zwei-Elektron-Energieverteilung bei  $\hbar\omega = 150$  eV. Die Photoelektronen aus dem  $3p_{1/2,3/2}$ -Niveau besitzen hier eine kinetische Energie von ca. 74 eV, während das zugehörige MVV-Auger-Elektron bei 63 eV liegt [BAR96]. In diesem Bereich lässt sich eine schwache Veränderung der Koinzidenzrate feststellen. Durch die niedrige Auflösung in diesem Energiebereich von ca. 10 eV, werden die eigentlich ca. 2 eV breiten Koinzidenzpeaks ([BAR96]) über einen größeren Bereich verteilt, so dass keine deutlichen Strukturen mehr auftreten. Der Vergleich mit Abb. 5.7 zeigt allerdings, dass hier eine leichte Abweichung des Trends vorliegt. Zusätzlich erzeugt jeder diskrete Peak einen zu niedrigen Energien hin reichenden Untergrund, der durch inelastische Stöße der Auger/Photoelektronen entsteht. Dieser Effekt erschwert zusätzlich die Identifikation.

### 5.2.3 Abschätzung des unkorrelierten Untergrundes

In Abschnitt 3.1.2 wurde auf den Beitrag des unkorrelierten Untergrundes hingewiesen. Als unkorreliert werden hier Elektronenpaare angesehen, die nicht durch *ein* Photon erzeugt wurden, sondern durch *zwei* Photonen an unterschiedlichen Stellen auf der Oberfläche. Bei Ereignissen dieses Typs handelt es sich folglich lediglich um die Faltung zweier Einfach-Photoemissionsprozesse. Insbesondere bei hohen Photonenflüssen auf die Probe, d.h. viele Photonen in einem Puls des Synchrotrons, stellt dieser Prozess den wesentlichen Untergrund der Messung dar. Im folgenden soll nun abgeschätzt werden, wie hoch der Anteil der unkorrelierten Ereignisse an der Gesamtheit der Daten ist.

Abbildung 5.12 zeigt die winkelintegrierte Zwei-Elektronen-Energieverteilung bei  $\hbar\omega = 40$  eV. Aufgrund der Energieerhaltung, sind lediglich Summen-Energien von maximal 30 eV erlaubt. Dennoch wurden oberhalb dieser Linie Ereignisse registriert. Insbesondere die markierten Bereiche enthalten einige Ereignisse. Hierbei handelt es sich um die wahrscheinlichsten Kombinationen aus der Faltung zweier Einfach-Photoemissions-Energieverteilungen (siehe Abb. 5.2). Die Bereiche in der Nähe der Achsen entspre-



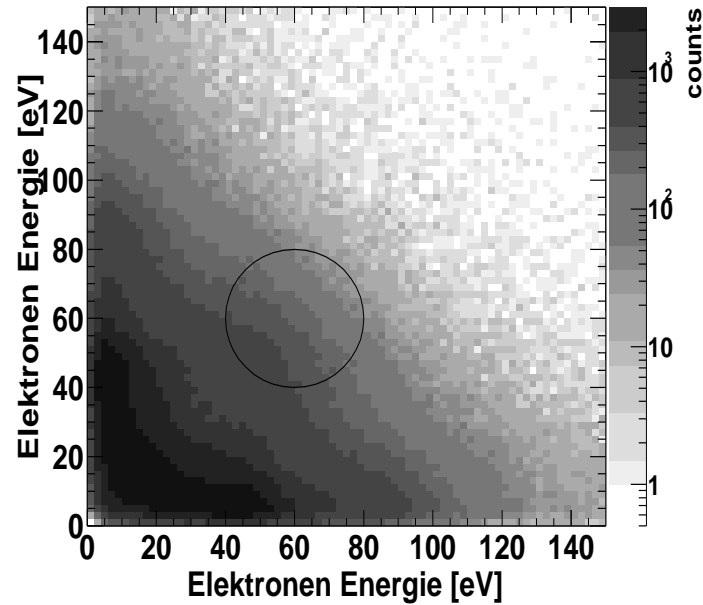


Abbildung 5.11: Zwei-Elektronen-Energieverteilung bei  $\hbar\omega = 150$  eV. Die Intensität im markierten Bereich stammt aus Auger-Photoelektron-Koinzidenzen.

chen Ereignissen, in denen ein Elektron aus dem Bereich des Valenzbandes emittiert wurde, während ein weiteres - durch ein anderes Photon erzeugt - in der Nähe des Sekundärelektronen-Peaks emittiert wurde. Elektronenpaare, die im markierten Bereich auf der Diagonalen liegen, stammen dagegen aus Ereignissen, die durch die Emission zweier unabhängiger Elektronen aus dem Valenzband, erzeugt wurden. Zusätzlich existiert noch ein weiterer Bereich bei niedrigen Energien im Koinzidenz-Spektrum, der durch zwei unkorrelierte Elektronen aus der Nähe des Sekundärelektronen-Peaks stammt. Allerdings kann in diesem Bereich zwischen "echten" und unkorrelierten Elektronenpaaren nicht mehr unterschieden werden.

Der Anteil der unkorrelierten Ereignisse an der Gesamtzahl der Koinzidenz-Ereignisse wird wie folgt bestimmt : Der Anteil der Elektronen aus Einfach-Photoemission, die aus dem Energiebereich des Valenzbandes stammen, ist durch

$$f = \frac{N_V}{N_S} \quad (5.9)$$

gegeben, wobei  $N_S$  die Gesamtzahl der detektierten Einfach-

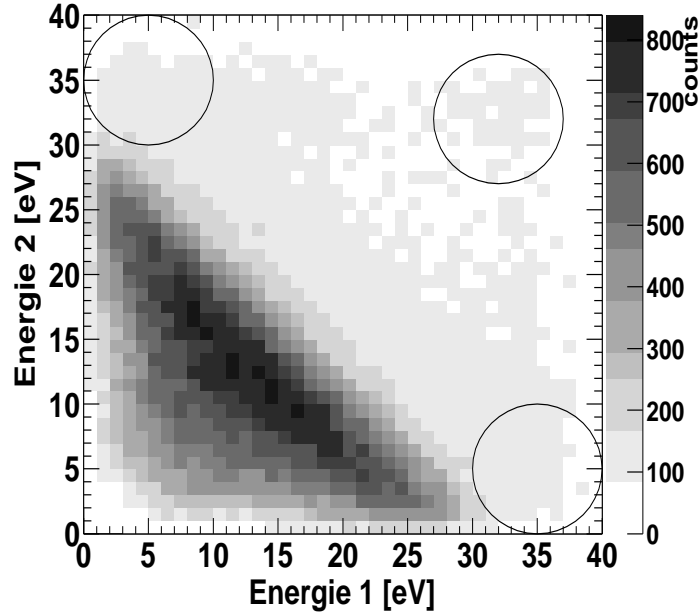


Abbildung 5.12: Zwei-Elektronen-Energieverteilung bei  $\hbar\omega = 40$  eV. Die markierten Bereiche enthalten Ereignisse, die durch unkorrelierte Elektronenpaare (Faltung von zwei Ereignissen aus Einfach-Photoemission) erzeugt wurden.

Photoemissionsereignisse ist und  $N_V$ , die der Elektronen aus dem Valenzband. Die Wahrscheinlichkeit, dass bei Selbstfaltung eines Einfach-Spektrums, zwei Elektronen aus diesem Bereich stammen ist damit  $f^2$ . Wird nun mit  $N_u$ , die Zahl der Ereignisse im Bereich von (35 eV,35 eV) bezeichnet (die nur durch Selbstfaltung des Einfach-Spektrums entstanden sein können), so erhält man die Gesamtzahl der unkorrelierten Ereignisse  $N_{uT}$  mit :

$$N_{uT} = \frac{N_u}{f^2}. \quad (5.10)$$

Der Anteil  $u$  der unkorrelierten Ereignisse an der Gesamtzahl  $N_T = N_{cT} + N_{uT}$  ist schließlich

$$u = \frac{N_{uT}}{N_T} = \frac{N_{uT}}{N_{cT} + N_{uT}}. \quad (5.11)$$

Eine Auswertung der Spektren ergibt für 40 eV einen Anteil der unkorrelierten Ereignisse von knapp 13%. Dieser Wert stellt allerdings eine obere Grenze für die un-

tersuchten Energien dar, da für höhere Photonenenergien der Wirkungsquerschnitt der Doppel-Photoemission deutlich ansteigt (siehe voriger Abschnitt). Damit wird die Wahrscheinlichkeit der Emission zweier tatsächlich korrelierter Elektronen größer, so dass der unkorrelierte Konkurrenzprozess fast vernachlässigbar wird.

Die Zahl von ca. 10% unkorrelierten Ereignissen ist zunächst überraschend gross, da bei einer Wiederholfrequenz von  $f_{rep} = 5$  MHz des Synchrotrons und einer Einfach-Photoemissionsrate von ca.  $f_{single} \approx 3$  kHz, die Wahrscheinlichkeit für ein unkorreliertes Elektronenpaar bei  $(f_{single}/f_{rep})^2 \approx 4 \times 10^{-7}$  liegt. Tatsächlich ist aber nicht diese Wahrscheinlichkeit entscheidend, sondern das Verhältnis zur Zwei-Elektronen-Photoemission. Wie im Abschnitt 3.1.2 erläutert wurde, kann das Verhältnis von unkorrelierten zu echten Koinzidenzen als

$$r = \frac{I^2(\sigma^+)^2}{I\sigma^{++}} \quad (5.12)$$

geschrieben werden ( $I$  : Anzahl der Photonen pro Puls,  $\sigma^{+,++}$  Wahrscheinlichkeit für 1 bzw. 2 Elektronen-Emission). Typischerweise liegt das Verhältnis von Einfach- zu Doppelionisation in der Größenordnung von  $(\sigma^{++}/\sigma^+) \approx 1/100$ , sowie  $\sigma^+ \approx 10^{-3}$ . Damit ergibt sich

$$r \approx 10^{-1}I. \quad (5.13)$$

Da die Einfach-Photoemissionsrate ca. 3 kHz beträgt und die Wahrscheinlichkeit  $\sigma^+ \approx 10^{-3}$  befinden sich pro Puls damit im Schnitt  $f_{single}/(\sigma^+ f_{rep}) = 0.6$  Photonen, so dass  $r \approx 0.06$ . So erklärt sich zumindest die Größenordnung der unkorrelierten Ereignisse im Prozentbereich.

### 5.3 Schwerpunktsbewegung

Wie in Abschnitt 2.4.3 erläutert wurde, tragen verschiedene Prozesse zur Emission zweier Elektronen bei. Dabei ist insbesondere der Beitrag durch Photoelektronen, die in inelastischen Stößen mit einem zweiten Elektron bzw. als Teil eine Sekundärelektronen-Kaskade emittiert wurden, zu beachten. Elektronen aus diesen Prozessen tragen durch die sekundären Stöße keine Information über den primären Prozess, der eigentlich von Interesse ist. Daher ist es zunächst wichtig, festzustellen, ob die beobachteten Elektronenpaare tatsächlich noch eine Signatur aufweisen, die auf die ursprüngliche Erzeugung schließen lässt.

Nach Gleichung (2.43) ist die Schwerpunktsbewegung der Elektronen im kohärenten

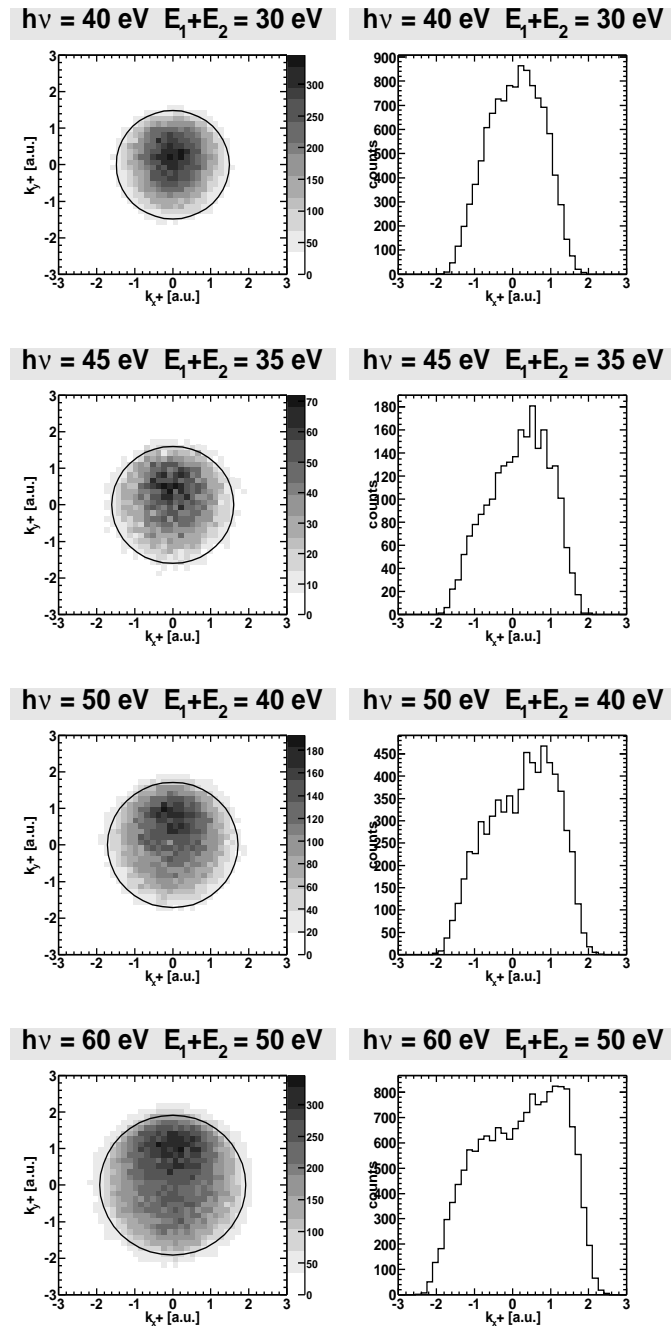


Abbildung 5.13: Abhängigkeit der Schwerpunktsbewegung von der Photonenenergie. Links : Verteilung in der Oberflächenebene, der Kreis zeigt den maximal möglichen Impuls bei der jeweiligen Gesamtenergie, rechts : Projektion auf  $k_y+$  für  $k_x+ \in [-0.2, 0.2]$  a.u. . Die Projektion des Polarisationsvektors auf die Oberfläche liegt entlang der Y-Achse.

Prozess an die durch den Polarisationsvektor des Lichtes vorgegebene Geometrie gebunden  $\hat{e} \cdot (\vec{k}_1 + \vec{k}_2)$ . Daher ist die Betrachtung des Emissionsprozesses in Schwerpunktsystem zunächst nahe liegend. Die Schwerpunktskoordinaten  $\vec{k}_+$  (Schwerpunktsimpuls) und  $\vec{k}_-$  (Relativimpuls) hängen mit denen des Laborsystems über

$$\vec{k}_+ = \vec{k}_1 + \vec{k}_2 \quad \vec{k}_- = \frac{1}{2}(\vec{k}_1 - \vec{k}_2) \quad (5.14)$$

zusammen, d.h. sämtliche gemessenen Impulse werden nach dieser Vorschrift transformiert. Da ferner beim Überwinden der Oberflächenbarriere nur die Impulskomponenten parallel zu Oberfläche erhalten bleiben, stellen diese ein geeignetes Koordinatensystem dar. Um nun möglichst nur Elektronenpaare zu betrachten, die keine inelastischen Stöße innerhalb des Festkörpers erfahren haben, werden nur Ereignisse verwendet, für die die Summenenergie nahe der Schwelle  $E_1 + E_2 = E_{phot} - 2W_\phi$  liegt.

Abbildung 5.13 (oben links) zeigt die Verteilung der  $\vec{k}_\parallel$ -Impulse<sup>1</sup> für eine Photonenenergie von 40 eV und Summenenergie von 30 eV. Hier zeigt sich ebenfalls, wie in der Emissionscharakteristik der Einfach-Photoemission (vergl. Abb. 5.4) eine leichte Ausrichtung zur positiven y-Achse, die durch den Einfluss des Polarisationsvektors erzeugt wird.

Dieser Trend lässt sich auch zu höheren Photonenenergien verfolgen (Abb. 5.13). Durch die größere zur Verfügung stehende Energie verschiebt sich das Maximum der Verteilung im Energiebereich von 40 eV bis 60 eV um ca. 1 a.u. von 0.2 a.u. auf 1.2 a.u. (siehe Abb. 5.13 rechts). Der markierte Kreis gibt den bei der vorgegebenen Gesamtenergie von  $E_1 + E_2 = \hbar\omega - 2W_\phi$  maximal möglichen Impuls an. Durch diese Darstellung kann erstmals nachgewiesen werden, dass die beobachteten Elektronenpaare - zumindest für Energien dicht an der Schwelle - tatsächlich noch eine Signatur des primären Emissionsprozesses tragen.

An dieser Stelle sei noch auf die Analogie zur Doppel-Photoionisation an freien Atomen hingewiesen, die der gleichen Skalierungsregel  $\hat{e} \cdot (\vec{k}_1 + \vec{k}_2)$  unterliegt. Die Betrachtung des Schwerpunktsimpulses der beiden Elektronen entspricht, aufgrund der Impulserhaltung (der Impuls des Photons kann hier vernachlässigt werden), dem auf den Kristall übertragenen Rückstoß, bzw. dem Rückstoß des verbliebenen Ions. Abbildung 5.14 (linke Bildhälfte) zeigt die Impulsverteilung des Helium-Rückstoßions aus einem COLTRIMS-Experiment (COLD Target Recoil Ion Momentum Spectroscopy) bei verschiedenen Energien oberhalb der Doppel-Ionisationsschwelle [DÖA98, KNB02]. Der Polarisationsvektor des Lichtes liegt hier in der XY-Ebene entlang der X-Achse.

<sup>1</sup>Für die Darstellung der Impulse werden atomare Einheiten verwendet :  $\hbar = e = m = 1$

Deutlich zu erkennen ist, wie sich die Impulsverteilung entlang der Polarisationsachse ausrichtet und sich zwei Peaks ausbilden. Durch die Symmetrie der Anordnung und des Targets sind beide Peaks gleich stark ausgeprägt. Die Geometrie der Messung zur Doppel-Photoemission bricht diese Symmetrie, da hier der Lichteinfall unter  $45^\circ$  auf die Oberfläche erfolgt (entsprechend einer Drehung des Polarisationsvektors in die XZ-Ebene). Durch den schrägen Einfall wandern beide Peaks in der XY-Ebene zunächst näher zusammen. Des weiteren bedeutet dies, dass einer der Peaks der Emission der Elektronen auf die Oberfläche zu entspricht, während der zweite als eine Emission *in* den Festkörper verstanden werden kann. Werden nun nur die Elektronen betrachtet, die den Festkörper verlassen, so ergibt lediglich ein Peak, der den direkt emittierten Elektronenpaaren zugeordnet werden kann. Da mit einer gewissen Wahrscheinlichkeit, die Elektronen auch am Elektronengas Gitter des Festkörpers reflektiert werden können und so doch noch die Oberfläche erreichen können, ergibt sich noch ein zweiter, schwächerer Peak in die entgegengesetzte Richtung. Dies ist ansatzweise in der Messung bei  $\hbar\omega = 60$  eV zu erkennen (siehe Abb. 5.13 unten rechts).

Zum besseren Vergleich sind in Abbildung 5.15 die Daten aus einer Messung der Helium Doppelionisation bei 23.5 eV über der Doppelionisationsschwelle gezeigt [WEB03]. Das Koordinatensystem wurde entsprechend der Orientierung der Geometrie im hier vorliegenden Experiment gedreht, so dass die räumliche Lage des Polarisationsvektors identisch ist. Gut zu erkennen ist, wie die Maxima näher zur Achse wandern wie es aufgrund des gedrehten Koordinatensystems zu erwarten ist. Die Verteilung zeigt so sehr gut die Analogie zur Messung an der Oberfläche. Allerdings besitzen hier, aufgrund des fehlenden Symmetriebruchs durch die Oberfläche, beide Maxima die gleiche Intensität.

### 5.3.1 inelastischer Bereich

Die bisher gezeigten Spektren wurden mit Ereignissen erzeugt, deren Summenenergie jeweils dicht an der Emissionsschwelle von  $E_1 + E_2 = \hbar\omega - 2W_\phi$  liegt. In diesem Energiebereich kann davon ausgegangen werden, dass die Elektronen vom Ort der Reaktion bis zur Oberfläche nahezu keine inelastischen Stöße erfahren haben. Elektronenpaare, die eine geringere Energie aufweisen, stammen entweder aus tiefer gebundenen Zuständen des Valenzbandes, oder müssen durch inelastische Stöße Energie verloren haben. Experimentell gibt es keine Möglichkeit, diese beiden Prozesse eindeutig voneinander zu trennen.

Wird wieder von einer Selbstfaltung der Bandstruktur ausgegangen, so gehören Elektronenpaare bis zu einer Summenenergie von  $E_1 + E_2 = \hbar\omega - 2W_\phi - 2E_{fermi}$  zu diesem Über-

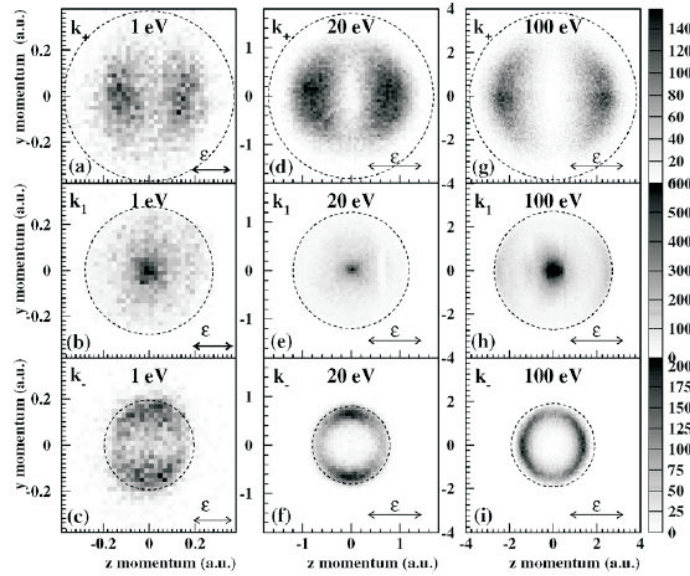


Abbildung 5.14: Impulsverteilungen in der Doppel-Photoionisation von Helium bei (von links nach rechts) 1 eV, 20 eV, 100 eV über der Doppelionisationsschwelle. Obere Reihe  $\vec{k}_+$ , Mitte  $\vec{k}_1$  (Impuls eines der Elektronen), unten  $\vec{k}_-$ . Der Polarisationsvektor des Lichtes liegt in der XY-Ebene entlang des X-Achse (aus [KNB02] )

lappbereich. Elektronenpaare mit noch geringeren Summenenergien dagegen, können nur durch inelastische Stöße erzeugt worden sein. Diese Elektronen zeigen schließlich keinerlei Information über den ursprünglichen Zustand und Ionisationsprozess mehr. Abbildung 5.16 zeigt die Schwerpunktsimpulse bei  $\hbar\omega = 60$  eV und einer Summenenergie des Paares von 15 eV. Die Ereignisse weisen hier keine Vorzugsrichtung mehr auf, das Maximum der Verteilung liegt um den Impuls 0 in der Ebene. Durch die Mehrfach-Stöße ist hier die Richtungsinformation des Prozesses verloren gegangen, so dass eine isotrope Verteilung entsteht.

## 5.4 Relativbewegung

Aus der Bewegung des Schwerpunktsimpulses konnte gezeigt werden, dass die emittierten Elektronenpaare tatsächlich noch eine Information des Emissionsprozesses tragen und nicht nur Teil einer Sekundärelektronenkaskade sind. Mehr Information lässt sich allerdings aus der Relativbewegung der Teilchen gewinnen, da hier direkt die Elektron-Elektron-Wechselwirkung zum Tragen kommt. Wieder ist hier die Betrachtung der

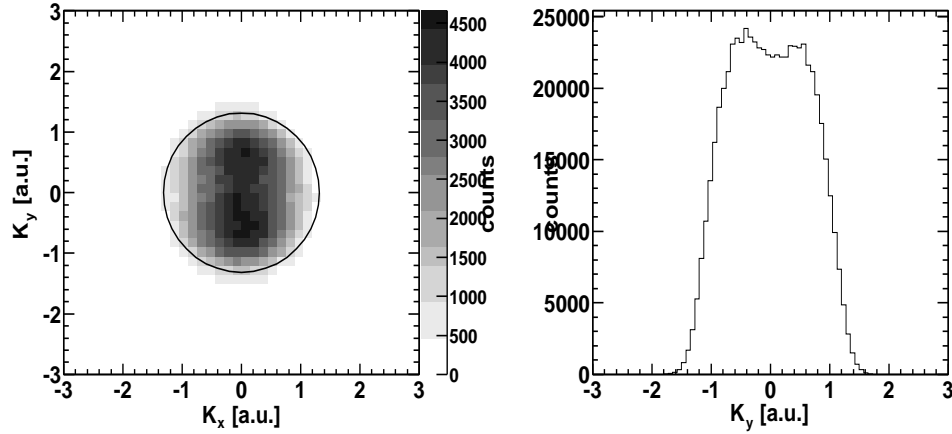


Abbildung 5.15: Schwerpunktswegung in Doppel-Ionisation von Helium bei 23.5 eV über der Doppelionisationsschwelle. Das Koordinatensystem wurde entsprechend der Orientierung des hier vorgestellten Experimentes gedreht.

Impulse in der Ebene parallel zu Oberfläche aufgrund der Erhaltungssätze (siehe Gleichung (2.43)) das geeignete Koordinatensystem.

Abbildung 5.17 zeigt die Relativimpulse in der Oberflächenebene bei einer Photonenenergie von 40 eV und einer Summenenergie von 30 eV. Offensichtlich liegen die meisten Ereignisse auf einem Ring hoher Intensität von ca. 0.5 a.u. Radius. Dabei zeigt sich wieder eine leichte Ausrichtung der Ereignisse entlang der Y-Achse, entsprechend der Richtung des Polarisationsvektors, die auch schon in der Emissionscharakteristik der Schwerpunktimpulse bestimmend war. Diese Ausrichtung wird für höhere Photonenergien noch deutlicher ausgeprägter (s. Abb. 5.18). Die Polardarstellung des Vektors  $\vec{k}_{\parallel}$  in Abb. 5.18 (rechts) demonstriert dies recht deutlich. Im Verlauf von 40 eV bis 60 eV ändert sich die Form der Verteilung von einer nur leicht deformierten, fast isotropen Verteilung zu einer deutlich ausgerichteten Struktur, die einer Dipol-Verteilung ähnelt. Aufgrund der Ununterscheidbarkeit der Teilchen ist diese Verteilung punktsymmetrisch zum Ursprung. Daher kann in diesem Fall nicht mehr zwischen direkt und nach Reflexion emittierten Elektronen unterschieden werden (siehe voriger Abschnitt).

Dieses Ergebnis kann dahingehend interpretiert werden, dass, insbesondere bei zu höheren Photonenergien hin, die Ausrichtung des Relativ- als auch des Schwerpunktimpulses des Paares durch ein schnelles Elektron vorgegeben wird, das den größten Teil der Energie und des Drehimpulses. Zu Parametrisierung der Winkelverteilung der



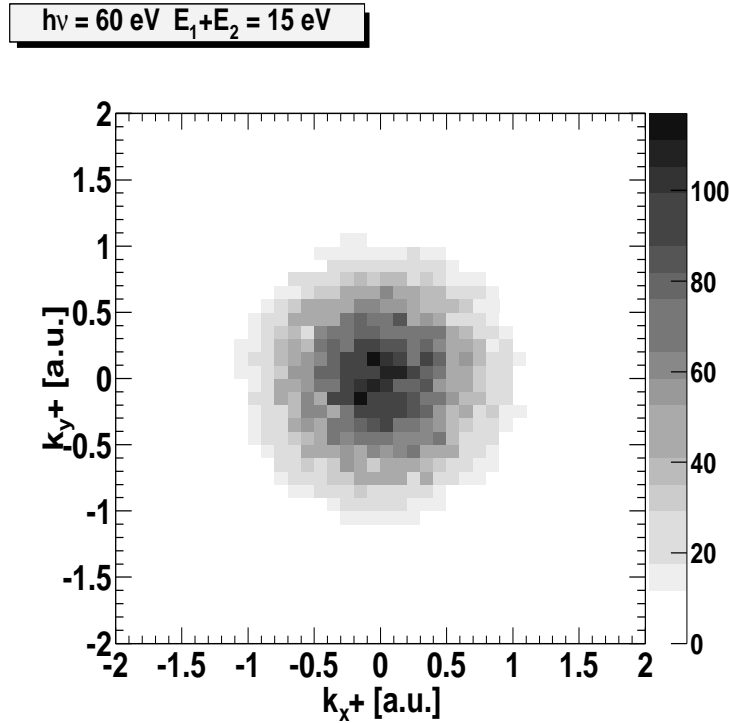


Abbildung 5.16: Schwerpunktsimpuls im inelastischer Bereich ( $\hbar\omega = 60$  eV und  $E_1 + E_2 = 15$  eV). Das Koordinatensystem entspricht dem von Abb. 5.13

Relativimpulse, wird wieder die Analogie zur Doppel-Photoionisation am freien Helium verwendet. Allgemein kann ein einfach differentieller Wirkungsquerschnitt (in der Dipol-Näherung) durch

$$\frac{d\sigma}{d\theta} \sim \frac{1}{4\pi} \left( 1 + \beta \left( \frac{3}{2} \cos^2(\theta) - \frac{1}{2} \right) \right) \quad (5.15)$$

beschrieben werden [KNB02]. Dabei ist  $\beta$  der Asymmetrie-Parameter und  $\theta$  der Winkel zwischen der Polarisationsachse und der Emissionsrichtung. Für  $\beta = 2$  ergibt sich eine Dipol-Verteilung,  $\beta = 0$  eine isotrope und für  $\beta = -1$  eine um  $90^\circ$  gedrehte Dipol-Verteilung. Zwar ist dies nicht direkt auf die hier vorliegende Geometrie übertragbar, da hier der Polarisationsvektor nicht in der Beobachtungsebene liegt, sondern nur in der Projektion auf die Oberflächenebene. Zusätzlich legt der Kristall eine weitere Achse fest, so dass der Wirkungsquerschnitt nicht mehr in der Form 5.19 parametrisiert werden kann. Überraschenderweise zeigt sich dennoch, dass die Anpassung dieser Gleichung an die gemessene Verteilung sehr gut gelingt (siehe Abb. 5.19 links). Daher ist der  $\beta$ -Parameter auch hier eine brauchbare Parametrisierung der

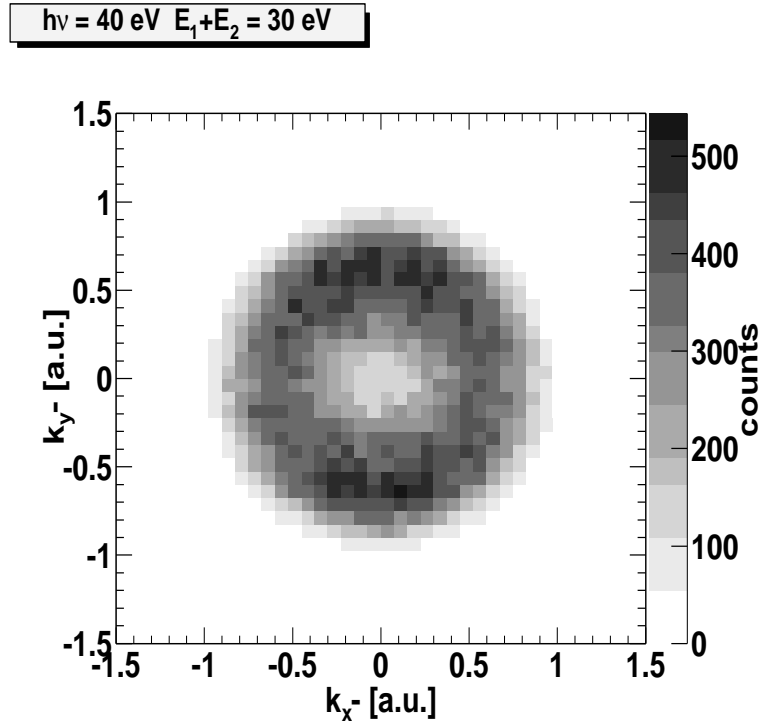


Abbildung 5.17: Relativimpulse der Elektronen in der Ebene parallel zur Oberfläche ( $\hbar\omega = 40$  eV,  $E_1 + E_2 = 30$  eV). Die Projektion des Polarisationsvektors liegt entlang der Y-Achse.

Daten. Das Ergebnis der Anpassung von Gleichung (5.15) an die Winkelverteilungen des Relativimpulses ist in Abb. 5.19 (rechts) dargestellt. Der generelle Trend der Zunahme des  $\beta$ -Parameters mit der Photonenenergie deckt sich wieder mit der Beobachtung am Helium-Atom. Der relativ deutliche Anstieg im  $\beta$ -Parameter zwischen 40 eV und 45 eV ist dabei überraschend, da sonst keine Hinweise vorliegen (z.B. Verhältnis Koinzidenzen zu Einzel-Elektronen), dass in diesem Energiebereich eine sprunghafte Änderung einer Observablen stattfinden könnte.

Die qualitative Ähnlichkeit der Doppel-Photoemission von einer Oberfläche mit der Dynamik der Doppel-Photoionisation eines freien Helium-Atoms in diesen integralen Variablen ist bemerkenswert. Trotz der fundamental unterschiedlichen Struktur der Wellenfunktionen im Grundzustand, der Potentiale und Symmetrien, finden sich wesentliche Merkmale in beiden Fällen wieder. Dies legt den Schluss nahe, dass der eigentliche Prozess der Photoabsorption die entscheidende Rolle spielt. Dies bedeutet,

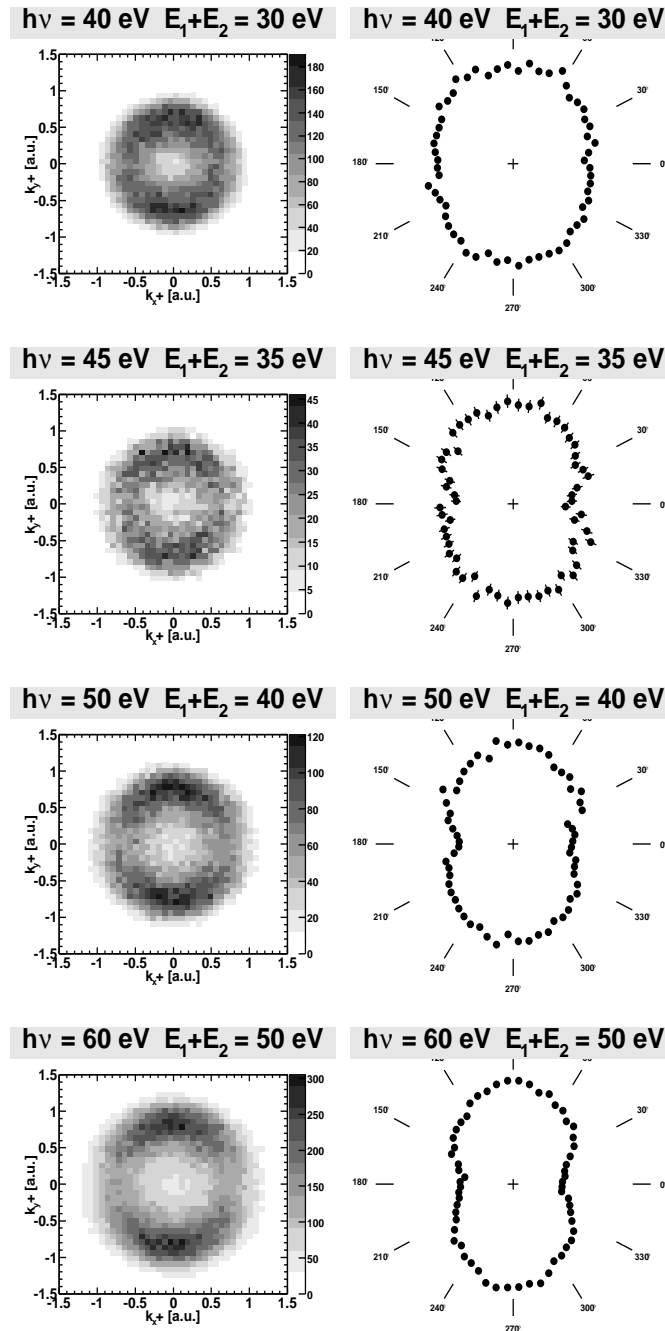


Abbildung 5.18: Relativimpulse der Elektronen in der Ebene parallel zur Oberfläche für verschiedene Photonenenergien (jeweils  $E_1 + E_2 = \hbar\omega - 2W_\phi \pm 2 \text{ eV}$ ). Links in Impulsdarstellung, rechts : Polardarstellung. Die Projektion des Polarisationsvektors liegt entlang der Y-Achse.

dass unabhängig von der Art der Elektron-Elektron-Wechselwirkung, die Kopplung des Photons an das Gesamt-System aus zwei Elektronen und Rückstoss-Partner (freies Ion oder Kristall) immer durch den gleichen Prozess erfolgt. Da ferner die Verteilung der Rückstoss-Impulse (bzw. Schwerpunktsbewegung der Elektronen), unabhängig von der Reaktionsenergie, immer die gleiche Charakteristik aufweisen, kann geschlossen werden, dass der erste Schritt in der Emission der zwei Elektronen immer die Kopplung des Photons an den Ladungsdipol aus Ion und Elektronen darstellt. Der Mechanismus, der schließlich zur Emission von einem oder zwei Elektronen führt bleibt davon unbeeinflusst. Überraschend ist, dass die Struktur und Symmetrie der Oberfläche offenbar keinen deutlichen Einfluss auf die Winkelverteilung von Differenz- und Summenimpuls hat.

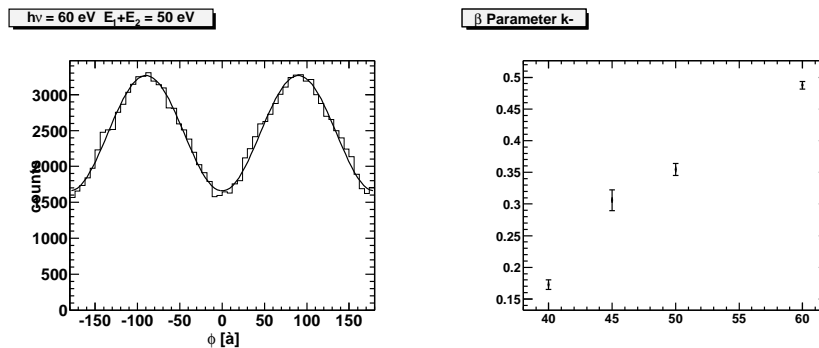


Abbildung 5.19: Parametrisierung der Relativimpuls-Winkelverteilung mit Gleichung 5.15. Links : Fit an die Winkelverteilung bei  $h\omega = 60 \text{ eV}$  und  $E_1 + E_2 = 50 \pm 2 \text{ eV}$ , rechts : Abhängigkeit des  $\beta_-$ -Parameters von der Photonenenergie.

## 5.5 Winkelverteilung der Elektronen

In der vorangegangenen Betrachtung wurden lediglich die Schwerpunkts- und Relativbewegungen des Elektronenpaares untersucht. In dieser Darstellung konnten die Analogien der Doppel-Photoemission am Festkörper zur Ionisation an freien Atomen gut aufgezeigt werden. Allerdings wird durch diese integrale Betrachtung die Emissionscharakteristik der einzelnen Elektronen vernachlässigt. Daher soll in diesem Abschnitt die Emission der individuellen Elektronen, die in Koinzidenz emittiert wurden, näher untersucht werden.

Auch hier ist zunächst die Darstellung auf die Ebene parallel zur Oberfläche beschränkt, da diese Impulskomponenten beim Emissionprozess erhalten bleiben (d.h.

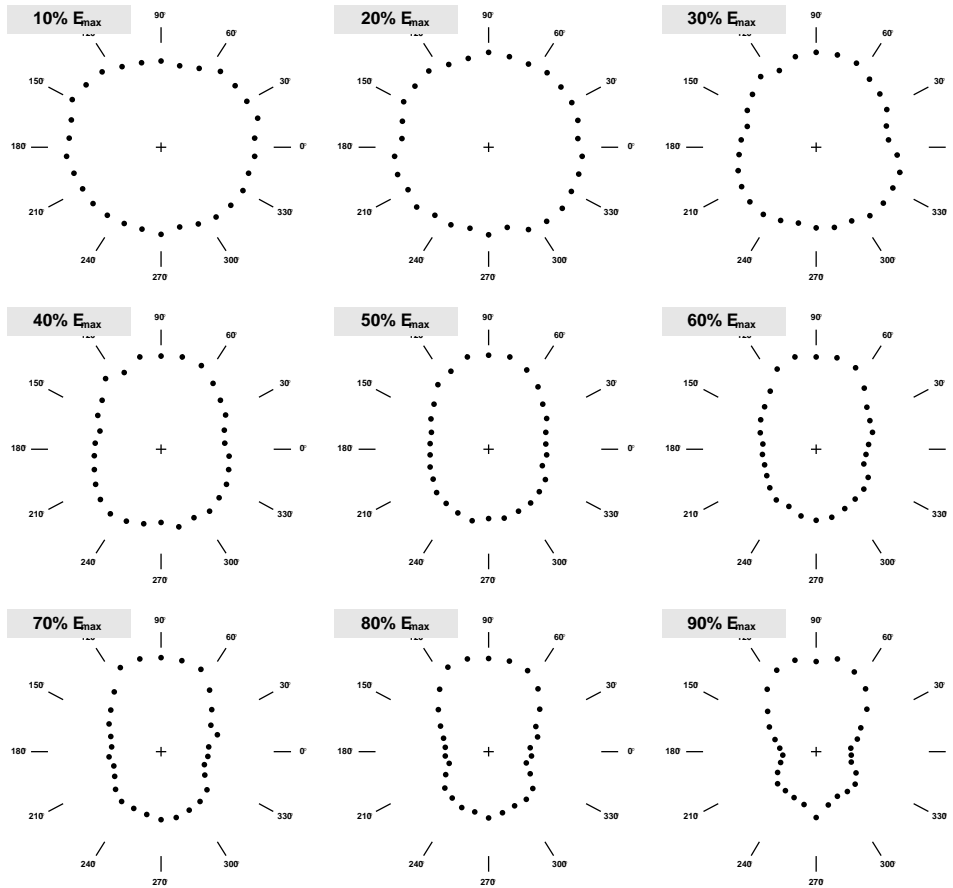


Abbildung 5.20: Verteilung des Azimuthwinkels um die Oberflächennormale eines koinzidenten Elektrons bei  $\hbar\omega = 60$  eV und  $E_1 + E_2 = 50 \pm 2$  eV in Abhängigkeit des Anteils an der Gesamtenergie des Paares. Die Projektion des Polarisationsvektors auf die Oberfläche liegt in  $270 - 90^\circ$  Richtung.

es wird über die Polarwinkel  $\theta$  integriert). Abbildung 5.20 zeigt die Azimuthal-Winkelverteilungen eines koinzidenten Elektrons in Polar-Darstellung, wobei die Energieaufteilung als auch die Summenenergie des Paares festgehalten ist. Die Projektion des Polarisationsvektors liegt entlang der Y-Achse. Je nachdem welcher Anteil der verfügbaren Energie ( $E_{max} = \hbar\omega - 2W_\phi$ ) durch das betreffende Elektron aufgenommen wird, zeigen sich deutliche Veränderungen in der Emissionscharakteristik. Handelt es sich um ein "langsameres" Elektron ( $10\% E_{max}$ ), so ergibt sich eine nahezu isotrope Winkelverteilung. Je größer der Anteil der kinetischen Energie des Elektron an der Gesamtenergie des Paares ist, desto stärker entwickelt sich die Ausrichtung der Verteilung entlang der Polarisationsrichtung. Dabei ist hier, wie auch in den Spektren der

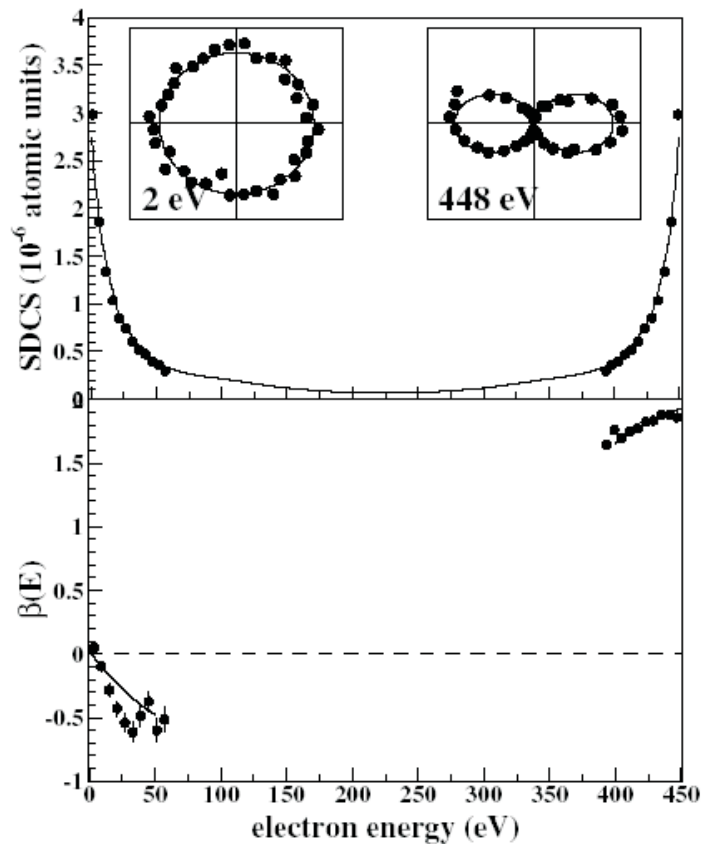


Abbildung 5.21: Winkelverteilung von Elektronen aus der Doppel-Photoionisation von Helium bei 450 eV über der Doppelionisationsschwelle (aus [KNA02]).

Schwerpunktsbewegung, eine deutlich Asymmetrie zwischen der Emission zur positiven und negativen Y-Achse zu beobachten. In Verbindung mit den Erkenntnissen aus den korrespondierenden Winkelverteilungen der Doppel-Photoionisation von Helium, die ein ähnliches Verhalten aufzeigen [KNB02], kann dieser Effekt wieder durch den Symmetriebruch durch die Festkörperoberfläche erklärt werden. Elektronen, die zur positiven Y-Achse detektiert werden, wurden direkt emittiert, während der Anteil, der in der entgegengesetzten Halbebene detektiert wird, eine Reflektion erfahren hat. Zusätzlich lassen sich hier erstmals Unterschiede in der Emission vom Ein-Zentren zum Kristall-Potential feststellen. Der Symmetrie der Oberflächen-Brillouin-Zone entsprechend treten leichte Modifikationen in der Winkelverteilung auf.

Im Kontext der Beschreibung der Doppel-Ionisation am freien Atom wird dies als Signatur des "shake-off" Prozesses gedeutet, d.h. Energie und Drehimpuls des Photons

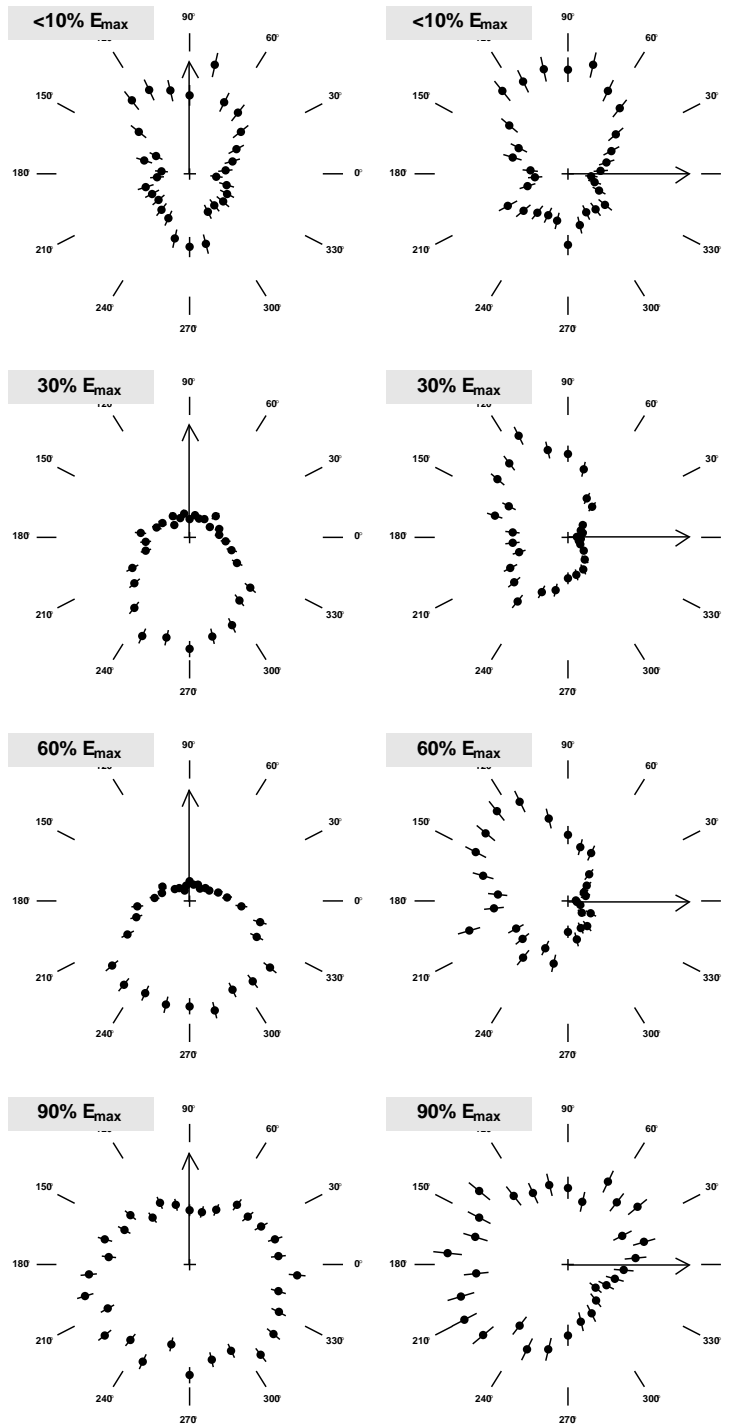


Abbildung 5.22: Winkelverteilung eines koinzidenten Elektrons bei  $\hbar\omega = 60$  eV und  $E_1 + E_2 = 50 \pm 2$  eV. Die Emissionsrichtung des ersten Elektrons ist durch den Pfeil angezeigt, wobei zusätzlich der Anteil (des festen Elektrons) an der Gesamtenergie festgehalten ist.

werden hauptsächlich von einem Elektron absorbiert, das das Atom schnell verlässt und die Winkelverteilung bestimmt. Durch die schnelle Änderung des effektiven Potentials, ist die Wellenfunktion des zweiten Elektrons nun nicht mehr ein Eigenzustand des neuen Systems, so dass ein Überlapp mit einer Kontinuumswellenfunktion entsteht. Auf diese Weise wird das zweite Elektron gewissermaßen "abgeschüttelt".

Diese Tatsache lässt sich weiter verdeutlichen, wenn zusätzlich zur Energieaufteilung zwischen den Elektronen auch die Emissionsrichtung des nicht gezeigten Elektrons festgehalten wird. Abb. 5.22 zeigt dazu - wie auch Abb. 5.20 - den Emissionswinkel eines koinzidenten Elektrons in der Ebene. Die Emissionsrichtung des jeweils anderen Elektrons ist durch den Pfeil angezeigt. Auf der linken Seite ist dies stets die Richtung der Polarisierung (Projektion auf die Oberfläche), während die rechte Seite den Fall für Emission senkrecht (in der Oberflächenebene) dazu darstellt. Deutlich zu sehen ist, dass bei geringer Energieaufnahme des in der Richtung fest gehaltenen Elektrons die Emissionscharakteristik des zweiten für beide Fälle recht deutliche Ähnlichkeiten aufweist und die Strukturen aus der Einfach-Photoemission zeigt. Verschiebt sich die Energieaufteilung, so ist eine deutliche Ausrichtung der Emission zu beobachten. In der Projektion auf die Oberfläche laufen die Elektronen damit vorzugsweise unter  $180^\circ$  auseinander. Wird schließlich der Großteil der Energie durch das in der Richtung fixierte Elektron aufgenommen, so ist der Emissionswinkel des zweiten zunehmend isotrop. Die leichte Asymmetrie der Verteilungen in der rechten Spalte im Bezug zur X-Achse können wiederum durch die Skalierungsregel  $\hat{e} \cdot (\vec{k}_1 + \vec{k}_2)$  verstanden werden, da der so der Gesamtimpuls des Paares wieder in Richtung des Polarisationsvektors weist.

### 5.5.1 CTMC-Simulation

Zum Verständnis der Dynamik quantenmechanischer Vielteilchenprobleme ist es in gewissen Grenzen nützlich, auf klassische Modelle zurückzugreifen, um durch fehlende Übereinstimmung quantenmechanische Korrelationen deutlich zu machen. In diesem Kontext wurde in der atomaren Stossphysik die Classical Trajectory Monte Carlo-Methode (CTMC) entwickelt (z.B. [ABR64, SCT89, COH96]). Die zu Grunde liegende Idee ist die Behandlung sämtlicher beteiligter Teilchen als klassische, punktförmige Ladungsträger, die sich nach den klassischen Bewegungsgleichungen beschreiben lassen. Der quantenmechanische Charakter des Systems wird durch eine statistische Verteilung der Anfangsbedingungen simuliert. Bei der Simulation eines Stoss eines geladenen



Teilchens auf ein neutrales Wasserstoff-Atom wäre dies beispielsweise der Stossparameter des Projektils, sowie die Startphase des Elektrons auf einer (klassischen) Bahn um das Proton. Die Bewegung der Teilchen wird dabei schrittweise numerisch integriert bis (innerhalb der gewünschten Präzision) ein Endzustand erreicht wird. Anschließend wird mit - erneut aus Zufallsvariablen gewonnenen - Anfangsbedingungen eine neue Rechnung begonnen. Dies wird so oft ausgeführt, bis ausreichend Ereignisse gesammelt wurden. Die Analyse der so erhaltenen Daten geschieht analog zur der Analyse der experimentell gewonnenen Daten, so dass alle Schnitte und Projektionen im Impulsraum durchgeführt werden können. So ist auch leicht ein direkter Vergleich möglich.

Wie kann nun diese Technik auf die Zwei-Elektronen-Photoemission an Oberflächen angewendet werden? Hierzu wird angenommen, dass das Photon durch ein Elektron absorbiert wird und anschließend an einem weiteren Elektron des Festkörpers streut. Unter geeigneten kinematischen Bedingungen können anschließend beide Elektronen die Oberflächenbarriere überwinden. Diese Behandlung entspricht dem inkohärenten Prozess, der in Kapitel 2 beschrieben wurde. So wird das absorbierende Elektron zum "Projektil" und das zweite Elektron zum Target. Das Projektil besitzt Energien von 0 bis zur maximalen durch das Photon vorgegebenen Energie. Hier wird vernachlässigt, dass das Photoelektron normalerweise die Dichte der Zustände widerspiegelt. Da allerdings in der nachfolgenden Analyse Schnitte auf feste Gesamtenergien des Paares durchgeführt werden, ist das exakte Energiespektrum diese Projektile nicht von entscheidender Bedeutung.

Für das Target wird ein freies Elektron mit einer parabolischen Dispersion angenommen, wobei alle Zustände bis zur Fermi-Energie gleich besetzt sind. Dies stellt sicherlich eine grobe Vereinfachung dar, da die Bandstruktur von Kupfer bereits deutliche Abweichungen von der Dispersion eines freien Elektrons zeigt. Allerdings werden in der späteren Analyse, wie auch bei den experimentellen Daten, Schnitte in der Gesamtenergie des Paares durchgeführt, so dass die tatsächliche Dichte der Zustände keinen entscheidenden Einfluss auf die Spektren hat. Für die Wechselwirkung der Elektronen miteinander wird ein abgeschirmtes Coulomb-Potential des Typs

$$V(r) = \frac{e^{-\lambda/r}}{r} \quad (5.16)$$

verwendet, wobei  $\lambda$  der Abschirmparameter ist. Die Berechnung wird immer in der gleichen Geometrie mit einem aus einer Zufallsvariablen ermittelten Stossparameter durchgeführt. Die Integration wird abgebrochen, sobald die Änderung beider Impulsvektoren pro Iterationsschritt ( $|\Delta p/p|$ ) kleiner als  $10^{-3}$  wird. Diese Genauigkeit hat

sich als ausreichend herausgestellt. Zusätzlich kann intern Energie- und Impulserhaltung des Elektronenpaares überprüft werden. Anschließend wird das Koordinatensystem um alle drei Achsen um einen ebenfalls zufälligen Winkel gedreht. Hierdurch soll die Isotropie des Prozesses im Festkörper simuliert werden. Bewegen sich nun beide Elektronen auf die Oberfläche zu, so wird die Transmission durch die Oberfläche durch Anwendung von Gleichung (2.29) simuliert, indem von der Impulskomponente entlang der Oberflächen-Normalen, der Anteil

$$K_{\perp} = \sqrt{\frac{2m}{\hbar}(E_{Fermi} + W_{\phi})} \quad (5.17)$$

abgezogen wird. Hierdurch lässt sich die Brechung an der Oberfläche gut simulieren. Um auch die Möglichkeit der Reflektion durch das Gitter einzubinden, wird zusätzlich ein Teil (50 %) der Elektronen, die sich von der Oberfläche weg bewegen, zurück gespiegelt. Der Einfluss des (periodischen) Gitters wird nicht mit einbezogen, da hier ein "freies Elektronengas" angenommen wird, d.h. die Streuung durch individuelle Kerne ist vernachlässigbar.

Alle Ereignisse, die so den Bereich außerhalb des Festkörpers erreichen können, werden für die spätere Analyse gespeichert. Für die Abschirmlänge wurde ein Wert von 2 a.u. [FOP02, FOM03] und für die Fermi-Energie ein Wert von 10 eV verwendet. Die genauere Auswertung zeigte hier, dass kleinere Änderungen (10-20%) in diesen Parametern die Spektren qualitativ nicht wesentlich beeinflussten.

### 5.5.2 Vergleich und Interpretation

Dieses Modell stellt sicherlich eine starke Vereinfachung des vollständigen Problems dar. Jedoch lassen sich so einige qualitative Eigenschaften auf ihren Ursprung hin untersuchen. Abbildung 5.23 zeigt die simulierten Zwei-Elektronen-Energiespektren für eine Photonenenergie von 40 eV (links) und 60 eV (rechts). Während bei 40 eV noch eine Ähnlichkeit des gemessenen (s. Abb. 5.7 oben links) mit dem simulierten Spektrum festzustellen ist, weist das Spektrum bei  $\hbar\omega = 60$  eV starke Abweichungen auf. Die gemessenen Daten zeigen einen wesentlich deutlicheren Trend zu ungleicher Energieaufteilung auf.

Die gute Übereinstimmung des Spektrums bei 40 eV mit der Simulation, kann wieder auf die Diskussion in Abschnitt 5.2.1 zurück geführt werden. Hier wurde deutlich, dass sich die qualitative Form des Spektrums (gleiche Energieaufteilung wird bevorzugt) bereits durch die Energieabhängigkeit der Fluchtkegel der Elektronen unter der Oberfläche erklären lässt.

Die deutliche Abweichung in der Energieaufteilung bei 60 eV im Vergleich zur CTMC-Simulation, als auch der Raumwinkel-Berechnung, zeigt dagegen, dass hier die im Festkörper stattfindenden Prozesse eine wesentlich wichtigere Rolle spielen.

Um nun die einzelnen Prozesse indentifizieren zu können, soll die Emissionscharakteristik der Elektronenpaare aus der Simulation mit denen der gemessenen Daten verglichen werden. Hierzu ist in Abb. 5.24 die Winkelverteilung eines Elektrons bei fest gehaltenem Emissionswinkel und Anteil an der Gesamtenergie des anderen Elektrons gezeigt (analog Abbildung 5.20). Die linke Seite zeigt wieder die gemessenen Daten, die rechte die aus der Simulation gewonnenen, wobei jeweils die Emissionsrichtung des fest gehaltenen Elektrons bei  $90^\circ$  liegt. In Abhängigkeit der Energieaufteilung zeigt sich, dass insbesondere für ungleiche Energien, die Winkelverteilungen deutlich voneinander abweichen. In der Simulation zeigt sich stets eine starke Abhängigkeit der Emissionsrichtung des Elektrons von der des fest gehaltenen. Das deutliche Maximum liegt hier stets in der entgegengesetzten Richtung. Ein ähnliches Verhalten ist in der Messung nur für Energieaufteilungen zu sehen, bei denen beide Elektronen mindestens 30% der Energie tragen. Verschiebt sich das Verhältnis des Energien jeweils weiter zu einem der Elektronen, so treten deutliche Abweichungen zwischen Simulation und Messung auf. Dieser Effekt ist bereits aus den oben beschriebenen Spektren zur Energieaufteilung zu erwarten gewesen, da auch hier im Bereich ungleicher Energieaufteilung deutliche Abweichungen zu beobachten sind. Offensichtlich treten in diesem Bereich Effekte auf, die durch die klassische Behandlung in der Simulation nicht reproduziert werden können. Wie können diese Erkenntnisse nun interpretiert werden ? Tragen beide Elektronen einen deutlichen Anteil an der Gesamtenergie, so kann davon ausgegangen werden, dass beide Teilchen eine "harte" Wechselwirkung erfahren haben, d.h. die Energie wurde durch einen direkten Stoss übertragen. Gerade dieser Stoss wird durch die Simulation beschrieben und führt zu der beobachteten starken Ausrichtung der Winkelverteilungen. Diese Ausrichtung in der Oberflächenebene ist eine Konsequenz aus der festen Winkelbeziehung der Elektronen nach einem elastischen Stoss (beim elastischen Stoss zweier Teilchen gleicher Masse, wobei eines im Laborsystem ruht, beträgt der Streuwinkel stets  $90^\circ$ ).

Liegt eine deutlich ungleiche Energieaufteilung der Elektronen vor, so kann, im Bezug auf die Interpretation als (e,2e)-Stoss, nur ein geringer Energieaustausch stattgefunden haben. Trotz der geringen Wechselwirkung findet sich hier in der Messung der überwiegende Teil der Intensität. Zwar wäre bei Mott-Streuung ebenfalls ein Maximum der Energieaufteilung bei extrem ungleicher Aufteilung zu erwarten, allerdings werden durch die Oberflächenbarriere diese Ereignisse effektiv unterdrückt : ist der Impuls-

übertrag aus der Streuung nur gering, so kann das langsame Elektron die Schwelle nicht überwinden. Daher kann keine Koinzidenz nachgewiesen werden.

Dies alles legt den Schluss nahe, dass hier ein weiterer Prozess zur Emission der Elektronen beiträgt, der nicht durch einen einfachen Stoss beschrieben werden kann. Die Betrachtung der Winkelverteilung ergibt, dass hier der größte Teil des Drehimpulses durch das schnellere Elektron aufgenommen wird, d.h. die Winkelverteilung ähnelt wieder der Verteilung eines Elektrons der gleichen Energie aus Einfach-Photoemission. Auch hier hilft der Blick auf die Doppel-Photoionisation am freien Helium-Atom. Insbesondere für hohe Photonenenergien ( $> 100$  eV) kann durch die kinematischen Signaturen in den Winkelverteilungen zwischen verschiedenen Prozessen unterschieden werden [KHE02, KNA02]. Von Knapp *et al.* [KNA02] wurde die Winkelverteilung der Elektronen nach Doppel-Photoionisation von Helium mit 450 eV über der Doppel-Photoionisationsschwelle vermessen. Die Winkelverteilung eines der Photoelektronen ist in Abbildung 5.21 gezeigt. Für sehr ungleiche Energieaufteilungen dominiert hier der "shake-off" das Emissionsverhalten. Dies bedeutet ein Elektron absorbiert Energie und Drehimpuls des Photons und verlässt das System schnell. Das zweite Elektron kann sich nicht schnell genug dem veränderten Potential anpassen und wird durch einen Überlapp mit einer Kontinuums-Wellenfunktion ins Vakuum emittiert. Die Emission geschieht dabei nahezu isotrop. Der shake-off ist damit ein Test der Korrelation der Elektronen im Grundzustand, entsprechend dem Feynman-Graphen a) in Abbildung 2.7.

Steigt der Anteil der kinetischen Energie des langsamen Elektrons an der Gesamtenergie, so verändert sich die kinematische Signatur, so dass sich eine feste Winkelbeziehung zwischen den Elektronen bildet, deren Maximum bei etwa  $90^\circ$  liegt [KNA02]. Entsprechend dem Feynman-Graphen b) (Abb. 2.7) wird dieser Prozess als TS1 oder "knock-out" bezeichnet. D.h. ein Elektron absorbiert das Photon und streut intern am zweiten Elektron, das ebenfalls ins Vakuum emittiert wird. Durch die Existenz der Oberfläche und die Beschränkung der Betrachtung auf die Projektion der Winkel auf die Oberfläche wird hier nicht ein Zwischenwinkel von  $90^\circ$  beobachtet, sondern eine "scheinbare"  $180^\circ$ -Streuung.

Dieses deutliche Separation dieser Prozesse ist bei Helium allerdings nur bei hohen Photonenenergien möglich, tatsächlich existiert hier ein nur schwer in diesen Begriffen zu beschreibender Übergangsbereich. Zusätzlich muss beachtet werden, dass die Amplituden der Beiträge kohärent addiert werden müssen.

Ein Argument, warum hier schon bei relativ niedrigen Energien eine grobe Trennung möglich ist, ergibt sich möglicherweise durch die stärkere Abschirmung der Elektronen

im Festkörper. Die Wechselwirkung im Endzustand (Feynman-Graph b)) ist wesentlich von der Abschirmlänge der Elektronen abhängig. Beim freien Atom geschieht die Emission ins Vakuum, daher kommt in diesem Fall die Coulomb-Wechselwirkung voll zum Tragen. Der Beitrag zum gesamten Wirkungsquerschnitt als auch der Einfluss auf die Winkelverteilungen ist daher wesentlich stärker. Im Festkörper dagegen besitzt die Abschirmlänge Werte in der Größenordnung von ca. 1-2 a.u. [FOM03]. Daher kann in diesem Fall davon ausgegangen werden, dass der Beitrag der Endzustandswechselwirkung geringer ist. Die Unterdrückung dieses Prozesses sollte damit zu einer Erhöhung des relativen Beitrags aus der Grundzustandswechselwirkung, d.h. des shake-off, führen.

Eine genauere Analyse der Simulation zeigt auch, dass der Wert der Abschirmlänge nicht entscheidend für die kinematische Signatur des Streuprozesses ist. Unabhängig vom jeweiligen Wert, handelt es sich stets um einen elastischen Stoss, der in der beschriebenen Geometrie eine (scheinbare) 180°-Streuung aufweist. Die Abschirmlänge hat vielmehr einen Einfluss auf die *Intensität* des Prozesses. Bei einer kleineren Abschirmlänge erzeugen auch nur kleinere Stossparameter einen ausreichenden Impulsübertrag, um beide Elektronen ins Vakuum zu emittieren. D.h. bei gleicher Anzahl der Projektile werden so weniger Elektronenpaare emittiert. Wird die Abschirmlänge von  $\infty$  (volles Coulomb-Potential) auf 2 a.u. erniedrigt, so ergibt sich keine qualitative Änderung der Winkel-Spektren. Die Intensität fällt allerdings etwa um den Faktor 3. Der starke Beitrag eines "shake-off"-artigen Prozesses in der Zwei-Elektronen-Photoemission von Oberflächen ist überraschend, da zunächst für den Grundzustand der Elektronen im Festkörper ein Ein-Teilchenbild (in einem effektiven Potential, dass von den umgebenden Elektronen erzeugt wird) ausreichend ist. Da aber gerade das Vorhandensein des "shake-off" auf der korrelierten Grundzustandswellenfunktion beruht, sind die Ergebnisse ein deutlicher Hinweis darauf, dass ein Ein-Teilchenbild für die Beschreibung des Emissionsprozesses nicht ausreichend ist. Insbesondere legen diese Erkenntnisse den Schluss nahe, dass die theoretische Behandlung des Zwei-Elektronen-Photoemissionsprozesses sich nicht auf die Wechselwirkung der Elektronen im Endzustand beschränken sollte. Vielmehr muss das Modell um eine adäquate Beschreibung des Grundzustandes erweitert werden.

### 5.5.3 Korrelationsloch

Eine der Aussagen der Theorie ist die Existenz des "Korrelationsloches". Darunter wurde ein Bereich im Impulsraum eines Elektrons verstanden, in dem kein zweites Elek-

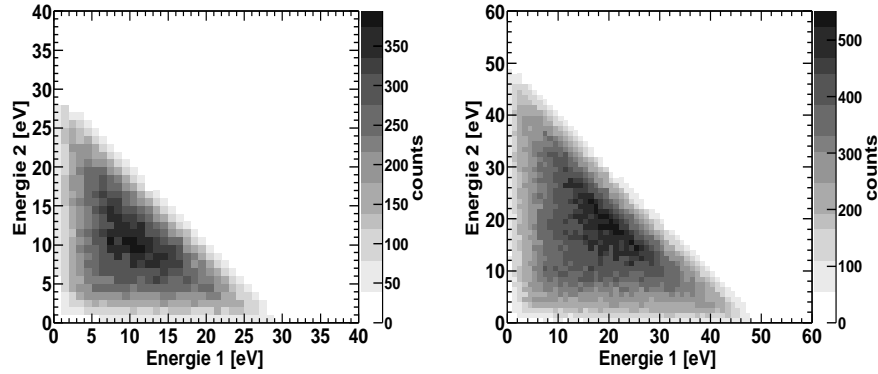


Abbildung 5.23: Simulation der Zwei-Elektronen-Energieverteilung für  $\hbar\omega = 40$  eV (links) und  $\hbar\omega = 60$  eV (rechts) (vergl. die Messdaten aus Abb. 5.7)

tron nachgewiesen werden kann. Dies ist eine direkte Folge der Coulomb-Abstossung der Elektronen. Die Größe des Verdrängungsbereiches erlaubt Rückschlüsse auf die effektive Abschirmlänge der Elektronen im Festkörper. Dieser Effekt sollte bei gleicher Energieaufteilung leicht als Lücke in der Winkelverteilung eines Elektrons nachzuweisen sein, wobei die Emissionsrichtung des festgehaltenen Elektrons genau im Zentrum dieses Bereiches liegt (Abb. 5.25).

Die bisher vorgestellten Spektren erlauben dies noch nicht, da hier über verschiedene Polarwinkel integriert wird. An dieser Stelle muss auf die vollständig differentiellen Daten zurück gegriffen werden. Hierzu ist in Abb. 5.26 der Impuls eines der Elektronen in der Oberflächenebene gezeigt. Die Position des festgehaltenen Elektrons ist durch (●) markiert. Es wurde zusätzlich eine Bedingung auf gleiche Elektronenenergien gesetzt, wobei die jeweiligen Energien im Intervall 10..15 eV liegen. Tatsächlich ist auch hier ein Bereich um die Emissionsrichtung des ersten Elektrons zu erkennen in dem nur eine geringe Wahrscheinlichkeit besteht, ein zweites Elektron zu detektieren. Allerdings ist hier aufgrund der geringen statistischen Signifikanz keine quantitative Auswertung möglich.

Eine Möglichkeit die Probleme, die durch die geringe Statistik entstehen, zu umgehen, ist über die individuellen Emissionswinkel zu integrieren und die Darstellung in Relativkoordinaten zu wählen. Da die Größe des Korrelationsloches in Impulsdarstellung nicht wesentlich von der Emissionsrichtung des ersten Elektrons abhängig ist (vergl. Abb. 5.25), kann hier durch die Wahl der Relativkoordinate  $\vec{k}_- = 1/2(\vec{k}_1 - \vec{k}_2)$ , die Größe des Bereiches direkt abgebildet werden. Tatsächlich ist diese Darstellung für die

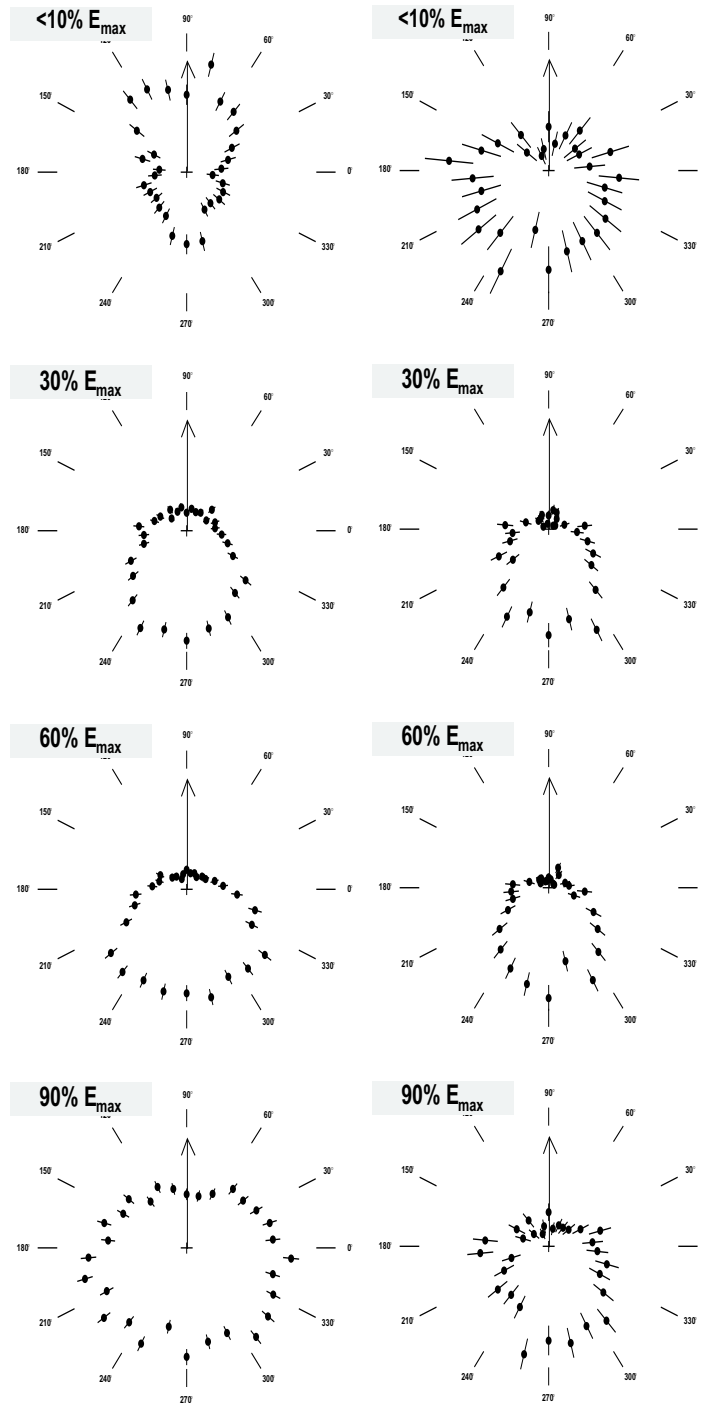


Abbildung 5.24: Vergleich der Winkelverteilungen aus Messung (linke Spalte) und CTMC-Simulation (rechte Spalte). Emissionswinkel und Anteil an der Gesamtenergie des Paares ist für eines der Elektronen festgehalten.  $\hbar\omega = 60$  eV und  $E_1 + E_2 = 50 \pm 2$  eV. Die Intensitäten sind auf das jeweilige Maximum der Verteilung normiert.

Auswertung der experimentellen Daten vorteilhaft, da so nicht über einen endlichen Emissionskegel für das festgehaltene Elektronen integriert werden muss, was zwangsläufig zu einer "Verschmierung" des Randes des Loches führt. Die Umrechnung auf Relativkoordinaten ist in Abb. 5.27 ausgeführt worden. Gezeigt sind die Relativimpulse für Elektronenpaare mit gleicher Energieaufteilung ( $E_1 = E_2 = 15$  eV) bei  $\hbar\omega = 40$  eV. Deutlich zu erkennen ist das Intensitätsminimum um den Ursprung. Zur genaueren Auswertung ist in Abbildung 5.28 die Integration über den Azimuthal-Winkel durchgeführt worden (durchgezogene Linie). Der Maximalwert wird bei ca. 0.35 a.u. erreicht, entsprechend einem Durchmesser des Korrelationsloches von ca. 0.7 a.u. (man beachte den Faktor 1/2 in der Definition des Relativimpulses) in der Darstellung der Einzelimpulse. Dieser Wert ist in guter Übereinstimmung mit dem aus Abb. 5.25 grafisch gewonnenen Wert.

Bei der Interpretation der Spektren ist jedoch zu beachten, dass hier gleichzeitig auch die Grenzen des experimentellen Aufbaus eine Rolle spielen. Sind Energie und Emissionsrichtung der beiden Elektronen nahezu identisch, so sind auch deren Trajektorie im Spektrometer und damit auch ihre Flugzeit und Auftreffort auf dem Detektor sehr nahe beieinander. An dieser Stelle fällt unter ungünstigen Bedingungen das zweite Elektron in die durch das erste Elektron erzeugte Totzeit, so dass dieses nicht mehr nachgewiesen werden kann. Folglich wird schon durch den experimentellen Aufbau ein dem Korrelation-Loch ähnlicher Effekt induziert. Um testen zu können, in wie weit sich die Totzeit des Detektors auf die Form der Spektren auswirkt, wurde in der Rekonstruktion der Ereignisse eine künstliche Totzeit eingefügt, indem auf jedem Kanal Ereignisse mit einem geringen Zeitunterschied unterdrückt werden (siehe Abb. 5.28 (unterbrochene Linie)). Bereits die Vergrößerung der Totzeit um ca. 3 ns führt zu einer deutlichen Vergrößerung des Minimums. Daraus folgt, dass die Interpretation des gemessenen Minimums als "Korrelationsloch" nicht ohne Einschränkungen möglich ist. Zwar ist auch hier noch eine Stufe bei 0.35-0.4 a.u. zu erkennen, allerdings kann nicht eindeutig geklärt werden, wo die Begrenzung des Minimums durch die Totzeit gegeben ist. Der Wert von 0.35 a.u. kann daher nur als obere Abschätzung angesehen werden. Bemerkenswert in Abb. 5.26 ist allerdings die schwach auftretende periodische Variation der Intensität. Diese besitzt gerade die Symmetrie der (Oberflächen)-Brioullin-Zone von Cu(111), entsprechend dem LEED-Abbild der Oberfläche. Möglicherweise kann hier ein dem LEED-Vorgang ähnlicher Prozess beobachtet werden. Zur Erzeugung eines LEED-Abbildes der Oberfläche wird im Allgemeinen die Oberfläche mit niederenergetischen Elektronen (mit wohldefinierter Energie und Impuls) beschossen. Detektiert werden die elastisch gestreuten Projektile, die, da der Impulsübertrag bei



der Streuung am Gitter immer identisch ist mit einem reziproken Gittervektor ist, das Abbild des reziproken Gitters darstellen. Im hier vorliegenden Fall ist der Impuls des einzelnen Elektrons nicht bekannt, sondern nur der Relativimpuls der beiden Elektronen. Dieser entspricht damit dem Impulsübertrag der Elektronen, sofern zwischen ihnen eine Streuung stattgefunden hat. Da die Wellenfunktion des "Target"-Elektrons wieder die gleiche Periodizität wie das Gitters besitzt, sollten auch in diesem Fall die reziproken Gittervektoren die Impulsüberträge bestimmen. Es handelt sich damit um eine neue Methode LEED-Abbildung, wobei hier der (im Kontext der normalen LEED-Experimente) inelastische Anteil untersucht wird. Ermöglicht wird dies allerdings erst durch die koinzidente Messung von "Projektil"- und "Target"-Elektron.

Weiterhin ist überraschend, dass die Beugungsstrukturen nur für gleiche Energieaufteilung zu sehen ist. Wenn eine Streuung der Elektronen immer einen Impulsübertrag von einem reziproken Gittervektor erzeugen würde, sollte dies unabhängig von der Energieaufteilung sein. Damit sollten auch Abb. 5.18 die gleichen Strukturen aufweisen, was aber nicht beobachtet wird. In Verbindung mit den Erkenntnissen aus dem vorangegangenen Abschnitt kann dies aber durch die zu Grunde liegenden Prozesse erklärt werden. Dort wurde festgestellt, dass bei gleicher Energieaufteilung die ee-Streuung den wesentliche Beitrag darstellt, während in den anderen Bereichen eine shake-off-artige Signatur beobachtet wird. Der shake-off-Prozess stellt dabei keine Streuung der Elektronen im eigentlichen Sinne dar, so dass hier die Beugungsmuster nicht zu erwarten sind. Zur Bestätigung dieser These sind allerdings noch weitere theoretische Untersuchungen nötig.

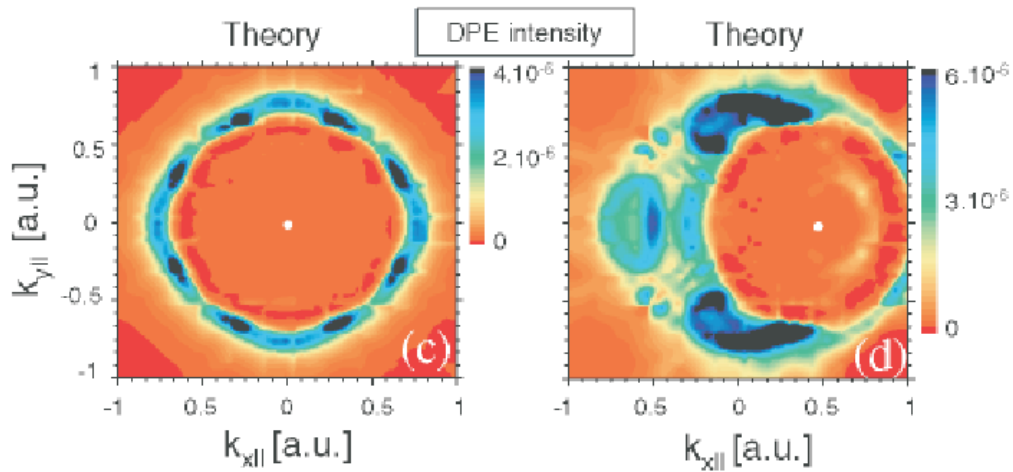


Abbildung 5.25: Darstellung des Korrelationsloches in Impulskordinaten,  $\hbar\omega = 42.4$  eV  $E_1 = E_2 = 16$  eV, berechnet für eine Cu(001)-Oberfläche (aus [FOP02])

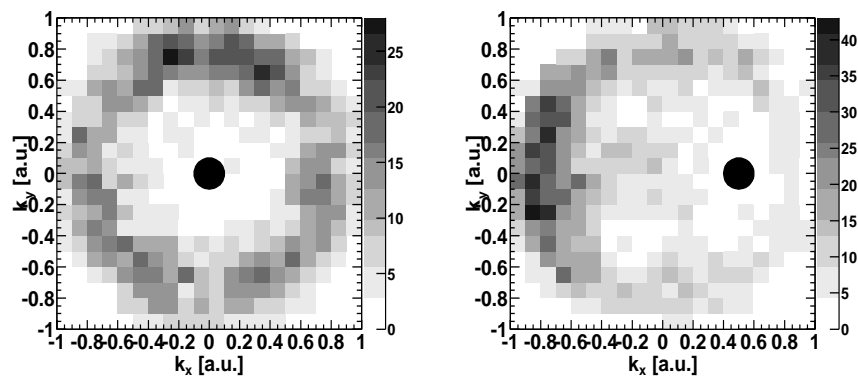


Abbildung 5.26: Elektronenimpulse in der Oberflächenebene (Cu(111)), die Richtung des festgehaltenen Elektrons ist durch (•) angezeigt.  $\hbar\omega = 40$  eV,  $E_1 = E_2 = 10..15$  eV.

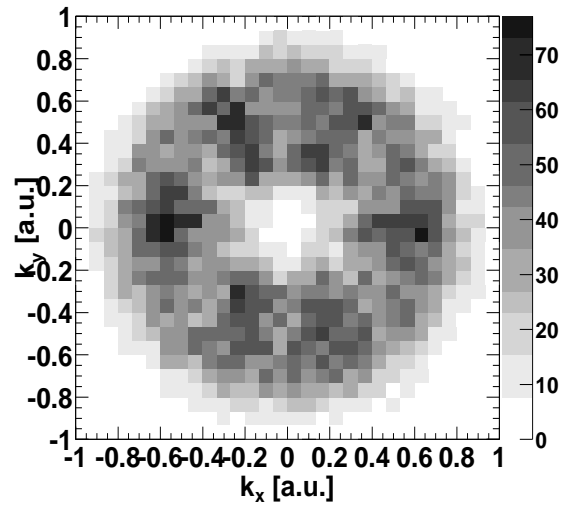


Abbildung 5.27: Relativimpulse in der Oberflächenebene bei  $\hbar\omega = 40$  eV,  $E_1 = E_2 = 10..15$  eV.

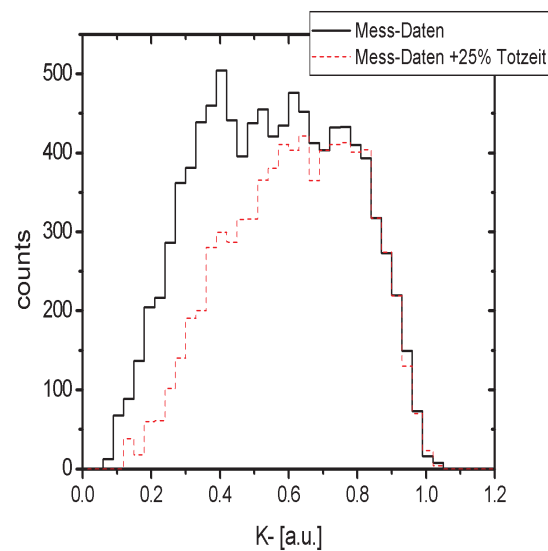


Abbildung 5.28: Relativimpuls der Elektronen in der Oberflächenebene. Die durchgezogene Linie zeigt die Daten der Original-Messung, die unterbrochene Linie die Daten mit einer zusätzlichen Totzeit von 3 ns.



# Kapitel 6

## Zusammenfassung

### 6.1 Zusammenfassung

Ziel dieser Arbeit war die Entwicklung eines Mess-Systems zur energie- und winkelaufgelösten Spektroskopie von koinzidenten Elektronenpaaren, die in Reaktionen an einer Oberfläche emittiert wurden. Das Hauptinteresse galt hierbei dem Zwei-Elektronen-Photoemissionsprozess an Oberflächen.

Das Prinzip des Spektrometers stellt eine Erweiterung der existierenden COLTRIMS-Spektrometer (COld Target Recoil Ion Momentum Spectroscopy) für Gasphasen-Experimente auf den Themenkreis der Oberflächenphysik dar. Anders als bei den in der Photoelektronen-Spektroskopie häufig eingesetzten elektrostatischen Analysatoren, wird hier eine Flugzeittechnik verwendet. Die Elektronen, die in der Reaktion erzeugt wurden, werden hierzu mit einem schwachen homogenen elektrostatischen Feld vom Target abgesaugt und in Richtung eines orts- und zeitauflösenden Detektors beschleunigt. Zusätzlich wird ein homogenes Magnetfeld überlagert, das einen Einschluss der Elektronen bis zu einem maximalen Transversal-Impuls gewährleistet. Durch Messung der Flugzeiten und Auftrefforte auf dem Detektor können - unter Kenntnis der elektrischen und magnetischen Feldstärken - die Startimpulse der Elektronen rekonstruiert werden. Auf diese Weise konnten Elektronen von 0 eV bis zu 50 eV mit einem Raumwinkel von nahezu  $2\pi$  gleichzeitig abgebildet werden. Durch diesen sehr großen Akzeptanzbereich, konnte eine wesentliche Erhöhung der Koinzidenzeffizienz der Anordnung gegenüber anderen Systemen erreicht werden ( $> 10^2 - 10^6$  je nach Mess-System). Wesentlich hierfür ist des weiteren die Fähigkeit des Detektors mehrere Treffer mit verschwindender Totzeit zu verarbeiten.

Mit dem beschriebenen System wurde die Zwei-Elektronen-Photoemission an Oberflächen untersucht. Die Experimente hierzu wurden im wesentlichen am Hamburger

Synchrotron Strahlungslabor (HASYLAB) durchgeführt. Als Target wurde die (111)-Oberfläche eines einkristallinen Kupfer-Targets verwendet. Mehrere Messreihen mit Photonenenergien im Bereich  $\hbar\omega = 40$  eV bis  $\hbar\omega = 100$  eV wurden aufgezeichnet. Durch die vollständige Vermessung des gesamten Impulsraumes der beiden Elektronen, stellt dies die erste kinematisch vollständige Untersuchung (bis auf die Spin-Freiheitsgrade) der Zwei-Elektronen-Photoemission an Oberflächen dar.

Im Anschluss an vorangegangene Experimente [HER98], konnte auch hier in den Zwei-Elektronen-Energieverteilungen (innerhalb der experimentellen Auflösung) als Maximal-Energie des Paares der Wert  $E_1 + E_2 = \hbar\omega - 2W_\phi$  festgestellt werden, der auf eine Selbst-Faltung der Bänder für die Zwei-Elektronen-Photoemission hindeutet. Die Form der Spektren wird wesentlich durch das Transmissionsverhalten der Elektronen beim Durchgang durch die Oberfläche bestimmt. Die auftretende energieabhängige Brechung der Trajektorie führt dabei zu einer starken Unterdrückung niederenergetischer Elektronen.

In der Betrachtung der Kinematik der Emission konnten deutliche Analogien des Effektes zum analogen Prozess der Doppel-Photoionisation an freien Atomen bzw. Molekülen gefunden werden. Die Bewegung des Schwerpunktsimpulses des Paares ist daher durch die Richtung des Polarisationsvektor des Lichtes bestimmt. Im Gegensatz zur Emission am freien System, tritt hier allerdings - je nach Orientierung des Polarisationsvektors - ein Symmetriebruch auf, da Elektronen entweder auf die Oberfläche zu oder von ihr weg emittiert werden. Ein Bruchteil der in den Festkörper emittierten Intensität kann schließlich wieder am Gitter reflektiert werden und die Oberflächenbarriere noch überwinden.

Die Energie- und Winkelverteilungen der Elektronen zeigen, dass, je nach Energieaufteilung des Paares, zwischen den Beiträgen durch einen "shake-off"-Mechanismus und einem "knock-out"-Mechanismus unterschieden werden kann. Auch hierin zeigt sich eine Ähnlichkeit des Zwei-Elektronen-Photoemissionsprozesses an Oberflächen mit der Doppel-Ionisation von Helium-Atomen. Während bei der Doppel-Ionisation von Helium diese Unterscheidung allerdings erst bei höheren Photonenenergien ( $> 100$  eV) möglich ist, kann hier schon bei ca. 60 eV zwischen beiden Prozessen getrennt werden. Der Grund hierfür liegt sehr wahrscheinlich in der Abschirmung der Elektronen im Festkörper begründet, die die direkte Coulomb-Wechselwirkung der Elektronen im Endzustand reduziert. Insbesondere der starke Beitrag des "shake-off"-artigen Prozesses ist ein deutlicher Hinweis darauf, dass die gegenwärtigen theoretischen Modelle zur Beschreibung der Zwei-Elektronen-Photoemission nicht ausreichend sein können, da nur die Wechselwirkung im End-Zustand berücksichtigt wird. Vielmehr ist die Einbe-

ziehung von Grundzustandswellenfunktionen jenseits des Bildes unabhängiger Teilchen nötig.

## 6.2 Ausblick

Die hier vorgestellten Messungen stellen die erste kinematisch vollständige Betrachtung der Zwei-Elektronen-Photoemission dar, können aber sicher nur als erster Schritt in die Richtung der Koinzidenz-Spektroskopie dynamischer Eigenschaften in der Oberflächenphysik gesehen werden. Weitere Experimente sind hier nötig, um ein tiefer gehendes Verständnis der Zwei-Elektronen-Photoemission zu gewinnen. An erster Stelle steht hier eine eingehendere Untersuchung des Einflusses der Polarisationsvektors auf die Dynamik der beiden Photoelektronen. Insbesondere sollte sich durch einen streifenden Einfall des Lichtes eine deutlich höhere Koinzidenzrate erreichen lassen, da so das Verhältnis der Eindringtiefe der Photonen zur mittleren freien Weglänge der Elektronen günstigere Werte annehmen kann. Weiterhin wäre eine Ausdehnung der Messung auf niedrigere Photonenenergien interessant, da so das Schwellenverhalten näher untersucht werden kann. Während bei der Doppelionisation freier Systeme hier die Coulomb-Wechselwirkung im Kontinuum die Dynamik bestimmt, sind hier möglicherweise aufgrund der Abschirmung weitere Effekte zu beobachten. Darüberhinaus könnte bereits die genaue Position der Energieschwelle für Zwei-Elektronen-Photoemission Rückschlüsse auf die interelektronische Korrelation geben.

Die in dieser Arbeit untersuchte Kupfer-Oberfläche ist sicher zunächst eines der einfachsten denkbaren Targets. Mögliche Erweiterungen dieser Experimente beziehen sich daher wesentlich auf die Auswahl der zu untersuchenden Oberflächen. Neben "einfachen" Metallen wie Kupfer, sind daher ebenfalls auch Halbleiter oder Isolatoren als Targets denkbar. Dabei ist hier der geringe Photonenfluss auf die Probe von großem Vorteil, da sich so Aufladungseffekte vermeiden lassen, die sonst in der Photoelektronen-Spektroskopie von nicht-leitenden Oberflächen auftreten können.

Magnetische Schichten stellen gegenwärtig, insbesondere durch ihre Attraktivität als Speichermedium, ein Gebiet intensiver Forschung dar. Auch hier kann durch die Zwei-Elektronen-Photoemission möglicherweise ein völlig neues Fenster auf die zu Grunde liegenden Prozesse geöffnet werden. In diesem Zusammenhang bietet sich die auch Möglichkeit der Untersuchung des zirkularen Dichroismus (CDAD) an Oberflächen. Hier sollten durch die grosse Raumwinkelakzeptanz des neuen Spektrometer-Systems deutliche Fortschritte möglich sein. Hoch korrelierte Materialien wie z.B. NiO sind

dabei von Interesse, da hier möglicherweise nicht mehr eine einfache Selbst-Faltung der Bänder auftritt, um die erlaubten Energie-Niveaus für die Zwei-Elektronen-Photoemission zu erhalten.

Größtes Interesse schließlich kommt Systemen zu, die auch makroskopisch deutliche Korrelationseffekte aufzeigen, wie beispielsweise Supraleitung oder aber den Quantenhall-Effekt. Diese Effekte beruhen gerade auf der korrelierten Bewegung von Elektronenpaaren. Daher ist zu erwarten, dass hier die Koinzidenz-Spektroskopie dynamischer Eigenschaften des Systems einen außerordentlichen Beitrag zum Verständnis dieser Phänomene leisten kann. Mit anderen Messmethoden sind diese Parameter bisher nicht zugänglich. Erste theoretische Ansätze zu diesem Themenkreis existieren bereits, wobei eine deutliche Erhöhung des Zwei-Elektronen-Photoemissionssignals bei Systemen, die Supraleitung aufweisen, vorhergesagt wird [KOU03].

Auf der experimentellen Seite bedeutet dieses Mess-System einen großen Fortschritt für die Koinzidenz-Spektroskopie an Oberflächen, werden doch so erst energie- und winkelaufgelöste Messungen mit hoher Koinzidenzausbeute erst möglich. Dennoch bietet das Spektrometer noch Raum für Verbesserungen, die zur Erhöhung der Koinzidenzrate und Auflösung führen.

Hier ist insbesondere die Konstruktion eines neuen Spektrometers mit weniger Gittern zu nennen. Gegenwärtig befinden sich zwei Gitter zur Abtrennung verschiedener Feldregionen im Spektrometer. Da jedes Gitter nur eine Transmission von ca. 80% besitzt, erreichen koinzidente Elektronenpaare nur mit einer Wahrscheinlichkeit von ca. 40% den Detektor. Durch Modifikationen der Konstruktion kann in neueren Varianten des Spektrometers auf eines oder beide Gitter verzichtet werden, was grob eine Verdoppelung der Koinzidenzrate mit sich bringen würde.

Zur Verbesserung der Auflösung und sind verschiedene Ansätze nötig. Diese beziehen sich einerseits auf die Präzision der Ausleseelektronik, die bestimmend für die Zeit- und damit auch der Ortsauflösung des Detektors sind. Hier finden zur Zeit intensive Entwicklungen statt, die einen völlig neuen Ansatz in der Datenaufnahme darstellen. Anstatt der bisher üblichen Kette von Verstärker-Pulsformung-Messung für die Detektorsignale, wird, durch Einsatz eines Transientenrekorders, nach dem Verstärker der gesamte Pulszug digitalisiert und auf der Software-Seite mit speziellen Algorithmen analysiert. Dies erlaubt zum einen eine wesentlich bessere Bestimmung der Anstiegsflanken und damit der Zeitauflösung, als auch der Trennung von Signalen und damit der Totzeit des Systems. Ein Datenaufnahme-System dieser Art wurde bereits erfolgreich in Verbindung mit einem TOF-PEEM ("time-of-flight photoelectron



emission microscope") getestet.

Ein weiteres Potential für eine Verbesserung dieser Parameter bietet die Verwendung eines Detektors mit größerer Nachweisfläche sowie längerer Extraktionsstrecke. Allerdings muss hier darauf geachtet werden, dass weiterhin die Homogenität der elektrischen und magnetischen Felder über das gesamte Spektrometervolumen gewährleistet werden kann.

Trotz der gegenwärtigen Beschränkungen stellt dieses Spektrometer-System ein Novum in der Oberflächenphysik dar. Wesentliche neue Einsichten in die elektronischen Korrelationseffekte im Festkörper werden hierdurch erst möglich, wie in den experimentellen Ergebnissen dieser Arbeit bereits angedeutet wird. Experimente dieser Art bergen somit ein enormes Zukunftspotential für das grundlegende Verständnis elementarer Prozesse in der Festkörperphysik.



# Literaturverzeichnis

- [ABR64] R. Abrines, I. C. Percival, Proc. Phys. Soc. **88** (1966) 861
- [BAR96] R. A. Bartynski, E. Jensen, S. L. Hubert, C. C. Kao, Prog. Surf. Sci. **53** (1996) 155
- [BER64] C. N. Berglund, W. E. Spicer, Phys. Rev. **136** (1964) 1030
- [BER98] J. Berakdar, Phys. Rev. B **58** (1998) 9808
- [BET90] K. Bethge, G. Gruber, *Physik der Atome und Moleküle*, VCH Verlagsgesellschaft mbH, 1990
- [BIE87] H. W. Biester, M. J. Besnard, G. Dujardin, L. Hellner, E. E. Koch, Phys. Rev. Lett. **59** (1987) 1277
- [BLO28] F. Bloch, *Über die Quantenmechanik der Elektronen in Kristallgittern*, Dissertation, Universität Leipzig, 1929
- [BOR27] M. Born, J. Oppenheimer, Ann. Phys. **84** (1927) 457
- [BRU82] R. Bruhn, E. Schmidt H. Schröder, B. Sonntag, J. Phys. B **15** (1982) L441
- [BW3WE] [www-hasyllab.desy.de](http://www-hasyllab.desy.de)
- [BYR67] F. W. Byron, C. J. Joachain. Phys. Rev. **164** (1967) 1
- [CAR78] C. Caroli, B. Roulet, D. Saint-James *Theory of Photoemission in Handbook of Surfaces and Interfaces*, Vol. I, L. Dobrzynski (Editor), Garland, New York, 1978
- [COH96] J. S. Cohen, Phys. Rev. A **54** (1996) 573
- [COU84] R. Courths, S. Hüfner, Phys. Rep. **112** (1984) 53

- [DÖA98] R. Dörner, H. Bräuning, J. M. Feagin, V. Mergel, O. Jagutzki, L. Spielberger, T. Vogt, H. Khemliche, M. H. Prior, J. Ullrich, C. L. Cocke, H. Schmidt-Böcking, *Phys. Rev. A* **57** (1998) 1074
- [DÖR98] R. Dörner, H. Bräuning, O. Jagutzki, V. Mergel, M. Achler, R. Moshhammer, J. M. Feagin, T. Osipov, A. Bräuning-Demian, L. Spielberger, J. H. McGuire, M. H. Prior, N. Berrah, J. D. Bozek, C. L. Cocke, H. Schmidt-Böcking, *Phys. Rev. Lett.* **81** (1998) 5776
- [DÖR00] R. Dörner, V. Mergel, O. Jagutzki, L. Spielberger, J. Ullrich, R. Moshhammer, H. Schmidt-Böcking, *Physics Reports* **330** (2000) 96
- [ECK84] H. Eckardt, L. Fritsche, J. Noffke, *J. Phys. F* **14** (1984) 97
- [EIN05] A. Einstein, *Annalen der Physik* **17** (1905)
- [FED98] R. Feder, H. Gollisch, D. Meinert, T. Scheunemann, O. M. Artamonov, S. N. Samarin, J. Kirschner, *Phys. Rev. B* **58** (1998) 16418
- [FER50] E. Fermi, *Nuclear Physics*, University of Chicago, Chicago, 1950
- [FOC30] V. Fock, *Z. Phys.* **61** (1930) 126
- [FOM02] N. Fominykh, J. Henk, J. Berakdar, P. Bruno *Surf. Sci.* **507-510** (2002) 229-233
- [FOM03] *One-photon two electron transitions at surfaces*, N. Fominykh, J. Berakdar, S. Samarin, A. Morozov, F. U. Hillebrecht, P. Bruno, J. Kirschner in *Solid-State Photoemission and Related Methods: Theory and Experiment*, Wolfgang Schattke (Editor), Michel A. Van Hove (Editor), Wiley, 2003
- [FOP02] N. Fominykh, J. Berakdar, J. Henk, P. Bruno *Phys. Rev. Lett.* **89** (2002) 086402
- [GHI90] J. Ghijsen, L.H. Tjeng, H. Eskes, G. A. Sawatzky, R. L. Johnson, *Phys. Rev. B* **42** (1990) 2268
- [GRE3] W. Greiner, *Klassische Elektrodynamik 1*, Verlag Harri Deutsch, 1991
- [GRE4] W. Greiner, *Quantenmechanik Teil 1*, Verlag Harri Deutsch, 1992
- [GUO98] X. Guo, Z. Fang, A. S. Kheifets, S. A. Canney, M. Vos, I. E. McCarthy, E. Weigold, *Phys. Rev. B* **57** (1998) 6333

- [HAA78] H. W. Haak, G. A. Sawatzky, T. D. Thomas, Phys. Rev. Lett. **41** (1978) 1825
- [HAR28] D. R. Hartree, Proc. Cambridge Phil. Soc. **24** (1928) 89
- [HER98] R. Herrmann, S. Samarin, H. Schwabe, J. Kirschner, Phys. Rev. Lett. **81** (1998) 2148
- [HOH64] P. Hohenberg, W. Kohn, Phys. Rev. *136* (1964) B864
- [HÜF95] S. Hüfner, *Photoelectron Spectroscopy*, Springer Verlag, Berlin, 1995
- [JAH02] T. Jahnke, Th. Weber, A. L. Landers, A. Knapp, S. Schössler, J. Nickles, S. Kammer, O. Jagutzki, L. Schmidt, A. Czasch, T. Osipov, E. Arenholz, A. T. Young, R. Díez Muiño, D. Rolles, F. J. García de Abajo, C. S. Fadley, M. A. Van Hove, S. K. Semenov, N. A. Cherepkov, J. Rösch, M. H. Prior, H. Schmidt-Böcking, C. L. Cocke, R. Dörner, Phys. Rev. Lett. **88** (2002) 073002
- [JAL02] T. Jalowy, Dissertation, Institut für Kernphysik der Johann Wolfgang Goethe-Universität Frankfurt am Main, 2002
- [JAN02] T. Jalowy, R. Neugebauer, M. Hattass, J. Fiol, F. Afaneh, J. A. M. Pereira, V. Collado, E. F. da Silveira, H. Schmidt-Böcking, K. O. Groeneveld, Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. B **193** (2002) 762
- [JEN89] E. Jensen, R. A. Bartynski, S. L. Hulbert, E. D. Johnson, R. Garrett, Phys. Rev. Lett. **62** (1989) 71
- [KHE02] A. Kheifets, J. Phys. B **34** (2001) L247
- [KIT99] C. Kittel, *Einführung in die Festkörperphysik*, Oldenbourg Verlag, München 1999
- [KNA02] A. Knapp, A. Kheifets, I. Bray, Th. Weber, A. L. Landers, S. Schössler, T. Jahnke, J. Nickles, S. Kammer, O. Jagutzki, L. Ph. H. Schmidt, T. Osipov, J. Rösch, M. H. Prior, H. Schmidt-Böcking, C. L. Cocke, R. Dörner, Phys. Rev. Lett. **89** (2002) 033004
- [KNB02] A. Knapp, M. Walter, Th. Weber, A. L. Landers, S. Schössler, T. Jahnke, M. Schöffler, J. Nickles, S. Kammer, O. Jagutzki, L. Ph. H. Schmidt, T. Osipov, J. Rösch, M. H. Prior, H. Schmidt-Böcking, C. L. Cocke, J. Feagin, R. Dörner, J. Phys. B **35** (2002) L521

- [KÖD03] D. Ködderitzsch, Dissertation, Universität Halle, 2003
- [KOH54] W. Kohn, N. Rostoker, Phys. Rev. *94* (1954) 1111
- [KOH65] W. Kohn, L. J. Sham, Phys. Rev. *140* (1965) A1133
- [KOU03] K. A. Kouzakov, J. Berakdar, Phys. Rev. Lett. **91** (2003) 257007
- [KOR54] J. Korryng, Physica *13* (1947) 392
- [LBLW] [http://cindy.lbl.gov/optical constants/filter2.html](http://cindy.lbl.gov/optical_constants/filter2.html)
- [MAH70] G. D. Mahan, Phys. Rev. B **2** (1970) 4334
- [MAL97] L. Malegat, P. Selles, A. Huetz, J. Phys. B **30** (1997) 251
- [MER96] V. Mergel, Dissertation, Shaker Verlag, 1996
- [MOR96] V. A. Morosov, A. Kalinin, Z. Szilagyi, M. Barart, P. Roncin, Rev. Sci. Instrum. **67** (1996) 2163
- [MOS96] R. Moshhammer, J. Ullrich, M. Unverzagt, W. Schmitt, H. Schmidt-Böcking, Nucl. Instr. Meth. **B 108** (1996) 425
- [MOS97] R. Moshhammer, W. Schmitt, J. Ullrich, H. Kollmus, A. Cassimi, R. Dörner, O. Jagutzki, R. Mann, R. E. Olson, H. T. Prinz, H. Schmidt-Böcking, L. Spielberger, Phys. Rev. Lett. **79** (1997) 3621
- [MOS99] R. Moshhammer, P. D. Fainstein, M. Schulz, W. Schmitt, H. Kollmus, R. Mann, S. Hagmann, J. Ullrich Phys. Rev. Lett. **83** (1999) 4721
- [PEN76] J. B. Pendry, Surf. Sci. **57** (1976) 679
- [PRO93] D. Proulx, R. Shakeshaft, Phys. Rev. A **48** (1993) R875
- [SCH00] L. Ph. Schmidt, Dissertation, Institut für Kernphysik der Johann Wolfgang Goethe-Universität Frankfurt am Main, 2000
- [SCI01] M. Schicketanz, A. Oelsner, J. Morais, V. Mergel, H. Schmidt-Böcking, G. Schönhense, Nucl. Instr. and Meth. A, **467-468** (2001) 1519
- [SCÖ02] M. Schöffler, Diplomarbeit, Institut für Kernphysik, Frankfurt, 2002

- [SCW93] O. Schwarzkopf, B. Krässig, J. Elmiger, V. Schmidt, Phys. Rev. Lett. **70** (1993) 3008
- [SCT89] D. R. Schultz, R. E. Olson, Phys. Rev. A **38** (1988) 1833
- [SCZ00] M. Schulz, R. Moshhammer, W. Schmitt, H. Kollmus, R. Mann, S. Hagmann, R. E. Olson, J. Ullrich, Phys. Rev. A **61**, (2000) 022703
- [SER86] P. A. Serena, J. M. Soler, N. García, Phys. Rev. A **34** (1986) 8701
- [SLA30] J. C. Slater, Phys. Rev. **35** (1930) 210
- [THI79] P. Thiry, D. Chandesris, J. Lecante, C. Guillot, R. Pinchaux, Y. Pétrouff, J. Neale, Phys. Rev. Lett. **43** (1979) 82
- [THU91] S. M. Thurgate, J. Neale, Surface Science Letters **256** (1991) L605
- [TOM56] D. H. Tomboulion, P. L. Hartmann, Phys. Rev. **102** (1956) 1423
- [ULL03] J. Ullrich, R. Moshhammer, A. Dorn, R. Dörner, L. Ph. Schmidt, H. Schmidt-Böcking, Rep. Prog. Phys. **66** (2003) 1463
- [WAN53] G. H. Wannier, Phys. Rev. **90** (1953) 817
- [WEB00] Th. Weber, H. Giessen, M. Weckenbrock, G. Urbasch, A. Staudte, L. Spielberger, O. Jagutzki, V. Mergel, M. Vollmer, Nature **405** (2000) 658
- [WEB01] Th. Weber, Kh. Khayyat, R. Dörner, V. D. Rodríguez, V. Mergel, O. Jagutzki, L. Schmidt, K. A. Müller, F. Afaneh, A. Gonzalez, H. Schmidt-Böcking, Phys. Rev. Lett. **86**(2001) 224
- [WEC01] M. Weckenbrock, M. Hattass, A. Czasch, O. Jagutzki, L. Schmidt, T. Weber, H. Roskos, T. Löffler, M. Thomson and R. Dörner J. Phys. B **34** (2001) L449
- [WEJ01] Th. Weber, O. Jagutzki, M. Hattass, A. Staudte, A. Nauert, L. Schmidt, M. H. Prior, A. L. Landers, A. Bräuning-Demian, H. Bräuning, C. L. Cocke, T. Osipov, I. Ali, R. Díez. Muiño, D. Rolles, F. J. García de Abajo, C. S. Fadley, M. A. Van Hove, A. Cassimi, H. Schmidt-Böcking, R Dörner, J. Phys. B **34**(2001) 3669
- [WEB03] Th. Weber, Dissertation, Institut für Kernphysik der Johann Wolfgang Goethe-Universität Frankfurt am Main, 2003

[WINK] C. Winkler, J. Kirschner private Kommunikation



# Abbildungsverzeichnis

2.1	Schematische Darstellung des Photoemissionsprozesses im vollständigen bzw. reduzierten Zonenschema (entnommen aus [HÜF95]). . . . .	11
2.2	Schematische Darstellung der Photoemission von einer Festkörper-Oberfläche : 1. optische Anregung des Elektrons durch das Photon, 2. Transport zur Oberfläche, 3. Brechung der Trajektorie an der Oberflächen-Barriere. . . . .	12
2.3	Die für die Photoemission von einer Oberfläche relevanten Energien. $E_0$ bezeichnet das untere Ende des Valenzbandes (auch "muffin-tin-zero" genannt), $E_F$ ist das Fermi-Niveau (höchster besetzter Zustand), $E_V$ beschreibt die Lage des Vakuum-Levels, während der energetische Endzustand des Elektrons mit $E_f$ bezeichnet wird. Die Differenz $E_V - E_F$ wird Austrittsarbeit ( $\Phi$ ) genannt, die Differenz $E_f - E_V$ ist die kinetische Energie des Elektrons. Die Bindungsenergie des Zustandes, aus dem emittiert wurde, ergibt sich aus $E_b = \hbar\omega - E_{kin} - \Phi$ . . . . .	13
2.4	Geometrische Konstruktion des Fluchtkegels ( <i>escape cone</i> ) für das einfache Modell der Oberfläche. Von der verfügbaren Impuls-Kugel mit Radius $ \vec{K} $ wird der Anteil $\sqrt{2m/\hbar^2}(E_V - E_0)$ abgeschnitten. Der verbliebene Winkelbereich definiert den Öffnungswinkel des Fluchtkegels. . . .	14
2.5	Energieaufteilung des Elektronenpaares. Links : der Polarisationsvektor liegt in der Oberflächenebene, die Elektronen werden unter einem Winkel von jeweils $40^\circ$ detektiert. Durch die Abhängigkeit von 2.43 werden keine Elektronenpaare mit gleichen Energien, d.h. $E_a - E_b = 0$ emittiert. Rechts : die Polarisation steht nahezu senkrecht auf der Oberfläche. In diesem Fall zeigt $\vec{k}_a + \vec{k}_b$ in Richtung von $\hat{e}$ , so dass die Emission mit gleichen Energien möglich ist, während asymmetrische Energieaufteilungen unterdrückt werden (entnommen aus [BER98]). . . . .	21

2.6	Winkelverteilung (orthographische Projektion) eines Photoelektrons bei 15 eV ( $\hbar\omega = 45$ eV). Die Emissionsrichtung des zweiten Elektrons (ebenefalls 15 eV) ist durch (●) angezeigt. Je nach Stärke der Kopplung (Abschirmlänge $\lambda$ ) verändert sich die Größe des "verbotenen" Bereichs (aus [FOM03]). . . . .	22
2.7	Feynman-Diagramme niedrigster Ordnung zur Doppel-Photoemission. a) die Wechselwirkung der Elektronen findet im Grundzustand statt vor Einkopplung des Photons ("ground state correlation", shake-off), b) Absorption des Photons durch eines der Elektronen im Grundzustand und anschließender Wechselwirkung im Endzustand ("final state interaction", FSI), c) Inkohärenter Beitrag: ein Elektron absorbiert das Photon und streut nach einer Wegstrecke mit dem zweiten, die Phaseninformation geht hierbei verloren [FOM03]. . . . .	24
3.1	Eine Koinzidenz erfordert den gleichzeitigen Nachweis der emittierten Elektronen innerhalb der Raumwinkel $\Delta\Omega$ der Detektoren. . . . .	28
3.2	Gesamtansicht der experimentellen Aufbaus. . . . .	32
3.3	Schematische Darstellung des Flugzeit-Spektrometers mit Detektor. . .	36
3.4	Erzeugung und Vermeidung von Streu-Elektronen. Aufgrund der endlichen Transmission des Gitters treffen primäre Elektronen auf das Gitter und lösen niederenergetische Sekundärelektronen aus. Um zu verhindern, dass diese den Detektor erreichen, wird ein zweites Gitter eingebaut, das ein entgegengesetztes Feld erzeugt. . . . .	37
3.5	Auftreten der Streu-Elektronen im Flugzeitspektrum. a) ohne zusätzliches Feld liegen die Streu-Elektronen unter den "echten" Elektronen. b) Einfügen eines zweiten Gitters mit einer leichten Verzögerungsspannung (ca. 10 V) verlängert die Driftzeit der unerwünschten Streu-Elektronen, so dass diese keinen Flugzeit-Überlapp mehr mit den zu messenden Elektronen besitzen. Entweder durch eine Hardware-Koinzidenz oder einen entsprechende Auswahl der Ereignisse auf der Software-Seite können diese Ereignisse heraus gefiltert werden. . . . .	38
3.6	Simulation der Elektronen-Trajektorie im Spektrometer mit der Software SIMION 7.0. . . . .	39

3.7	Energie- und Winkelauflösung des Spektrometers in Abhängigkeit von Energie und Emissionswinkel (Polarwinkel) für ein Extraktionsfeld von 7.81 V/cm (Ortsauflösung 0.4 mm, Zeitauflösung 0.5 ns). Die jeweilige Auflösung ist als Grauwert kodiert. . . . .	41
3.8	Energie- und Winkelauflösung des Spektrometers in Abhängigkeit von Energie und Emissionswinkel (Polarwinkel) für ein Extraktionsfeld von 1.95 V/cm (Ortsauflösung 0.4 mm, Zeitauflösung 0.5 ns). Die jeweilige Auflösung ist als Grauwert kodiert. . . . .	42
3.9	Simulation der Auflösung des Spektrometers. Links: simulierte Energieverteilung für diskrete Werte der Energie, rechts: Energie gegen Emissionswinkel. . . . .	43
3.10	Schematisches Prinzip der Ortsbestimmung über eine Verzögerungsleitung. a) Detektion einzelner Elektronen, b) Nachweis eines Mehrelektronen-Ereignisses. . . . .	46
3.11	Fotographie der Einheit zur Auskopplung und Differenzverstärkung der Signale. Die Einheit wird direkt an Hochspannungsdurchführung aus der Kammer montiert, um kurze Signalwege zu gewährleisten. . . . .	47
3.12	Montage der Probe auf dem Halter. Zu erkennen ist der Montageblock mit Titan-Gabel zur Halterung des Kupfer-Kristalls. Das Heizfilament ist unterhalb der Probe befestigt, während das Thermoelement (frei hängender Draht oben rechts) noch nicht mit der Probe verbunden ist. . .	48
3.13	Positionierung der Probe im Spektrometer. Links : Seitenansicht (Schnitt), rechts Ansicht von vorne. Durch das sehr dünn gefräste Einsatzteil, kann die Probe so positioniert werden, dass deren Oberfläche mit der Vorderseite der Spektrometer-Abschlussplatte zusammenfällt. .	49
3.14	Effekt der Probenreinigung auf die Impulsverteilung der Elektronen. Gezeigt sind die Impulskomponenten in der Oberflächenebene (XY-Ebene) im Bereich von 0-10 eV Bindungsenergie ( $\hbar\omega = 40$ eV). Links : Spektrum vor Reinigung der Probe, rechts : nach zwei Sputter/Heiz-Zyklen. Insgesamt wurden beim ersten Einbau 6 Zyklen durchgeführt. . . . .	50
3.15	Skizze der Verschaltung der verwendeten Elektronik . . . . .	53
3.16	Die Abstrahlcharakteristik einer bewegten Ladung für die Fälle a) $v \ll c$ und b) $v \approx c$ (aus [BET90]) . . . . .	56
3.17	Intensität der Synchrotron-Strahlung über einen weiten Wellenlängen-Bereich (aus [BET90]) . . . . .	56

- 3.18 Die Strahlintensität im Speicherring wird durch die Hochfrequenz in einzelne Pakete aufgeteilt. Sollte eines der Pakete sich nicht in der richtigen Phasenlage befinden, so wird dieses durch das Wechselfeld wieder in die Sollposition abgebremst oder beschleunigt. . . . . 57
- 3.19 Strahlungserzeugung mit einem Undulator. . . . . 59
- 3.20 Blick in den Speicherring DORIS III bei HASYLAB. Zu erkennen sind die Magnete zur Umlenkung des Strahles (blau) entlang des Speicherrings, sowie ein Strahlrohr, das tangential aus dem Speicherring führt und der Auskopplung der Synchrotron-Strahlung dient (entnommen von [BW3WE]) . . . . . 60
- 3.21 Schematischer Aufbau der Beamline BW3 bei HASYLAB (aus [BW3WE]) 61
- 3.22 Spektrum der kinetischen Energie der Elektronen. Durch die Mischung verschiedener Photonenenergien treten neben der gewählten Energie (hier  $\hbar\omega = 35$  eV) höherenergetische Elektronen auf, die durch Photonen der nächsten Harmonischen des Monochromators erzeugt wurden. 63
- 3.23 Transmission durch eine Aluminium-Folie der Dicke  $2000 \text{ \AA}$ . Jenseits der Absorptionskante bei ca. 72 eV fällt die Intensität deutlich ab. Auf diese Weise können höher harmonische Reflexionen (z.B. Primärenergie 40 eV, HH bei 80 eV) effektiv unterdrückt werden. . . . . 64
- 3.24 Verschaltung des Datenaufnahme-Signals (common-stop). Durch das bunch marker Signal wird ein Zeitfenster geöffnet und auf ein AND gegeben. Bei gleichzeitigem Eintreffen eines Signals vom MCP, wird über ein Delay von 400 ns die Auslese des TDC gestartet. . . . . 65
- 4.1 Eichung der Detektor Parameter : a) Spektrum der Laufzeitsummen auf einer der Anoden-Lagen. Die Laufzeitsumme, die zu einem gültigen Ein-Elektronen-Ereignis gehört, liegt bei -70.5 ns. In der logarithmischen Darstellung sind die Ereignisse, die aus der Detektion mehrerer Elektronen stammen als Schulter zur positiven Achse hin sichtbar. Die weiteren Strukturen stammen aus Reflektionen der Signale an verschiedenen Stellen auf dem Signalweg sowie entstehen durch das Fehlen eines der Signale. b) Der zeitliche Offset (-52.9 ns) der Mitte der dritten Lage gegen die ersten beiden. Dieser entsteht durch unterschiedliche Kabellängen an den jeweiligen Signalabgriffen sowie die Konstruktion der Anode. . . . . 69

4.2 Zur Bestimmung der Skalenfaktoren werden die Positionen der einzelnen Ereignisse mit jeweils zwei unabhängigen Methoden berechnet. Dabei werden iterativ verschiedene Skalenfaktoren für die einzelnen Drahtwicklungen verwendet. Aufgetragen auf der z-Achse ist nun die Ortsdifferenz für die beiden Berechnungsmethoden (relative Einheiten). Die beste Übereinstimmung liegt im Bereich des Minimums. . . . . 70

4.3 Zeitliche Signalreihenfolge bei einem Mehr-Elektronen-Ereignis. Signale, die vom ersten eintreffenden Elektron stammen, sind schwarz markiert, die des zweiten Elektrons grau. In diesem Fall trifft das erste Elektron einen Randbereich des Detektors (grosse Differenz  $x_1 - x_2$ ), während das zweite in der Nähe des Zentrums detektiert wird. Durch die unterschiedlichen Orte vertauscht sich die Reihenfolge der Signale am Ende der Leitung. . . . . 72

4.4 Verlust von Signalen aufgrund der Totzeit. . . . . 73

4.5 Flugzeit der Elektronen aufgetragen gegen den Auftreffort in X-Richtung. Durch die Zyklotronbewegung im Magnetfeld werden alle Trajektorien zu ganzzahligen Vielfachen der Periodendauer auf einen Punkt fokussiert. . . . . 75

4.6 Eichung des elektrischen Feldes im Spektrometer. a) Flugzeitverteilung gegen Photonenenergie, der untere Rand ist durch die Elektronenemission nahe der Fermienergie (kurze Flugzeiten) und der obere (lange Flugzeiten) durch die Flugzeit von 0 eV Elektronen gegeben. b) Position der Fermi-Kante gegen Photonenenergie mit Fitfunktion zur Eichung des Feldes. . . . . 77

5.1 Geometrie der Mess-Anordnung. Der Lichtfallswinkel liegt unter  $45^\circ$  zur Z-Achse in der YZ-Ebene. . . . . 80

5.2 Energieverteilung aus Einfach-Photoemission bei  $\hbar\omega = 40$  eV, integriert über alle Emissionswinkel : Emission aus dem Valenzband bei ca. 34 eV, Maximum der Sekundärelektronenemission bei ca. 4 eV. . . . . 81

5.3 Links : aus den Daten erzeugtes Spektrum der Bandstruktur von Cu entlang der [111]-Richtung ( $\Gamma L$ -Zweig der Bandstruktur). Rechts : Bandstruktur von Kupfer mit s-p Charakter nach einer LMTO-Rechnung von Guo *et al.* [GUO98] . . . . . 82

5.4	Darstellung der Fermioberfläche : Winkelverteilung der Elektronen mit Bindungsenergien im Bereich der Fermi-Energie (orthographische Projektion der Elektronenimpulse auf die Oberfläche) . . . . .	83
5.5	a) Winkelintegriertes Zwei-Elektronen-Energie-Spektrum bei $\hbar\omega = 40$ eV, die Energieschwelle bei 30 eV Summenenergie ist durch die Linie (-) angedeutet. b) Summenenergie-Spektrum ( $E_1 + E_2$ ) . . . . .	84
5.6	Energieaufteilung des Elektronenpaares $(E_1 - E_2)/(E_1 + E_2)$ für Ereignisse im Bereich der Schwelle ( $E_1 + E_2 = E_{phot} - 2W_\phi \pm 2$ eV) bei verschiedenen Photonenenergien. . . . .	85
5.7	Veränderung der Zwei-Elektronen-Energieverteilung mit der Photonenenergie. Man beachte die unterschiedliche Achsenskalierung. . . . .	88
5.8	a) Berechnete Transmission eines Elektronenpaares durch die Oberflächenbarriere, b) Berechnete Verteilung bei $\hbar\omega = 40$ eV . . . . .	89
5.9	Korrektur der Daten (Abb. 5.7) für die Oberflächen-Transmissionswahrscheinlichkeit des Elektronenpaares (Gleichung (5.6)) bei $\hbar\omega = 40$ eV. a) korrigierte Zwei-Elektronen-Energieverteilung b) korrigierte Energieaufteilung. . . . .	90
5.10	Verhältnis der Anzahl der koinzidenten Elektronenpaare zur Anzahl der Elektronen aus Einfach-Photoemission in Abhängigkeit der Photonenenergie in eV. Die durchgezogene Linie stellt den Beitrag durch die Zunahme des verfügbaren Raumwinkels dar. Die Normierung wurde so gewählt, so dass die Kurven bei 40 eV zusammenfallen. . . . .	91
5.11	Zwei-Elektronen-Energieverteilung bei $\hbar\omega = 150$ eV. Die Intensität im markierten Bereich stammt aus Auger-Photoelektron-Koinzidenzen. . .	93
5.12	Zwei-Elektronen-Energieverteilung bei $\hbar\omega = 40$ eV. Die markierten Bereiche enthalten Ereignisse, die durch unkorrelierte Elektronenpaare (Faltung von zwei Ereignissen aus Einfach-Photoemission) erzeugt wurden.	94
5.13	Abhängigkeit der Schwerpunktsbewegung von der Photonenenergie. Links : Verteilung in der Oberflächenebene, der Kreis zeigt den maximal möglichen Impuls bei der jeweiligen Gesamtenergie, rechts : Projektion auf $k_y$ für $k_x \in [-0.2, 0.2]$ a.u. . Die Projektion des Polarisationsvektors auf die Oberfläche liegt entlang der Y-Achse. . . . .	96

5.14	Impulsverteilungen in der Doppel-Photoionisation von Helium bei (von links nach rechts) 1 eV, 20 eV, 100eV über der Doppelionisationsschwelle. Obere Reihe $\vec{k}_+$ , Mitte $\vec{k}_1$ (Impuls eines der Elektronen), unten $\vec{k}_-$ . Der Polarisationsvektor des Lichtes liegt in der XY-Ebene entlang des X-Achse (aus [KNB02] ) . . . . .	99
5.15	Schwerpunktsbewegung in Doppel-Ionisation von Helium bei 23.5 eV über der Doppelionisationsschwelle. Das Koordinatensystem wurde entsprechend der Orientierung des hier vorgestellten Experimentes gedreht.	100
5.16	Schwerpunktsimpuls im inelastischer Bereich ( $\hbar\omega = 60$ eV und $E_1 + E_2 = 15$ eV). Das Koordinatensystem entspricht dem von Abb. 5.13 . . . . .	101
5.17	Relativimpulse der Elektronen in der Ebene parallel zur Oberfläche ( $\hbar\omega = 40$ eV, $E_1 + E_2 = 30$ eV). Die Projektion des Polarisationsvektors liegt entlang der Y-Achse. . . . .	102
5.18	Relativimpulse der Elektronen in der Ebene parallel zur Oberfläche für verschiedene Photonenenergien (jeweils $E_1 + E_2 = \hbar\omega - 2W_\phi \pm 2$ eV). Links in Impulsdarstellung, rechts : Polardarstellung. Die Projektion des Polarisationsvektors liegt entlang der Y-Achse. . . . .	103
5.19	Parametrisierung der Relativimpuls-Winkelverteilung mit Gleichung 5.15. Links : Fit an die Winkelverteilung bei $\hbar\omega = 60$ eV und $E_1 + E_2 = 50 \pm 2$ eV, rechts : Abhängigkeit des $\beta_-$ -Parameters von der Photonenenergie. . . . .	104
5.20	Verteilung des Azimuthwinkels um die Oberflächennormale eines koinzidenten Elektrons bei $\hbar\omega = 60$ eV und $E_1 + E_2 = 50 \pm 2$ eV in Abhängigkeit des Anteils an der Gesamtenergie des Paares. Die Projektion des Polarisationsvektors auf die Oberfläche liegt in $270 - 90^\circ$ Richtung. . .	105
5.21	Winkelverteilung von Elektronen aus der Doppel-Photoionisation von Helium bei 450 eV über der Doppelionisationsschwelle (aus [KNA02]).	106
5.22	Winkelverteilung eines koinzidenten Elektrons bei $\hbar\omega = 60$ eV und $E_1 + E_2 = 50 \pm 2$ eV. Die Emissionsrichtung des ersten Elektrons ist durch den Pfeil angezeigt, wobei zusätzlich der Anteil (des festen Elektrons) an der Gesamtenergie festgehalten ist. . . . .	107
5.23	Simulation der Zwei-Elektronen-Energieverteilung für $\hbar\omega = 40$ eV (links) und $\hbar\omega = 60$ eV (rechts) (vergl. die Messdaten aus Abb. 5.7) . .	114

- 5.24 Vergleich der Winkelverteilungen aus Messung (linke Spalte) und CTMC-Simulation (rechte Spalte). Emissionswinkel und Anteil an der Gesamtenergie des Paares ist für eines der Elektronen festgehalten.  $\hbar\omega = 60$  eV und  $E_1 + E_2 = 50 \pm 2$  eV. Die Intensitäten sind auf das jeweilige Maximum der Verteilung normiert. . . . . 115
- 5.25 Darstellung des Korrelationsloches in Impulskoordinaten,  $\hbar\omega = 42.4$  eV  $E_1 = E_2 = 16$  eV, berechnet für eine Cu(001)-Oberfläche (aus [FOP02]) 118
- 5.26 Elektronenimpulse in der Oberflächenebene (Cu(111)), die Richtung des festgehaltenen Elektrons ist durch (●) angezeigt.  $\hbar\omega = 40$  eV,  $E_1 = E_2 = 10..15$  eV. . . . . 118
- 5.27 Relativimpulse in der Oberflächenebene bei  $\hbar\omega = 40$  eV,  $E_1 = E_2 = 10..15$  eV. . . . . 119
- 5.28 Relativimpuls der Elektronen in der Oberflächenebene. Die durchgezogene Linie zeigt die Daten der Original-Messung, die unterbrochene Linie die Daten mit einer zusätzlichen Totzeit von 3 ns. . . . . 119



# Danksagung

Das Gelingen dieser Arbeit wäre sicher nicht möglich gewesen ohne die Hilfe und Unterstützung vieler Menschen, die meinen Weg durch die Promotion begleitet haben. All diesen möchte ich an dieser Stelle danken.

*Prof. Horst Schmidt-Böcking* für die Aufnahme in seine Arbeitsgruppe und die Motivation für diese Arbeit. Darüber hinaus für seine ständige und nachhaltige Unterstützung seitdem ich in seiner Arbeitsgruppe sein durfte, für die ansteckende Begeisterung für die Physik, für die Ideen und den unerschütterlichen Blick aufs Ganze und für die Möglichkeit auf vier verschiedenen Kontinenten an Experimenten mitarbeiten zu können.

*Prof. Reinhard Dörner* für die ständige Bereitschaft mit Rat und Tat zur Seite zu stehen, für die immer offene Tür und die Fähigkeit mit großer Geduld und Klarheit auch jede Frage zu beantworten.

*Dr. Thorsten "Totti" Weber* für seine unglaubliche Hilfsbereitschaft und Erfahrung ohne die wohl so manches Experiment am IKF und anderswo auf der Welt nie funktioniert hätte.

*Dr. Thorsten Jalowy* für viele Ideen, die freundschaftliche Atmosphäre und gute Gespräche jenseits der Physik.

*Achim Czasch*, der mich bereits seit dem ersten Semester begleitet, für alles vom ersten Mathe-Zettel bis zur resort-Routine.

*Till Jahnke* und *Sven Schöfler*, für die rückhaltlose Hilfe bei allen Strahlzeiten auch wenn das Spektrometer in Trümmern liegt, für die Freundschaft und viele Cocktails.

*Matthias Weckenbrock*, meinem Mitstreiter in den verschiedensten Katastrophensituationen, von sachsenanhaltinischen Landstraßen bis zu Überschwemmungen im Laser-Labor.

*Dr. Ottmar Jagutzki* und der Firma *Roentdek* für handfeste Freundlichkeit und viele MCPs und Verstärker, deren Belastbarkeitsgrenze ich austesten durfte.

*Dr. Lothar Schmidt*, dem wandelnden Physik-Buch und Allround-Talent für viele kluge Antworten.

*Klaus Ullmann-Pfleger*, der sich immer wieder Zeit genommen hat, mit mir die Untiefen der C/C++ Programmierung zu umschiffen.

*Prof. Jürgen Kirschner* und *Dr. Carsten Winkler* vom Max-Planck-Institut für Mikrostruktur-Physik in Halle/Saale, einerseits für die Ermöglichung der ersten Strahlzeit bei BESSY II und Bereitstellung der Kristalle und Ausrüstung, sowie für die freundschaftliche und tatkräftige Mithilfe bei den Strahlzeiten.

*Dr. Jamal Berakdar*, *Dr. Natasha Fominykh* und *Dr. Konstantin Kouzakov*, ebenfalls

vom Max-Planck-Institut für Mikrostruktur-Physik in Halle/Saale, für die Diskussionen meiner Daten und einiger Rechnungen sowie die Geduld, die Fragen eines Experimentalphysikers zu beantworten.

*Dr. Andreas Oelsner* und *Dr. Gerhard Fecher* von der Universität Mainz für einige Diskussionen und Rechnungen zur Photoemission.

Dem *Bundesministerium für Bildung und Forschung* sowie dem *Graduiertenförderungsprogramm der Universität Frankfurt* und der *Hermann Willkomm-Stiftung* für die finanzielle Unterstützung während der Durchführung dieser Arbeit.

*Erich Zanger* stellvertretend für die Mechanik-Werkstatt des Instituts für die schnelle und perfekte Ausführung von Aufträgen auch wenn es mal schnell gehen musste, sowie Rat und Hilfe bei der Konstruktion.

*Der Elektronikwerkstatt* für die Reparaturen einiger Geräte und viele Mehrfachsteckdosen aus dem Lager.

*Die Beschleunigermannschaft* : Herrn Schneider, Herrn Dilfer, Herrn Ziel und Herrn Baumgarten für die Hilfe beim Aufbau des Experimentes am IKF und die Fähigkeit auch das unmöglichste Bauteil noch im Fundus des IKF zu finden.

*Dr. Eschenbrenner* sowie *Frau Rotter* und *Frau Lang* aus der Verwaltung für die Bearbeitung der einen oder anderen Reisekostenabrechnung.

*Herrn Kazamias* für die Hilfe beim Transport der Geräte nach Hamburg.

*Den Mitarbeitern bei BESSY II und HASYLAB* für die technische Hilfe vor Ort.

*Markus Schöffler, Andre Staudte, Dr. Jürgen Nickles, Alexandra Knapp, Matthias Odenweller, Uwe Spillmann, Christine Wimmer, Jasmin Titze, Lutz Foucar, Manuel Käsz, Dr. Oliver Hohn, Matthias Smolarski, Martin Trummel* und all den anderen Mitgliedern der HSB-Gruppe für die Hilfe bei verschiedenen Strahlzeiten, Pizza-Bestellungen und einfach nur für die offenen Türen.

*Meiner Familie*, die mich durch all die Jahre unterstützt hat.

*Jennifer Pludra*, meiner Freundin, Verlobten und bald auch Frau, die alle Höhen und Tiefen dieser Arbeit mit mir durchlitten und immer an mich geglaubt hat. Ich liebe Dich!

# Lebenslauf

Mirko Hattaß

geboren am 25.04.1975 in Gelnhausen

1981-85	Grundschule Philipp-Reis-Schule Gelnhausen
1985-94	Gymnasium Grimmelshausen Gymnasium Gelnhausen
15.6.1994	Abitur Gesamtnote 2,1
06.1994 - 08.1995	Zivildienst Jugendherberge Geisnitz
10.1995	Beginn des Physikstudiums in Frankfurt
04.1997	Vordiplom, Gesamtnote : sehr gut
10.1997	Praktikum bei der Gesellschaft für Schwerionenforschung mbH zur Hardware-nahen C-Programmierung (4 Wochen)
03.1998 - 03.1999	Auslandsaufenthalt am Lawrence Livermore National Laboratory Anfertigung der Diplomarbeit
06.1999	Abgabe der Diplomarbeit Titel "Ladungsausgleich langsamer, hochgeladener Ionen in dünnen Folien"
13.12.1999	Diplomprüfung, Gesamtnote : sehr gut
21.1.2000	Diplom der Physik "wegen überragender Leistungen mit Auszeichnung bestan- den"
Seit 1.4.2000	Doktorand am Fachbereich Physik in Frankfurt
04.2000-04.2001	Stipendium der Graduiertenförderung des Fachbereich Physik in Frankfurt
10.1.2001	Verleihung des Philipp-Siedler-Wissenschaftspreises vom Physikalischen Verein Frankfurt für die Diplomarbeit
seit 04.2001	Wissenschaftlicher Mitarbeiter am Institut für Kernphysik, Frankfurt

Weitere Forschungsaufenthalte :

Mai 1999	BESSY I Berlin (1 Woche)
Februar 2000	Lawrence Berkeley National Laboratory Berkeley, USA (3 Wochen)
November 2000	Spring8 Harima Science City, Japan (3 Wochen)
September 2001	BESSY II Berlin (3 Wochen)
Januar 2002	BESSY II Berlin (1 Woche)
Juni 2002	HASYLAB/DESY Hamburg (3 Wochen)
Dezember 2002	Atomic and Molecular Physics Laboratory (AMPL) der Australian National University Canberra, Australien (3 Wochen)
Januar 2003	HASYLAB/DESY Hamburg (3 Wochen)
Oktober 2003	HASYLAB/DESY Hamburg (3 Wochen)