Koinzidente Photoelektronenspektroskopie an Kuprat-Hochtemperatursupraleitern

Dissertation
zur Erlangung des Doktorgrades
der Naturwissenschaften

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

von
Tobias Benjamin Bauer
aus Frankfurt am Main

Frankfurt 2015
(D 30)

vom Fachbereich Physik der

Johann Wolfgang Goethe – Universität als Dissertation angenommen.

Dekan: Professor Dr. R. Reifarth

1. Gutachter: Professor Dr. R. Dörner
2. Gutachter: Privatdozent Dr. T. Jahnke

Datum der Disputation:

Inhaltsverzeichnis

1 Einleitung 1

2 Theoretische Grundlagen 5

2.1 Das Phänomen der Supraleitung 6

2.1.1 Konventionelle Supraleitung (Elektron-Phonon-Wechselwirkung) 8

2.2 Kuprat-Hochtemperatursupraleiter 14

2.2.1 Kristallstruktur 14

2.2.2 Elektronische Struktur und makroskopische Supraleitung 15

2.2.3 Unkonventionelle Supraleitung 24

2.2.4 Probenauswahl 26

2.3 Photoemission von Oberflächen 28

2.3.1 Das Drei-Stufen-Modell der Photoemission 29

2.3.2 Ein-Stufen-Modell der Photoemission 33

2.3.3 Photoemissionseigenschaften von Kuprat-Hochtemperatursupraleitern 34

2.4 Doppelphotoemission (DPE) 36

2.4.1 Direkte Emission von Cooper-Paaren 36

2.4.2 Dynamische Paarungsprozesse 39

3 Experimenteller Aufbau 41

3.1 Überblick 42

3.2 Vakuumsystem 42

3.3 Probenpräparationssystem 46

3.3.1 Probenherstellung (Dünne Filme) 48

3.3.2 Probenpräparation 49

3.4 Synchrotronstrahlung 51

3.4.1 Theorie 51

3.4.2 Synchrotronanlagen 52

3.5 Spektrometer 56

3.5.1 Koinzidenzmessungen 56

3.5.2 Flugzeitspektrometer 60

3.5.3 Themis 1000 mit ±30° Weitwinkelvorsatzlinse 65

3.6 Detektor und Datenaufnahmesystem 71

3.6.1 Funktionsweise des Elektronennachweises 72

3.6.2 Datenaufnahmesystem 73

3.6.3 Orts- und Flugzeitauflösung des Detektorsystems 74

4 Datenanalyse 77
4.1 ADC Pulsanalyse 78
4.1.1 Einzelpulserkennung 78
4.1.2 Doppelpulserkennung 79
4.2 Berechnung der Flugzeiten und Auftrefforte 82
4.2.1 Kalibration 82
4.2.2 Flugzeit 84
4.2.3 Auftrefforte 85
4.3 Konvertierung in Startwinkel und Energie 86
4.3.1 SIMION 87
4.3.2 Konvertierung (Conversion) 87
4.4 Sandbox Analyze 91
4.4.1 Sandbox Simulation 92
4.4.2 Sandbox Conversion 93

5 Ergebnisse und Diskussion 95
5.1 Einführung der Koordinaten 96
5.2 Einfachphotoemission (SPE) 96
5.2.1 Einstellung und Kalibrierung 96
5.2.2 Qualität der Daten 101
5.2.3 Fermiflächen 106
5.2.4 Diskussion der Einfachphotoemission 111
5.3 Doppelphotoemission (DPE) 113
5.3.1 Messeinstellungen (Spektrometereinstellungen) 113
5.3.2 Nachweismethoden 114
5.3.3 Kalibrierung 117
5.3.4 Qualität der Daten 119
5.3.5 Messungen (Cooper-Paare) 129
5.3.6 Diskussion der Doppelphotoemissions-Messungen 142

6 Zusammenfassung und Ausblick 149

A. Anhang 151
A.1 Physikalische Ergänzungen 151
A.1.1 Naturkonstanten 151
A.1.2 Nützliche Umrechnungen 151
A.1.3 Vorsätze für Maßeinheiten 151
A.1.4 Physikalische Ergänzungen zu Bi2212 152
A.2 Technische Ergänzungen 153
A.2.1 Ausheizvorgang 153
A.2.2 Themis 1000 mit ±30° Weitwinkelvorsatzlinse (Details) 154
A.2.3 Konvertierung (Theta Glättung) 160
A.3 Ergänzungen zur Auswertung 161
A.3.1 Supra- und normalleitende Messungen mit moderaten Raten 161
A.3.2 Hohe Raten Messungen 162
A.3.3 Negatives Extrem-Szenario 163
A.4 Fehlerrechnung 164
A.5 Aufgenommene Messungen 165

B. Verzeichnisse 168
B.1 Literaturverzeichnis 168
B.2 Tabellenverzeichnis 176
B.3 Verwendete Abkürzungen (Glossar) 177

C. Lebenslauf 178

1 Einleitung

Nach der ersten Entdeckung des verlustfreien Stromtransports, der sog. Supraleitung, in extrem heruntergekühltem Quecksilber (unterhalb der sog. Sprungtemperatur von 4.15 K) im Jahr 1911, dauerte es über vier Jahrzehnte, bis diese mit der mikroskopischen BCS-Theorie durch die Paarung von Elektronen zu sogenannten Cooper-Paaren (Bosonen) erklärt werden konnte, welche eine kohärente Materiewelle aufbauen. Den entscheidenden Hinweis auf den zugrundeliegenden Paarungsmechanismus der Cooper-Paare lieferte damals die experimentelle Beobachtung eines Isotopeneffekts, welcher auf eine über das Kristallgitter vermittelte Wechselwirkung hindeutete.

Bis zur Entdeckung der in dieser Arbeit untersuchten Kuprat-Hochtemperatursupraleiter mit Sprungtemperaturen bis zu 138 K im Jahr 1987, war die Supraleitung ein ausgesprochenes Tieftemperaturphänomen mit einer von der BCS-Theorie vorhergesagten Sprungtemperatur-Obergrenze von bis zu ca. 30 K. Für Kuprat-Hochtemperatursupraleiter kann die BCS-Theorie allein daher keine ausreichende Erklärung mehr liefern, weshalb man auch von unkonventioneller Supraleitung spricht. Bis heute wurde – trotz einer enormen quantitativen und qualitativen Zunahme der Experimente und der theoretischen Ansätze – noch keine allgemein akzeptierte mikroskopische Theorie zur Erklärung der Kuprat-Hochtemperatursupraleiter gefunden.

Die hohen Sprungtemperaturen machen Kuprat-Hochtemperatursupraleiter erstmalig auch für vielfältige technische Anwendungen interessant, was schon 1987 im Time Magazin als „*The Superconductivity Revolution*“ beschrieben wurde [Time87]. Heutige Beispiele dafür sind supraleitende Kabel oder Bänder, Strombegrenzer, Generatoren oder SQUID-Magnetometer. Dass es sich bisher um recht spezielle Anwendungen handelt, liegt unter anderem an den spröden Materialeigenschaften, welche die industrielle Herstellung erschweren, sowie dem Aufwand der Kühlung, welcher stets im Kosten-Nutzen-Verhältnis stehen muss. Großes Ziel der Forschung ist es daher weiterhin, Supraleitung auch bei Raumtemperatur zu entdecken, was theoretisch nicht ausgeschlossen wird.

Die Suche nach immer geeigneteren Materialien (auch neuartigen Supraleitern) mit höheren Sprungtemperaturen ist bisher heuristischer Natur, da ein theoretisches Verständnis der mikroskopischen Hochtemperatursupraleitung fehlt. Ein theoretischer Durchbruch könnte aufgrund seines möglichen Vorhersagepotentials entscheidende Fortschritte bei dieser Suche bringen. Die Experimente bzw. Observablen dazu sind bisher indirekter Natur, was unter anderem durch die Verzahnung von theoretischen Modellen mit technischen Möglichkeiten befördert wurde. Dazu zählen beispielsweise Josephson-Kontakt-Messungen, die Kernspinresonanz oder die winkelaufgelöste Photoelektronenspektroskopie (ARPES).

Besonders die winkelaufgelöste Photoelektronenspektroskopie bietet wie keine andere Messtechnik die Möglichkeit, die elektronische Struktur von Festkörpern (Bandstruktur) direkt zu messen. Durch den hierbei entstehenden Einblick in die Ein-Teilchen-Green`s-Funktion des Systems liefern ARPES-Messungen wichtige Informationen für die Entwicklung und Validierung von Vielteilchentheorien. Bei der Untersuchung der Kuprat-Hochtemperatursupraleiter konnte durch ARPES-Messungen beispielsweise die $d_{x^2-y^2}$-Symmetrie der Pseudo-Energielücke, einer nicht supraleitenden Phase, in der möglicherweise bereits einzelne Cooper-Paare geformt werden, nachgewiesen werden. Diese Pseudo-Energielücke nimmt heute bei der theoretischen Beschreibung der Kuprat-

Hochtemperatursupraleiter eine zentrale Rolle ein. Sämtliche Rückschlüsse auf die Supraleitung aus ARPES-Messungen sind jedoch insofern indirekter Natur, als dass nicht unmittelbar aufgebrochene Cooper-Paare gemessen werden, sondern lediglich die durch das Einsetzen der Supraleitung oder der Pseudo-Energielücke verursachte Potentialänderung auf die gesamten Elektronen.

Ein bisher nur theoretisch vorhergesagter Prozess, in welchem Cooper-Paare direkt durch die Absorption eines einzelnen Photons emittiert werden, die sog. Doppelphotoemission ($\gamma \rightarrow 2e$), wird in der Arbeit „*Photoinduced Emission of Cooper-Pairs from Superconductors*“ von Jamal Berakdar erstmalig beschrieben [KoBe03]. Bei diesem Prozess bleibt die Information über den Zustand der beiden Elektronen eines Cooper-Paares im Festkörper bei der Emission ins Vakuum erhalten. Durch eine koinzidente ARPES-Messung der beiden Elektronen wäre somit ein direkter Einblick in die Bindung der Cooper-Paare möglich.

Die entsprechenden Rechnungen existieren bisher ausschließlich für konventionelle Supraleiter (V_3Si), da es für Kuprat-Hochtemperatursupraleiter keine der BCS-Theorie entsprechenden Theorien gibt, auf welchen die Rechnungen aufbauen könnten. Nimmt man jedoch die Größen, welche die direkte Emission von Cooper-Paaren bei konventionellen Supraleitern beeinflussen, wie die Energielücke und die Kohärenzlänge der Cooper-Paare, wären Kuprat-Hochtemperatursupraleiter die experimentell vielversprechenderen Kandidaten zur Beobachtung der direkten Emission von Cooper-Paaren. Darüber hinaus erscheinen Messungen von Kuprat-Hochtemperatursupraleitern besonders reizvoll, da die Ergebnisse bei erfolgreicher Messung potentiell wichtige und neuartige Erkenntnisse für das theoretische Verständnis liefern könnten. Fundamentale Fragen wie zum Beispiel die, ob Cooper-Paare bereits in der Pseudo-Energielücke geformt werden, könnten durch Messungen direkt beantwortet werden.

In der Arbeitsgruppe Atomphysik an der Universität Frankfurt am Main wurde bereits länger an einer entsprechenden direkten Untersuchungsmethode für Korrelationen in Festkörpern, der sog. Doppelphotoemission, gearbeitet. Mirko Hattaß hat dafür erstmalig die in der Atomphysik bewährte COLTRIMS-Messtechnik (*Cold Target Recoil Ion Momentum Spectroscopy* - [DMJS00]) erfolgreich für Festkörperproben adaptiert. Mit dem von ihm gebauten Flugzeitspektrometer konnten sämtliche aus einer Kupferprobe emittierten Elektronen in Koinzidenz gemessen werden. Fortgeführt wurde die Arbeit von Stefan Voss, welcher erste Experimente an Kuprat-Hochtemperatursupraleitern mit wechselnden Aufbauten in Kooperation mit der Gruppe von J. C. Campuzano in Chicago durchführte. Zurück in Frankfurt, baute er zusammen mit Robert Wallauer eine von Grund auf neue Messapparatur mit einem Flüssig-Helium-Kryostat und ein auf den Erfahrungen von Mirko Hattaß basierendes Flugzeitspektrometer mit einem homogenen elektrischen Feld auf. Nachdem die Untersuchungen von Kuprat-Hochtemperatursupraleitern aufgrund diverser technischer Schwierigkeiten nicht gelangen, gingen sie zu dem konventionellen Supraleiter Blei (Einkristall) über. An dieser Probe konnten erste erfolgreiche Doppelphotoemissions-Messungen durchgeführt werden. In Bezug auf die Supraleitung bzw. die direkte Emission von Cooper-Paaren wurden allerdings keine greifbaren Resultate erzielt.

In der vorliegenden Arbeit wird die Untersuchung von Kuprat-Hochtemperatursupraleitern mit einer neu aufgebauten und deutlich spezialisierten Messapparatur wieder aufgenommen. Dazu wird erstmalig ein komplexes elektrostatisches Flugzeitspektrometer mit inhomogenen Feldern eingesetzt, welches eine deutlich höhere Energieauflösung auf Kosten eines kleineren, gleichzeitig abgedeckten Energieausschnitts ermöglicht. Im

Unterschied zu früheren Experimenten ist das gesamte Experiment somit auf den vorhergesagten Prozess der direkten Emission von Cooper-Paaren ausgerichtet. Allgemeinere Untersuchungen der Doppelphotoemission (γ→2e-Prozesse) sind hingegen nicht mehr möglich.

Nach einer kurzen theoretischen Einführung der konventionellen und unkonventionellen Supraleitung sowie der winkelaufgelösten Einzel- und Doppelphotoemission in Kapitel 2. *Theoretische Grundlagen*, werden die dazu neu aufgebaute Messapparatur und das Probensystem in Kapitel 3. *Experimenteller Aufbau* ausführlich beschrieben.

Anschließend werden in Kapitel 4. *Datenanalyse* die zur Auswertung der Einzel- und Doppelphotoemissions-Messungen neu entwickelten Softwarelösungen vorgestellt. Dazu zählt das Datenanalyse-Programm *Sandbox Analyze*, welches sämtliche für das Arbeiten mit den Messdaten benötigten Funktionen, wie zum Beispiel das Konvertieren der aufgezeichneten Flugzeiten und Auftrefforte in die Startimpulse der Elektronen oder die Möglichkeit zum Vergleichen der Messungen mit Spektrometer-Simulationen, miteinander kombiniert. Speziell für die Doppelphotoemissions-Messungen wurde die ursprünglich von Lutz Foucar [Fouc08] und Robert Wallauer [Wall11] entwickelte Doppelpulserkennung weiter optimiert und eine Validierung durch sog. Doppelfilter von erkannten Doppelpulsen eingeführt.

In Kapitel 5. *Ergebnisse und Diskussion* wird zuerst die experimentell erreichte Energie- und Winkelauflösung diskutiert, bevor die Einfachphotoemissions-Messungen an den beiden Kuprat-Hochtemperatursupraleitern Bi2212 ($Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$) und Y123 ($YBa_2Cu_3O_{7+\delta}$) vorgestellt werden. Anhand dieser Messungen werden auch die interessanten Möglichkeiten der aufgebauten Messapparatur, mit ihrer vergleichsweise hohen Transmission, für Einfachphotoemissions-Messungen aufgezeigt. Bei den anschließend vorgestellten Doppelphotoemissions-Messungen werden die verschiedenen Messszenarien zum Nachweis der direkten Emission von Cooper-Paaren vorgestellt und letztlich die einzelnen Messungen diskutiert.

Eine kurze Zusammenfassung der gesamten Arbeit kann im letzten Kapitel 6. zusammen mit einem Ausblick für die Doppelphotoemission an Kuprat-Hochtemperatursupraleitern gefunden werden.

2 Theoretische Grundlagen

In diesem Kapitel soll zunächst das Phänomen der Supraleitung anhand der allgemein akzeptierten BCS-Theorie vorgestellt werden.[1] Es folgt die Darstellung der in dieser Arbeit untersuchten Kuprat-Hochtemperatursupraleiter, für die es bisher noch keine umfassende Theorie gibt. Anschließend werden die theoretischen Grundlagen der Photoemission von Oberflächen zur Interpretation der in dieser Arbeit durchgeführten Messungen erläutert, bevor letztlich der eigentliche Doppelphotoemissions-Prozess und seine Bedeutung für das Verständnis der Kuprat-Hochtemperatursupraleiter vorgestellt werden.

Für die theoretischen Grundlagen der Festkörperphysik wird auf das Lehrbuch zur Festkörperphysik von Charles Kittel [Kitt06] verwiesen, sowie auf die Doktorarbeiten von Stefan Voss [Voss11] und Robert Wallauer [Wall11], in denen eine kurze Zusammenfassung aller für diese Arbeit relevanten Grundlagen gegeben wird.

[1] Angelehnt an die Darstellung von Werner Buckel und Reinhold Kleiner in [BuKl12].

2.1 Das Phänomen der Supraleitung

Supraleiter sind Materialien, deren elektrischer Widerstand bei Unterschreiten einer sogenannten Sprungtemperatur (T_C) schlagartig und vollständig verschwindet[2]. Erstmals wurde dieses Phänomen im Jahr 1911 von Kamerlingh Onnes[3] an Quecksilber (T_C = 4.15 K) beobachtet, nachdem es ihm zuvor gelungen war, erstmalig Helium zu verflüssigen (Siedepunkt 4.15 K bei Normaldruck) und die Temperatur durch zusätzliches Abpumpen noch weiter abzusenken. Damals wurde Quecksilber als Material gewählt, da man sich erhoffte, durch mehrfache Destillation einen besonders hohen Reinheitsgrad zu erreichen. Heute weiß man, dass die Supraleitung ein weitverbreitetes Phänomen ist, welches bei vielen chemischen Elementen - wenn auch teils nur unter sehr hohem Druck - zu finden ist. Bis heute wurden tausende weitere supraleitende Verbindungen gefunden.

Die zweite charakteristische Eigenschaft von Supraleitern ist der erstmalig von Meißner und Ochsenfeld im Jahr 1933 beobachtete ideale Diamagnetismus (Meißner-Ochsenfeld-Effekt). Dies bedeutet, dass ein Supraleiter im supraleitenden Zustand ein äußeres Magnetfeld bis zu einer kritischen Feldstärke bzw. Stromdichte[4] (temperaturabhängig) und abgesehen von einer sehr dünnen Oberflächenschicht (London'sche Eindringtiefe λ_L), vollständig aus seinem Inneren verdrängt. Oberhalb dieser Grenze bricht die Supraleitung zusammen (siehe Abbildung 2.1). Dabei unterscheidet sich ein Supraleiter von einem idealen Leiter (R = 0) insofern, als dass er auch ein bereits im normalleitenden Zustand konstant anliegendes äußeres Magnetfeld bei Unterschreiten der Sprungtemperatur aus seinem Inneren verdrängt. Dadurch ist der Prozess thermodynamisch reversibel[5] und kann als thermodynamischer Zustand klassifiziert werden. Später wurde erstmalig von Lew Schubnikow (1935) ein weiteres Verhalten von Supraleitern beobachtet, die sogenannte Typ-II-Supraleitung. Diese zeigen dabei ebenfalls idealen Diamagnetismus bis zu einem unteren kritischen Magnetfeld B_{C1}. Darüber bleibt die Probe allerdings supraleitend, obwohl sie keinen idealen Diamagnetismus mehr zeigt, und wird erst oberhalb eines kritischen Magnetfeldes B_{C2} normalleitend, welches oft erheblich größer als B_{C1} ist (Werte von über 100 Tesla wurden beobachtet).

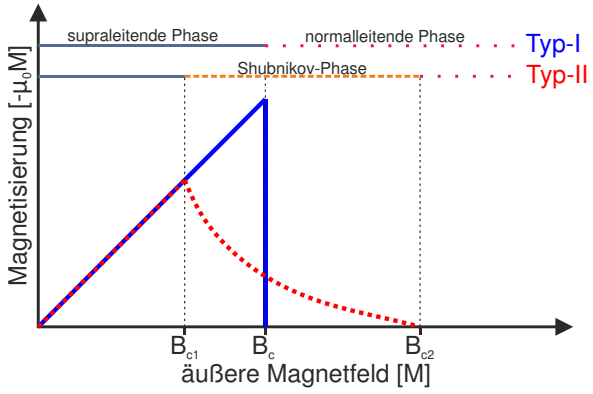


Abbildung 2.1: Unterschiedliches Verhalten von Typ-I- und Typ-II-Supraleitern.

Bei Typ-I-Supraleitern bricht die Supraleitung gleichzeitig mit dem Verlust des idealen Diamagnetismus zusammen, wohingegen bei Typ-II-Supraleitern die Supraleitung erst weit nach dem Verlust des idealen Diamagnetismus zusammenbring.

[2] Experimentelle Obergrenze für den Restwiderstand liegt bei 10^{-17} des spezifischen Widerstands von Kupfer.

[3] **Nobelpreis für Physik 1913** an Heike Kamerlingh Onnes „aus Anlass seiner Untersuchungen über die Eigenschaften von Körpern bei niedrigen Temperaturen, die unter anderem zur Herstellung von flüssigem Helium führten" [Nobel].

[4] Eine kritische Stromdichte ist über das erzeugende Magnetfeld mit dem kritischen Magnetfeld verknüpft.

[5] Bei einem idealen Leiter macht es einen Unterschied, ob man erst ein äußeres Magnetfeld anlegt und dann abkühlt oder umgekehrt. Bei einem Supraleiter ist diese Reihenfolge gleichgültig.

Im Zwischenbereich, der sogenannten Schubnikow-Phase, bilden sich im Inneren des Supraleiters Flussschläuche, welche die magnetischen Feldlinien bündeln und die Probe durchsetzen. Diese wurden 1952 von A. A. Abrikossow[6] vorhergesagt und werden daher auch Abrikossow-Flusswirbel genannt. Der erste experimentelle Nachweis dieser Flussschläuche gelang 1964 mit Hilfe von Neutronenbeugung. Später wurde auch die Vorhersage, dass einzelne Flussschläuche nur ein elementares Flussquant $\phi_0 = h/2e = 2.07 \times 10^{-15}\ Tm^2$ enthalten, experimentell bestätigt.

Dass eine Quantisierung des magnetischen Flusses auch bei makroskopischen supraleitenden Ringen (aus Typ-I Supraleitern) eine Rolle spielt, wurde bereits 1950 von Fritz London vermutet ($\phi = h/e$). Dies war ein wichtiger Schritt hin zum Verständnis der Supraleitung als makroskopischem Quantenphänomen. Experimentell konnte 1961 von R. Doll und M. Näbauer sowie fast gleichzeitig von B. Deaver und W. Fairbank gezeigt werden, dass der magnetische Fluss durch einen Zylinder im Vielfachen des Flussquants ϕ_0 auftritt.

Die theoretische Beschreibung der Supraleitung war lange Zeit rein phänomenologischer Natur. Aufbauend auf der von C. Gorter und H. Casimir [GoCa34] entwickelten Vorstellung, Supraleitung als einen Mix aus normalen und supraleitenden Elektronen (Zwei-Flüssigkeitsmodell der Supraleitung) zu interpretieren, haben die Brüder Fritz und Heinz London 1935 mit einem Postulat (Stromleitung ohne Energiedissipation bzw. $\boldsymbol{j} = \boldsymbol{A}/\mu_0\lambda_L^2$) das Ohm'sche Gesetz für Supraleiter aufgestellt [LoLo35]. Damit war eine Erklärung des Meißner-Ochsenfeld-Effekts im Zusammenhang mit abschirmenden Oberflächenströmen gefunden. Ein nächster bedeutender Schritt gelang Witali Ginsburg[5] und Lew Landau[7] mit der nach ihnen benannten makroskopischen Ginsburg-Landau-Theorie (oder Ψ-Theorie). Dabei wird angenommen, dass eine quantenmechanische Wellenfunktion $\Psi(\mathbf{r},\mathbf{t})$ die Gesamtheit der supraleitenden Ladungsträger mit einem kohärenten Zustand beschreibt. Eines der wichtigen Ergebnisse dabei war die Kohärenzlänge ξ_L, welche die minimale Größe von thermodynamischen Fluktuationen in der supraleitenden Phase angibt. Über das Verhältnis der Eindringtiefe λ_L zu dieser Kohärenzlänge, dem sogenannte Ginsburg-Landau-Parameter $\kappa = \lambda/\xi_L$, können Typ-I mit $\kappa < 1/\sqrt{2}$ und Typ-II-Supraleiter mit $\kappa > 1/\sqrt{2}$ voneinander unterschieden werden.

Der Durchbruch beim mikroskopischen Verständnis der Supraleitung erfolgte 1957 durch die Arbeit von J. Bardeen, L. N. Cooper und J. R. Schrieffer durch die nach ihnen benannte BCS-Theorie[8], welche im Abschnitt 2.1.1 *Konventionelle Supraleitung (Elektron-Phonon-Wechselwirkung)* genauer vorgestellt wird. Ein wichtiges Ergebnis der Theorie war eine Sprungtemperaturobergrenze (zwischen 30 - 40 K für bestimmte Materialien), oberhalb welcher keine Supraleitung mehr möglich sein sollte.

Umso überraschender war der durch die Entdeckung der Supraleitung bei Kupraten[9] (Kupferoxid) von J. G. Bednorz und K. A. Müller[10] im Jahr 1986 ausgelöste *Goldrausch* (siehe

[6] **Nobelpreis für Physik 2003** an Alexei A. Abrikossow, Witali Ginsburg und Antony James Leggett „für bahnbrechende Arbeiten in der Theorie über Supraleiter und Supraflüssigkeiten" [Nobel].

[7] **Nobelpreis für Physik 1962** an Lew Landau „für seine bahnbrechenden Theorien über kondensierte Materie, besonders das flüssige Helium" [Nobel].

[8] **Nobelpreis für Physik 1972** an John Bardeen, Leon Neil Cooper und John Robert Schrieffer „für ihre gemeinsam entwickelte Theorie der Supraleitung, auch BCS-Theorie genannt" [Nobel].

[9] Die erste Entdeckung gelang im Ba-La-Cu-O-System mit einer Sprungtemperatur von 30K.

auch Abbildung 2.2), infolgedessen immer neue Supraleiter mit Sprungtemperaturen deutlich über der vorhergesagten Sprungtemperaturobergrenze der BCS-Theorie entdeckt wurden.[11] Besonders die Entdeckung der Supraleitung im Y-Ba-Cu-O-System, welches eine Sprungtemperatur (T_C = 80 K) oberhalb der Siedetemperatur von flüssigem Stickstoff (T = 77.15 K) besitzt, gab dem Forschungsfeld aufgrund potentieller technischer Anwendungen einen enormen Schub.

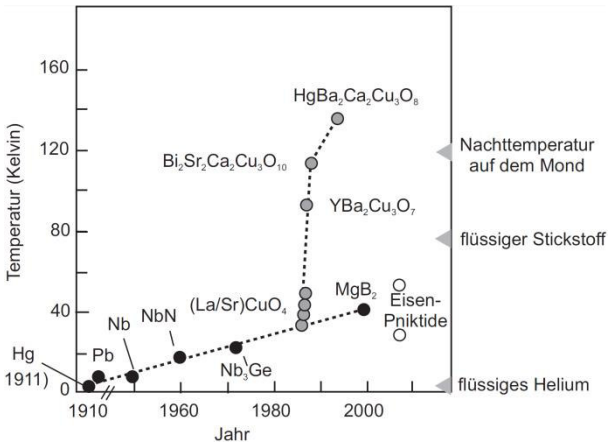


Abbildung 2.2: Entwicklung der supraleitenden Übergangstemperatur seit Entdeckung der Supraleitung. Abbildung entnommen aus [BuKl12].

Allgemein werden Supraleiter mit Sprungtemperaturen von über 30 K als Hochtemperatursupraleiter (kurz HTSL oder engl. HTSC) bezeichnet, was historisch als Obergrenze der BCS-Theorie galt. Nach der Entdeckung der Klasse von Hochtemperatursupraleitern auf der Basis von Kupferoxid, den sogenannten Kuprat-Hochtemperatursupraleitern, wurde 2008 noch eine weitere Klasse von eisenhaltigen Hochtemperatursupraleitern, die sogenannten Eisen-Pniktide, entdeckt. Eine allgemeine und anerkannte Theorie zur Beschreibung der Supraleitung in diesen Systemen ist bis heute nicht gefunden. Eine Übersicht der theoretischen Ansätze zur Beschreibung von Hochtemperatursupraleitern, welche auch als unkonventionelle Supraleiter bezeichnet werden, wird in Abschnitt 2.2.3 *Unkonventionelle Supraleitung* gegeben.

2.1.1 Konventionelle Supraleitung (Elektron-Phonon-Wechselwirkung)

Der Ladungstransport in Metallen erfolgt über freie Elektronen (Valenzelektronen), welche unter dem Einfluss eines elektrischen Feldes - bzw. einer angelegten Spannung - beschleunigt werden. Dabei sind die Stöße mit Atomkernen nach einer mittlernen Stoßzeit τ, bei denen die Elektronen ihre aufgenommene Energie abgeben und erneut beschleunigt werden müssen, die Ursache für den elektrischen Widerstand. Entsprechend erklärt sich auch die Temperaturabhängigkeit des elektrischen Widerstands durch die ungeordnete thermische Bewegung und die damit verbundene Erhöhung oder Verringerung der Wahrscheinlichkeit für derartige Stöße.

Im Rahmen dieses Modells scheint es nicht möglich, dass der elektrische Widerstand bei endlicher Temperatur und innerhalb eines sehr schmalen Temperaturbereichs plötzlich verschwinden soll.

---

[10] **Nobelpreis für Physik 1987** an Georg Bednorz und Karl Alexander Müller „für ihre bahnbrechende Entdeckung von Supraleitung in keramischen Materialien“ [Nobel].

[11] Der Rekord liegt seit 1994 bei T_C = 138 K mit dem Kuprat-Hochtemperatursupraleiter $HgBa_2Ca_2Cu_3O_{8+\delta}$.

Um dieses Verhalten verstehen zu können, müssen die Gesetze der Quantentheorie mit einbezogen werden. Angefangen mit der Grundidee, dass jedem physikalischen System diskrete Zustände zugeordnet sind und ein Austausch von physikalischen Größen, wie etwa der Energie oder des Drehimpuls, nur durch Übergänge in andere freie Zustände erfolgen kann. Dabei ist insbesondere die damit verbundene relative Stabilität quantenmechanischer Zustände der Schlüssel zum Verständnis der Supraleitung. In dieser Vorstellung wird ein Mechanismus gesucht, welcher die Wechselwirkung bzw. die Stöße zwischen den stromtragenden Elektronen und dem Gitter unterbindet.

Dazu muss neben der Wechselwirkung der Elektronen mit dem Gitter auch die Wechselwirkung der Elektronen untereinander berücksichtigt werden. Erste Modelle für einen entsprechenden Wechselwirkungsmechanismus waren eine Coulomb-Abstoßung der Elektronen untereinander, welche zu einer räumlichen Ordnung führt, eine magnetische Wechselwirkung der Elektronen untereinander oder die Struktur der Elektronenzustände selbst. Jedoch lieferte keiner der Versuche ein befriedigendes theoretisches Modell. Der wichtige Hinweis auf den mikroskopischen Ursprung des Wechselwirkungsmechanismus wurde 1950 experimentell durch die Beobachtung eines Isotopeneffekts[12] geliefert [Maxw50, RSWN50]. Dieser führte unabhängig voneinander H. Fröhlich [Fröh50] und J. Bardeen [Bard50] zu der Beschreibung eines Elektron-Phonon-Mechanismus, in dem Wechselwirkungen der Elektronen untereinander über die Polarisation (Verzerrung/Schwingungen) des Gitters stattfinden können. In einer feldtheoretischen Behandlung wird dieser Mechanismus durch den Austausch von Schwingungsquanten bzw. Phononen beschrieben (Elektron-Phonon-Kopplung).

Aufbauend auf dem gefundenen Mechanismus wurde von Leon Neil Cooper 1956 gezeigt, dass der Fermi-See der Elektronen instabil ist gegen die Bildung eines gebundenen Zustands zweier Elektronen, sobald eine beliebig kleine (infinitesimal) anziehende Wechselwirkung zwischen ihnen existiert [Coop56]. Solche gebundenen Paare (später Cooper-Paare genannt) wurden in der theoretischen Behandlung der Supraleitung bereits von R. Ogg und M. Schafroth [Ogg46, Scha54] angedacht.

Basierend auf dieser Elektronenpaarung ist es schließlich J. Bardeen, L. N. Cooper und J. R. Schrieffer 1957 gelungen, eine quantenmechanische Vielteilchen-Theorie der Supraleitung zu finden [BaCS57]. Anstelle einer kompletten Herleitung soll im Folgenden nur eine phänomenologische Erklärung der mikroskopischen Supraleitung nach [BuKl12] gegeben werden:

Kern der BCS-Theorie ist die Bindung zweier Elektronen zu sogenannten Cooper-Paaren. Dies geschieht durch eine attraktive Wechselwirkung, welche über das Gitter vermittelt wird. In einem qualitativen Bild kann man sich dies so vorstellen, dass ein durch das Gitter fliegendes erstes Elektron das Gitter entlang seiner Flugbahn polarisiert. Es hinterlässt entlang seiner Flugbahn eine Anhäufung positiver Ladungen (dynamische Polarisation), welche eine anziehende Kraft auf ein zweites Elektron in Richtung des ersten Elektrons ausübt. Bei dieser Bindung wird die Gesamtenergie des Paares abgesenkt.

Die Wechselwirkung hängt schon in diesem einfachen Bild davon ab, wie rasch das Gitter einer polarisierenden Wirkung des erste Elektrons folgen kann, d.h. wie schnell die

[12] Beobachtung, dass die Sprungtemperatur mit der Isotopenmasse variiert.

Rumpfatome Verrückungen vornehmen können. Dies hängt wesentlich von der Eigenfrequenz des Systems und somit von der Masse der Rumpfatome ab, was die Beobachtungen des Isotopeneffekts erklärt[13].

Die Wechselwirkung zwischen den Elektronen lässt sich feldtheoretisch über den Austausch von virtuellen Phononen beschreiben. Bei diesem Phononenaustausch wechseln die beiden Elektronen ihre Wellenzahlvektoren, wobei folgender Erhaltungssatz gelten muss:

$$\vec{k}_1 + \vec{k}_2 = \vec{k}_1' + \vec{k}_2' = \vec{K} \tag{2.1}$$

Unter der Bedingung, dass die Wechselwirkung im Impulsraum innerhalb einer dünnen Schale oberhalb der Fermienergie liegen muss ($E < \hbar^2k^2/2m < E_F + \hbar\omega_D$), sind die möglichen Paarzustände bei $\mathbf{K} \neq 0$ auf ein kleines Volumen beschränkt (siehe Abbildung 2.3 links):

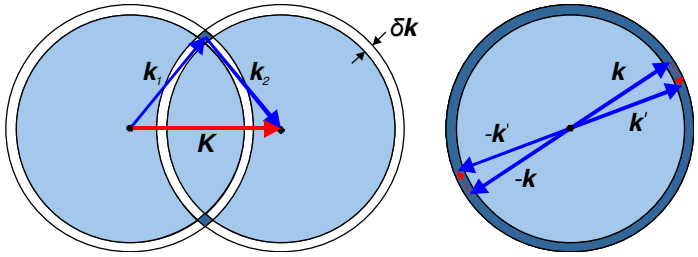


Abbildung 2.3: Bei einem Gesamtimpuls von $\mathbf{K} \neq 0$ (links) ist die Impulserhaltung nur erfüllt, wenn die Wellenvektoren der beiden Elektronen ($\mathbf{k}_1$, $\mathbf{k}_2$) innerhalb der dunkel markierten Bereiche liegen. Bei $\mathbf{K} = 0$ (rechts) ist dieser Bereich maximal. Ebenfalls gezeigt ist ein typischer Streuprozess, bei dem die Elektronen zwar ihre einzelnen Wellenvektoren ändern, der Gesamtimpuls aber konstant Null bleibt.

Das Volumen und somit die Wahrscheinlichkeit werden bei $\mathbf{K} = 0$ maximal, wodurch auch die Stärke der anziehenden Wechselwirkung maximal wird und somit $\mathbf{k}_1 = -\mathbf{k}_2$ gilt. Um einen Stromfluss (Suprastrom) zu erzeugen, kann die Cooper-Paarung um einen Schwerpunkt $\mathbf{S}$ beschrieben werden. Der Zustand ist dann gegeben als: $\{\mathbf{S} + \mathbf{k}, \mathbf{S} - \mathbf{k}\}$.

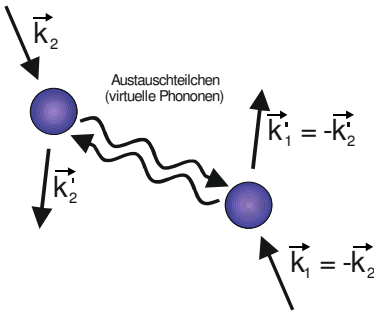


Abbildung 2.4: Darstellung der Elektron-Elektron-Wechselwirkung via Phononen.

Eine weitere wichtige Eigenschaft von Cooper-Paaren ist, dass sich die beiden Elektronen aufgrund der Symmetrie des Wechselwirkungs-Potentials vorzugsweise mit entgegengesetztem Spin, einem sog. Spin-Singulett-Zustand ($S = 0$), paaren. Dementsprechend verhalten sie sich nach außen wie Bosonen und unterliegen der Bose-Einstein-Statistik. Dadurch kann die Gesamtheit der Cooper-Paare einen gemeinsamen Zustand einnehmen, welcher durch eine einzelne, den Festkörper umspannende Bose-

[13] Schwere Isotope schwingen etwas langsamer und folgen der polarisierenden Wirkung langsamer als leichte Isotope, die Polarisation wird geringer bleiben. Dies bedeutet eine Abschwächung der Wechselwirkung zwischen den Elektronen und somit eine Absenkung der Sprungtemperatur, den sogenannten Isotopeneffekt ($T_c \propto M^{-1/2}$).

Einstein-Wellenfunktion beschrieben werden kann. Alle in diesem Zustand beschriebenen Paare stimmen in allen physikalischen Größen überein. Eine derartige Wellenfunktion wird von lokalen Hindernissen (schwingende Rumpfatome oder Störstellen des Gitters allgemein) nicht mehr beeinflusst, so dass der Stromtransport verlustfrei stattfinden kann. Anders ausgedrückt ist ein Mechanismus gefundenen, welcher die Wechselwirkung zwischen den Suprastrom tragenden Elektronen (Cooper-Paaren) und dem Gitter verbietet. Der Zustand eines Cooper-Paars lässt sich ausdrücken mit (siehe Abbildung 2.4):

$$\text{Cooper-Paar: } \{\vec{k}\uparrow, -\vec{k}\downarrow\} \tag{2.2}$$

Die mittleren Abstände, über welche diese Paarkorrelation stattfindet, liegen zwischen 100 und 1000 nm und werden als BCS-Kohärenzlänge ξ_0 bezeichnet. Vereinfacht kann man diese auch als mittlere Ausdehnung eines Cooper-Paares interpretieren. Da die Ausdehnung gegenüber dem typischen mittleren Abstand der Leitungsbandelektronen von einigen 10^{-1} nm sehr groß ist, überlappen die Cooper-Paare sehr stark. Im Bereich eines Cooper-Paares liegen im Schnitt 10^6 bis 10^7 andere Elektronen, welche wiederum selbst zu Paaren korreliert sein können.

Man kann annehmen, dass die Cooper-Paar-Zustände $\{\vec{k}\uparrow, -\vec{k}\downarrow\}$ in einem Intervall um die Fermi-Energie E_F gleichzeitig mit einer Wahrscheinlichkeit $|u_k|^2$ unbesetzt und mit einer Wahrscheinlichkeit $|v_k|^2$ besetzt sind (quantenmechanische Superposition). Dabei sind die Wahrscheinlichkeitsamplituden u_k und v_k im Allgemeinen komplexwertige Zahlen, die vom Wellenvektor abhängen (es gilt $|u_k|^2+|v_k|^2 = 1$). Setzt man diesen Ansatz für die Wellenfunktion der Cooper-Paare in die Schrödingergleichung des Systems ein und wählt u und v, so dass die Energie minimal wird, findet sich für $|v_k|^2$ der Ausdruck [BuKl12]:

$$|v_k|^2 = \frac{1}{2}\left[1 - \frac{\varepsilon_k - E_F}{\sqrt{|\Delta|^2 + (\varepsilon_k - E_F)^2}}\right] \tag{2.3}$$

Wobei $\varepsilon_k = \frac{\hbar^2}{2m}(k_x^2 + k_y^2 + k_z^2)$ die Energie der einzelnen Elektronen bei Abwesenheit einer Wechselwirkung ist. Die Summe $\Delta = -V\sum_k u_k v_k$ ist wie die Wechselwirkungsenergie V (Elektron-Phonon-WW) nur im Intervall $\pm\hbar\omega_C$ ungleich Null und ist im Allgemeinen eine komplexe Zahl mit reeller Amplitude Δ_0 ($\Delta = \Delta_0 e^{i\varphi}$).

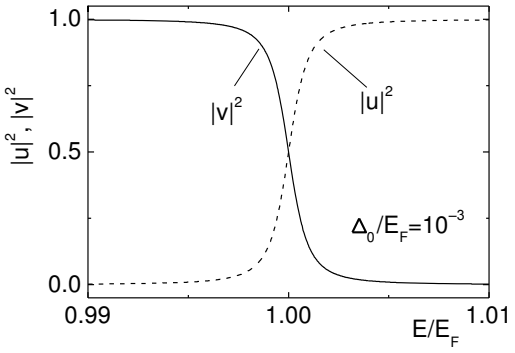


Abbildung 2.5: Die Wahrscheinlichkeit $|v_k|^2$ (besetzt) und $|u_k|^2$ (unbesetzt) für ein Cooper-Paar. Für die Darstellung wurde E_F = 1 eV und Δ_0 = 1 meV gewählt, was typischen Werten für metallische Supraleiter entspricht.

In Abbildung 2.5 sind die beiden Wahrscheinlichkeiten $|u_k|^2$ und $|v_k|^2$ für einen typischen metallischen Supraleiter dargestellt. Im Intervall $\pm\Delta_0$ um E_F sind die beiden Funktionen von Null bzw. Eins verschieden, was bei einem nicht wechselwirkenden System nicht der Fall wäre. Das Verhältnis von Δ_0/E_F beträgt dabei 10^{-3}, was bedeutet, dass nur etwa ein Promille aller Elektronen nahe der Fermienergie an der Supraleitung (Cooper-Paarung) teilnehmen.

Eine weitere Auswahl an wichtigen Ergebnissen, welche aus der BCS-Theorie folgen:

- Der Energiegewinn, welcher durch die Cooper-Paarung entsteht (Kondensationsenergie), ist durch $-N(E_F)\Delta_0^2/2$ gegeben. Wobei $N(E_F)$ die Zustandsdichte an der Fermikante ist.

- Die Energie, welche erforderlich ist um ein ungepaartes Elektron zum System hinzuzufügen, ergibt sich aus:

$$E_K = \sqrt{(\varepsilon_K - E_F)^2 + \Delta_0^2} \tag{2.4}$$

  Ein solches Elektron inklusive der Wechselwirkung wird als Quasiteilchen bezeichnet. Dabei hat die Änderung der Energie Einfluss auf die Ein-Teilchen-Zustandsdichte nahe der Fermienergie.

- Die Ein-Teilchen-Zustandsdichteverteilung im supraleitenden Zustand ist gegeben durch

$$N_S(E) = N_n(E_F)\frac{|E - E_F|}{\sqrt{(E - E_F)^2 - \Delta_0^2}} \quad f\ddot{u}r\ |E - E_F| \geq \Delta_0 \tag{2.5}$$

  wobei $N_S(E)$ gleich Null ist im Bereich $|E - E_F| \leq \Delta_0$ (siehe Abbildung 2.6 links). Da im Energieintervall $E_F \pm \Delta_0$ keine Zustände existieren, wird $2\Delta_0$ auch als die Energielücke des Supraleiters bezeichnet.

- Die Größe der Energielücke ($2\Delta_0$) ist abhängig von der Sprungtemperatur (siehe Abbildung 2.6 rechts):

$$2\Delta_0(T = 0) = 3{,}5 k_B T_C \tag{2.6}$$

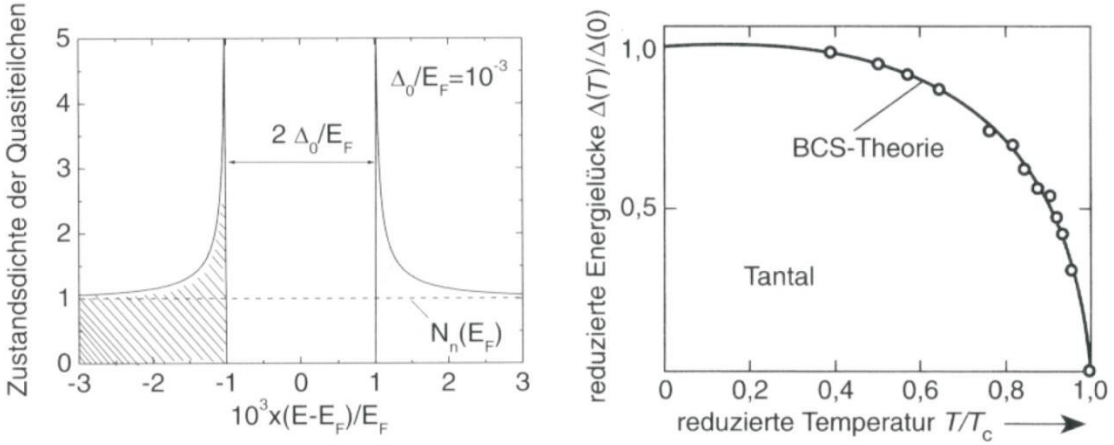


Abbildung 2.6: Links) Normierte Zustandsdichte ($N_S(E)/N_N(E_F)$) der Quasiteilchen im Supraleiter nach der BCS-Theorie bei T = 0 K. Rechts) Temperaturabhängigkeit der Energielücke von Tantal ($\Delta(0)$ = 1.3 meV). Beide Abbildungen entnommen aus [BuKl12].

- Die Paarwellenfunktion ist kaum vom Wellenvektor der Elektronen abhängig[14]. Gleiches gilt für die Energielücke $2\Delta_0$ in der Zustandsdichte der Quasiteilchen. Eine solche isotrope Verteilung wird als s-Wellensymmetrie[15] bezeichnet (Drehimpuls L = 0), siehe Abbildung 2.7.

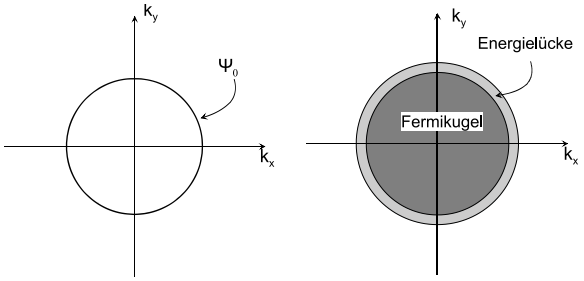


Abbildung 2.7: Links) Amplitude der Paarwellenfunktion im Impulsraum. Rechts) Größe der Energielücke.

Entnommen aus [BuKl12].

- Die Sprungtemperatur T_C ist mit den Größen $N_n(E_F)$, $\hbar\omega_C$ und der Cooper-Paar-Wechselwirkung V verknüpft:

$$T_C = 1{,}13\frac{\hbar\omega_C}{k_B}exp\left(-\frac{1}{N_n(E_F)V}\right) \tag{2.7}$$

  Dabei kann ω_C mit der Debye-Frequenz ω_D des Materials identifiziert werden, wodurch man unmittelbar den Zusammenhang zwischen Sprungtemperatur und der Masse der Gitterbausteine erhält (Isotopen-Effekt).
  Eine Obergrenze der Sprungtemperatur findet man, indem man eine typische Debye-Frequenz ($\omega_D \leq 10.4$ THz bzw. $\Theta_D \leq 500$ K) und eine schwache Kopplungskonstante $\lambda_{eff} = N_N(E_F)V$ ($\leq 1/3$) annimmt. In diesem Fall erhält man eine Obergrenze der Sprungtemperatur zwischen 30 und 40 K.

Darüber hinaus konnte die BCS-Theorie auch Erklärungen für einen Phasenübergang zweiter Ordnung sowie die spezifische Wärme der Elektronen nahe der Fermienergie liefern, worauf hier allerdings nicht weiter eingegangen werden soll.

[14] Abgesehen von besonderen Anisotropieeffekten in bestimmten Materialien sowie bei Schichtsupraleitern.
[15] Es ist bisher ungeklärt, ob die Elektron-Phonon-Wechselwirkung ausnahmslos zu einer s-Wellen-Symmetrie (konventionellen Supraleitung) führt oder ob nicht auch andere Paarungsmechanismen dazu führen können.

2.2 Kuprat-Hochtemperatursupraleiter

Nach der Entdeckung der Supraleitung auf Basis von Kupferoxiden und den immer höheren Sprungtemperaturen (siehe Abbildung 2.2 auf Seite 8) war schnell klar, dass sich diese Klasse von Supraleitern nicht mehr alleine durch eine über das Gitter vermittelte Wechselwirkung wie in der mikroskopischen BCS-Theorie erklären ließ. Das Phänomen wurde aufgrund der höheren Übergangstemperaturen als Hochtemperatursupraleitung bezeichnet, worunter man heute allgemein supraleitende Materialien versteht, deren Supraleitungs-Mechanismus sich nicht mit einer Elektronen-Phononen-Wechselwirkung wie bei konventionellen Supraleitern erklären lässt. Direktes Anzeichen dafür war neben den höheren Übergangstemperaturen vor allem das Nichtvorhandsein des Isotopeneffekts[16]. Hochtemperatursupraleiter werden daher auch als unkonventionelle Supraleiter bezeichnet. Wobei die mikroskopische Ursache der Supraleitung bzw. des Supraleitungs-Mechanismus in diesen Materialien nach wie vor ungeklärt ist. Allerdings kann, wie bei konventionellen Supraleitern, die Paarung von Elektronen zu Cooper-Paaren (Spin-Singulett-Paarung) beobachtet werden.[17] Treibendes Ziel der Forschung ist es dabei, supraleitende Materialien zu entdecken, welche bereits bei Raumtemperatur Supraleitung zeigen, was bisher von keiner anerkannten Theorie ausgeschlossen wird.

2.2.1 Kristallstruktur

Insgesamt sind 26 verschiedene Kristallstrukturen für Kuprat-Hochtemperatursupraleiter bekannt [SKRO94], von denen sich einige nur als polykristalline Keramiken, viele allerdings auch als Einkristalle und dünne Filme von hoher Qualität herstellen lassen. Eine Gemeinsamkeit ist die Perowskit-artige Kristallstruktur (ABO_3) und der schichtartige Aufbau aus CuO_2-Ebenen, welche durch dazwischenliegende isolierende Schichten (Ladungsreservoirs) voneinander getrennt werden. Sind mehrere CuO_2-Schichten eng benachbart, spricht man von Doppel-Ebenen (Bi2212), Dreifach-Ebenen usw., wobei die Übergangstemperatur mit der Anzahl der Schichten ansteigt[18]. Die Struktur der namensgebenden CuO_2-Schicht[19], welche auch die elektrischen und magnetischen Eigenschaften mit ihrer quasi-zweidimensionalen Physik bestimmt, ist in Abbildung 2.8 skizziert.

Die gesamte Kristallstruktur des in dieser Arbeit hauptsächlich untersuchten Kuprat-Hochtemperatursupraleiters $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$ (auch als Bi2212 oder BSCCO bezeichnet) ist in Abbildung 2.9 exemplarisch abgebildet. Die eingezeichnete flächenzentrierte orthorhombische Einheitszelle hat dabei die Dimension $a \approx b = 5.4$ Å und $c = 30.7$ Å (c ist dabei senkrecht zu den Cu-O-Ebenen). Da sich die Struktur nur leicht von einer raumzentrierten tetragonalen Struktur unterscheidet, dient meist die sogenannte pseudotetragonale Einheitszelle als Rahmen für Rechnungen und Messungen (siehe Abbildung 2.8). Als Bezeichnungskonvention hat sich $M=(\pi, 0)$, $X/Y=(\pi, \pm\pi)$ und $Z=(2\pi, 0)$ für die Hochsymmetriepunkte im Impulsraum (der pseudotetragonalen Einheitszelle) durchgesetzt (siehe Abbildung 2.10 links).

---

[16] Für optimal dotierte Proben ist der Isotopeneffekt klein bis nicht vorhanden. Für nicht optimal dotierte Proben hingegen kann ein Einfluss erkannt werden, wobei davon ausgegangen wird, dass der Effekt indirekter Art ist und nicht auf die Cooper-Paarung durch Elektronen-Phononen-Wechselwirkung hindeutet.

[17] Zum Beispiel über die Flussquantisierung in einem supraleitendem Ring, Josephson-Kontakt-Messungen oder bei Kernspinresonanz-Messungen (NMR) [BDPS90].

[18] Bis mindestens $N \leq 3$ (Details siehe [StMP90]).

[19] Abhängig von der umgebenden Kristallstruktur kann die Schicht auch leicht uneben sein.

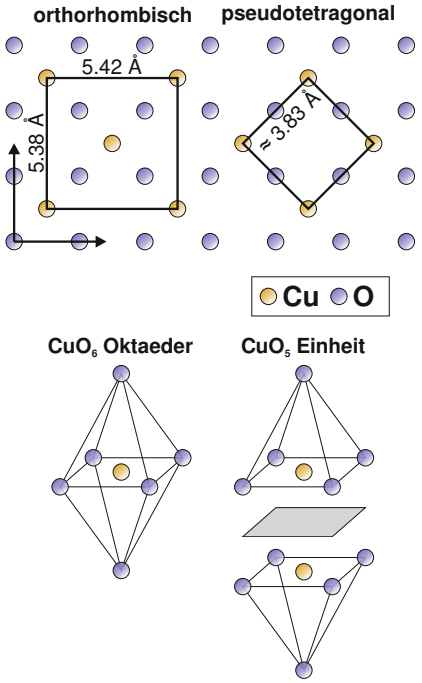


Abbildung 2.8: Bi2212 - Die orthorhombische und pseudotetragonale Einheitszelle in der Cu-O-Ebene. Darunter die CuO_6-Oktaeder und CuO_5-Einheit.

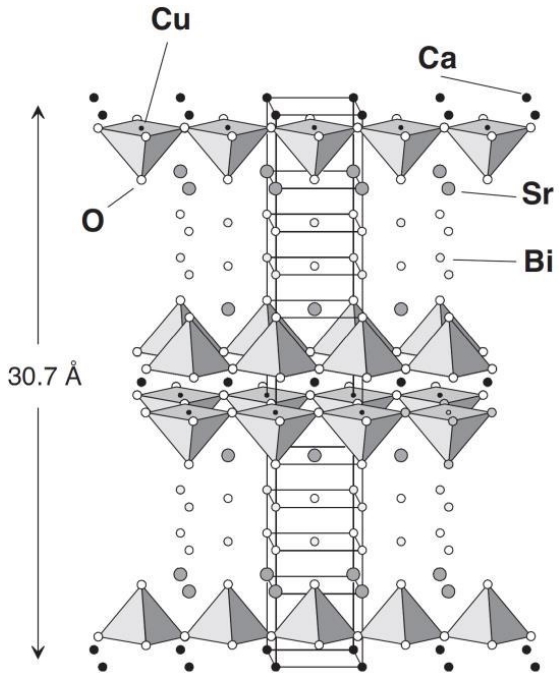


Abbildung 2.9: Kristallstruktur von Bi2212 entnommen aus [BuKl12].

Da jedoch die elektronische Struktur der Kuprat-Hochtemperatursupraleiter quasi-zweidimensional ist, mit nur leichter Dispersion entlang der Γ-Z-Richtung, wird für die Diskussion von Messungen üblicherweise zur zweidimensionalen Projektion übergegangen, wie in Abbildung 2.10 rechts gezeigt.

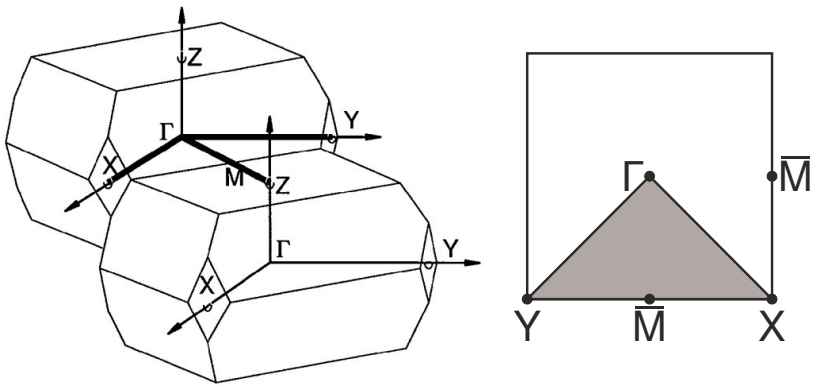


Abbildung 2.10: Pseudo-tetragonale Brillouinzone von Bi2212 im erweiterten Zonenschema, entnommen aus [BaLi99]. Daneben die üblicherweise verwendete zweidimensional–projizierte Brillouinzone (der graue Bereich markiert die kleinste Symmetrie-Einheit). Die Cu-O-Verbindungslinien in der CuO_2-Ebene liegen parallel zu den Seiten des Quadrats.

2.2.2 Elektronische Struktur und makroskopische Supraleitung

Spricht man von Kupraten als Hochtemperatursupraleitern müssen Elektronen-Akzeptoren - im Fall von Bi2212 üblicherweise Sauerstoffatome - in die zwischen den CuO_2-Ebenen liegenden Schichten implantiert sein (p-Dotiert oder engl. hole-doped). Dabei entziehen die zusätzlichen Sauerstoffatome die Elektronen im Wesentlichen aus den CuO_2-Ebenen. Angegeben wird die Dotierung durch das δ in der chemischen Zusammensetzung

($Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$).[20] Der Zusammenhang zwischen p-Dotierung und der Sprungtemperatur (T_c) lässt sich für Kuprat-Hochtemperatursupraleiter mit einer universellen Kurve nach [PTBL91] beschreiben:

$$\frac{T_c}{T_{c,max}} = 1 - 82.6 \times (\delta - 0.16)^2 \tag{2.8}$$

Wobei $T_{c,max}$ die maximale Sprungtemperatur der jeweiligen Verbindung ist. Die Supraleitung setzt bei einer p-Dotierung von ca. 0.05 ein und erreicht die maximale Sprungtemperatur bei $\delta = 0.16$ (optimal dotiert – *optimally doped*). Danach fällt die Sprungtemperatur wieder ab, bis bei einer kritischen p-Dotierung von ca. 0.27 keine Supraleitung mehr nachzuweisen ist. Die Form der dadurch beschriebenen supraleitenden Kuppel (*superconducting dome*), wie im Phasendiagramm in Abbildung 2.11 links gezeigt, hängt demnach ausschließlich von der maximalen Sprungtemperatur der Verbindung ab. Dadurch ist es möglich, die p-Dotierung über RT-Messungen (Widerstand gegen Temperatur) zu bestimmen [PTBL91].

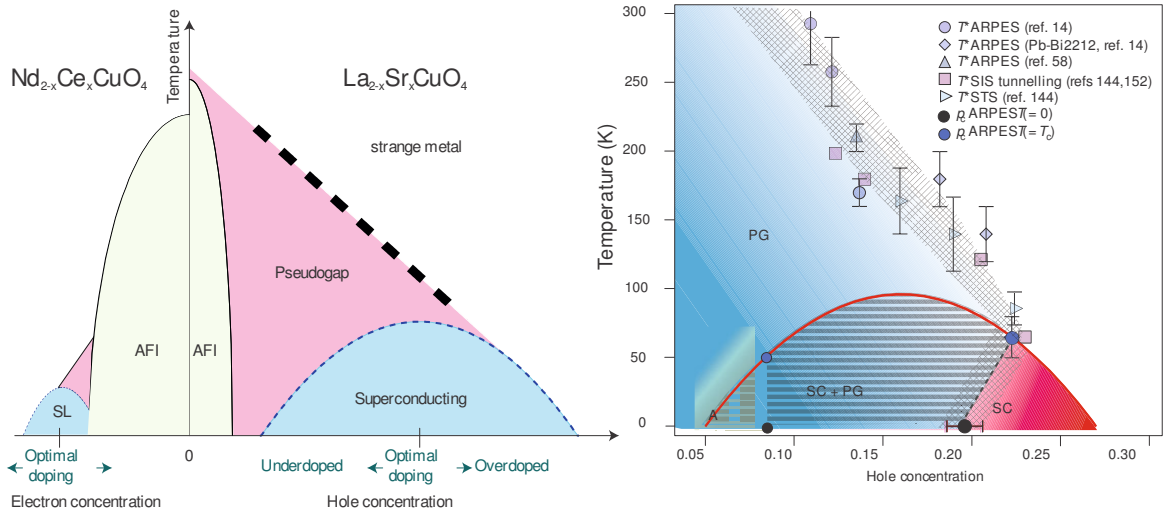


Abbildung 2.11: Links) Ein schematisches Phasendiagramm für e- und p-dotierte Kuprat-Hochtemperatursupraleiter (AFI: antiferromagnetischer Isolator). Rechts) Vorgeschlagenes Phasendiagramm für Bi2212, welches aus experimentellen Daten gewonnen wurde. Die supraleitende Kuppel ist nochmal in drei Bereiche unterteilt. Im grünen Bereich ist die Energielücke vollständig ausgeprägt, im blau-schattierten Bereich existieren der Pseudogap und die Supraleitung nebeneinander, wohingegen im roten Bereich kein Pseudogap mehr vorhanden ist. Vorlagen entnommen aus [HVHD14].

Neben den durch p-Dotierung supraleitend werdenden Kuprat-Hochtemperatursupraleitern wurden auch solche entdeckt, die beim Einbringen zusätzlicher Elektronen in die CuO_2-Ebenen (e-Dotierung) Supraleitung zeigen. Ein Beispiel für einen solchen Supraleiter ist $(Nd_{1-\delta}Ce_\delta)_2CuO_4$, welcher bei $\delta = 0.08$ die maximale Sprungtemperatur von circa 25 K erreicht. Das Phasendiagramm für vergleichbare Kristallstrukturen ist dabei asymmetrisch bezüglich Elektronen- und Lochdotierung (siehe Abbildung 2.11 links). Eine weitgehend anerkannte Erklärung für dieses Verhalten wurde noch nicht gefunden.

Ohne oder bei geringer Dotierung handelt es sich bei Kupraten bei niedrigen Temperaturen (unterhalb der Néel-Temperatur[21]) hingegen um antiferromagnetische Isolatoren (Mott-

[20] Der Überschuss-Sauerstoffgehalt δ entspricht dabei gerade δ Löchern pro Cu-Ion.
[21] Temperatur oberhalb der ein antiferromagnetischer Stoff paramagnetisch wird.

Isolatoren, oder präziser: Ladungstransfer-Isolatoren), wie ebenfalls in Abbildung 2.11 links gezeigt.

Zwischen der supraleitenden Phase und dem Verhalten als antiferromagnetischer Isolator liegt die sogenannte Pseudo Energielücke (*Pseudogap*), welche in 2.2.2.2 *Makroskopische Eigenschaften der supraleitenden Phase* noch genauer beschrieben wird.

2.2.2.1 Makroskopische elektrische Eigenschaften

Die makroskopischen elektrischen Eigenschaften sowie alle wesentlichen Ladungstransferprozesse (eingeschlossen der Hochtemperatursupraleitung) werden von den Zuständen bzw. Energiebändern mit der niedrigsten Bindungsenergie bestimmt. Dies sind bei Kupraten die Cu-O-Energiebänder, was beispielsweise aus LDA[22]-Bandstrukturrechnungen bekannt ist (siehe Abbildung 2.12). Dabei kann ebenfalls die quasi-zweidimensionale Physik der Kuprat-Hochtemperatursupraleiter erkannt werden, da die Dispersion hauptsächlich parallel zur CuO_2-Ebene stattfindet, wohingegen senkrecht dazu (Γ-Z-Richtung) kaum Dispersion zu erkennen ist.

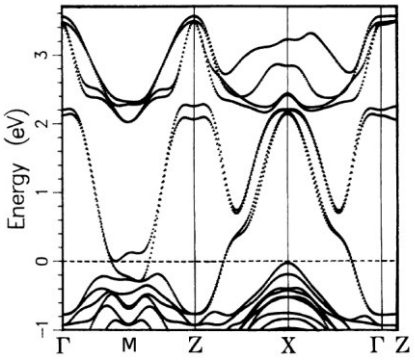


Abbildung 2.12: Bandstrukturrechnung (LDA) für Bi2212 von [KrPi88]. Bänder, welche das Fermilevel (gestrichelte Linie) durchkreuzen, indizieren ein leitendes Metall.

Alternativ kann die Entstehung der Cu-O-Bänder auch mit einem Clustermodell, in welchem lokalisierte Wellenfunktionen der einzelnen Atome betrachtet werden, für die CuO_2-Ebenen beschrieben werden. Dabei wird im einfachsten Fall[23] angenommen, dass ein Kupfer-Ion Cu^{2+} ($3d^9$-Konfiguration mit nicht ganz abgeschlossener Schale) von einem Oktaeder aus Sauerstoff-Ionen O^{2-} ($2p^6$-Konfiguration mit abgeschlossener Schale) umgeben ist, wie in Abbildung 2.8 gezeigt. Von den fünf verschiedenen d-Orbitalen des Kupfers zeigen das $d_{x^2-y^2}$-Orbital und das $d_{z^2-r^2}$-Orbital direkt in Richtung von p_x- und p_y- bzw. p_z-Orbitalen der Sauerstoffatome, wodurch die Elektronen in diesen Orbitalen mehr Zeit in der Nähe der Sauerstoffatome verbringen bzw. dadurch hybridisieren (stärker als die d_{xy}, d_{xz} oder d_{yz}-Orbitale). Dadurch spaltet sich das entartete Cu $3d^9$-Energieniveau in zwei Energieniveaus auf, die als e_g und t_{2g} bezeichnet werden (siehe Abbildung 2.13). Da der CuO_6-Oktaeder in z-Richtung (senkrecht zur CuO_2-Ebene) gestreckt ist, wird deren Energieentartung weiter durch die Jahn-Teller-Verzerrung des Oktaeders aufgehoben. Die am stärksten überlappenden bzw. hybridisierenden Orbitale - O $2p_x/p_y$ und Cu $3d_{x^2+y^2}$ - können mit der Molekülorbitaltheorie berechnet werden. Dabei ist das halbgefüllte, antibindende σ*-Orbital (Hybrid aus O $2p_x/p_y$ und Cu $3d_{x^2+y^2}$) das oberste besetzte Energieband in den Kupraten.

[22] LDA: lokale Dichtenäherung (*local-density approximation*).
[23] Ionische Bindung (Stichwort: Elektronegativität).

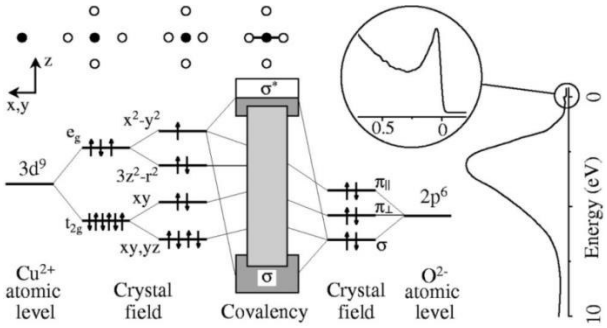


Abbildung 2.13: Links) Im Kristallfeld kubisch angeordneter O^{2}-Ionen spaltet sich das Cu $3d^{9}$-Niveau in zwei Niveaus (e_g und t_{2g}) auf, deren Energieentartung wiederum durch die Jahn-Teller-Verzerrung[24] des Oktaeders aufgehoben wird. Der Zustand niedrigster Bindungsenergie geht aus der Hybridisierung von Cu $3d_{x^2-y^2}$- und O $2p_x/p_y$-Orbitalen hervor.

Rechts) Ein typisches Kuprat-Energiespektrum von LSCO. Der Kreis markiert den niedrigen Energiebereich, in dem sich die relevante Physik bei Kuprat-Supraleitern hauptsächlich abspielt.

Entnommen aus [Dama03, FNRF89].

Damit sollten Kuprat-Hochtemperatursupraleiter sowohl nach LDA-Rechnungen als auch nach dem Clustermodell ohne Dotierung metallisch sein. Es wird stattdessen jedoch ein isolierendes Verhalten beobachtet. Um dieses Verhalten von Kuprat-Hochtemperatursupraleitern bzw. halbgefüllter CuO_2-Ebene zu verstehen, muss die Wechselwirkung der Elektronen untereinander genauer betrachtet werden. Dies erfolgt im Rahmen eines Mott-Isolator-Bildes (nach [ShDe95]):

Um einen elektrischen Strom leiten zu können, müssen die Elektronen im Festkörper beweglich sein, sich also von Gitterplatz zu Gitterplatz bewegen können. Befinden sich zwei Elektronen gleichzeitig am selben Gitterplatz, kostet dies aufgrund der Coulomb-Abstoßung ~1/r eine Energie U. Diese Energie ist für zwei Elektronen im Cu $3d_{x^2-y^2}$-Orbital aufgrund der geringen räumlichen Ausdehnung besonders groß, wodurch eine Doppelbesetzung faktisch ausgeschlossen ist. Anders ausgedrückt ist die kinetische Energie, sprich die Bandbreite W, zu klein, welche normalerweise die Coulomb-Abstoßung abschirmt (sog. *screening)*. Ein solches System (W < U) wird als Mott-Hubbard-Isolator bezeichnet. Dabei spaltet sich das Band auf in ein unteres Hubbard-Band mit nur einem Elektron am Gitterplatz und ein oberes Hubbard-Band mit Doppelbesetzung am Gitterplatz, wobei die Bänder unter- und oberhalb der Fermienergie liegen (siehe Abbildung 2.14 (a) und (b)).

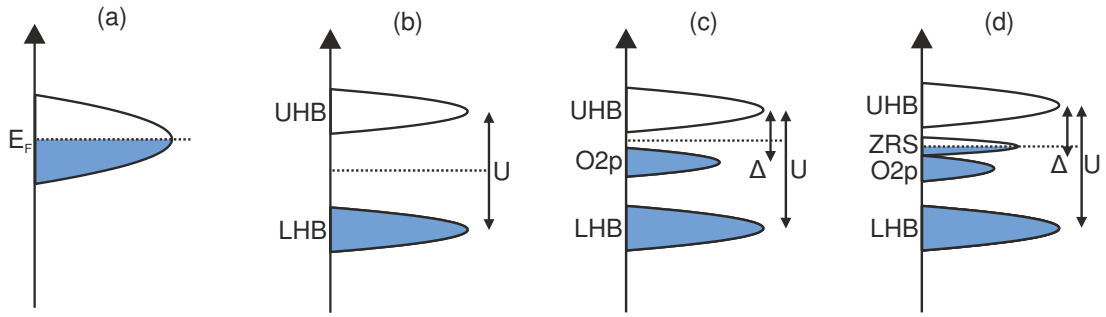


Abbildung 2.14: a) Energieband ohne Berücksichtigung der Wechselwirkung der Elektronen untereinander. b) Aufspaltung in das obere (*upper*) und untere (*lower*) Hubbard-Band. c) Das O2p-Band befindet sich zwischen den beiden Hubbard-Bändern. d) Durch die p-Dotierung bildet sich das ZRS-Band (*Zhang-Rice-State*) und die Fermienergie verschiebt sich.

[24] Jahn-Teller-Theorem: Jedes nicht-lineare Molekülsystem ist in einem entarteten elektronischen Zustand instabil und spaltet den entarteten Zustand durch Erniedrigung der Symmetrie auf.

Quantitativ lässt sich dieses Modell mit dem Hubbard-Hamilton-Operator [Hubb55] beschreiben:

$$\hat{H} = -t \sum_{i,j,\sigma} \hat{a}_{i,\sigma}^{\dagger} \hat{a}_{j,\sigma} + U \sum_{i} \hat{n}_{i+} \hat{n}_{i-} \tag{2.9}$$

Dabei sind $\hat{a}_{i,\sigma}^{\dagger}$und $\hat{a}_{i,\sigma}$ die Erzeugungs- und Vernichtungsoperatoren für ein Elektron mit Spin σ an einem Gitterplatz (i). $\hat{n}_{i\sigma} = \hat{a}_{i,\sigma}^{\dagger} \hat{a}_{j,\sigma}$ sind die entsprechenden Besetzungszahloperatoren. Das Transfer- oder *hopping*-Integral wird mit t angegeben (siehe Abbildung 2.15).

Der angegebene Hamilton-Operator beschreibt ein Einband-Hubbard-Modell, in dem nur Cu 3d-Elektronen auf einem Quadratgitter berücksichtigt wurden. Wie man allerdings bereits im Clustermodell gesehen hat, wird die Situation durch die Sauerstoffatome komplizierter, da die O 2p-Elektronen energetisch nahe an der Fermienergie bzw. zwischen dem unteren und oberen Hubbard-Band liegen (siehe Abbildung 2.14 (c)). Somit ist der Transfer von einem Sauerstoff-Ion zu einem Kupfer-Ion günstig und wird mit einer Energie Δ beschrieben. Eine realistische Beschreibung für Kuprat-Hochtemperatursupraleiter ist daher das Dreiband-Hubbard-Modell, in welchem der Hamilton-Operator mit zusätzlichen Transfertermen für die O $2p_x$- und O $2p_y$-Plätze sowie Mischungen zwischen Cu $2p_{x^2-y^2}$- und O $2p_x$- bzw. O $2p_y$-Plätzen, analog zum ersten Term in Gleichung (2.9), erweitert wird.

Ein alternatives und sehr weit verbreitetes Modell für dem Fall, dass U ≫ t ist, ist das sogenannte t-J-Modell, bei dem eine Doppelbesetzung am Gitterplatz ausgeschlossen wird und der Coulomb-Abstoßungs-Term im Einband-Hubbard-Hamilton durch Spinoperatoren ersetzt wird:

$$\hat{H} = -t \sum_{i,j,\sigma} \hat{a}_{i,\sigma}^{\dagger} \hat{a}_{j,\sigma} + J \sum_{i,j} \hat{S}_i \hat{S}_j \tag{2.10}$$

Dabei ist $J = 4t^2/U$ und $\hat{S}_i$ der Spinoperator. Im Rahmen dieses Modells wurde von Zhang und Rice [ZhRi88] gezeigt, dass der energetisch niedrigste Zustand, der durch das Entfernen eines Elektrons, entweder durch Photoemission oder analog durch p-Dotierung, aus dem N-Elektronensystem der CuO_2-Ebene entsteht, ein auf den vier Sauerstoff-Plätzen um einen Kupfer-Platz superpositioniertes Loch ist, welches an das Kupfer-Ion koppelt (siehe Abbildung 2.15). Durch diese Verteilung auf vier Sauerstoff-Plätze werden die Coulomb-Abstoßung und die kinetische Energie reduziert, wodurch die Konfiguration, das sogenannte *Zhang-Rice-Singulett* (ZRS), stabil wird. Die Bewegung eines ZRS durch das Kristallgitter kann so wieder mit einem Einband-Hamilton-Operator mit effektivem Transfer-Integral beschreiben werden.

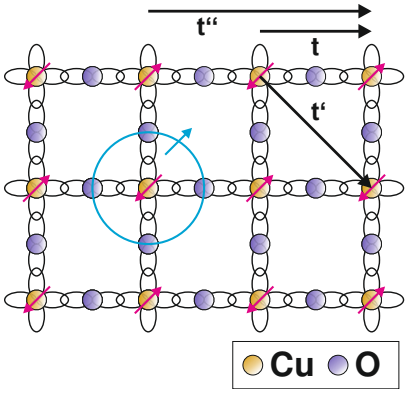


Abbildung 2.15: CuO_4-Einheiten formen die CuO_2-Ebenen. Dabei überlappen bzw. hyperdisieren die Cu $3d_{x^2-y^2}$- und die O $2p_{x,y}$-Orbitale.

Die Spins der Cu-Ionen (Rot) ordnen sich antiferromagnetisch an und zeigen diagonal entlang der Brillouin-Zone. Ein zusätzlich eingebrachtes Loch koppelt an ein Kupfer-Ion und es bildet sich ein Zhang-Rice-Singulet (Blau).

Die verschiedenen Transferterme t, t' und t'' sind mit schwarzen Pfeilen angedeutet.

Beim Vergleich mit experimentellen Daten hat sich allerdings gezeigt, dass das Einband t-J-Modell nicht die beobachteten runden Ecken der Fermifläche wiedergibt. Gelöst werden kann dieses Problem durch das Einbeziehen weiterer effektiver Transferterme wie in Abbildung 2.15 gezeigt. Das Leitungsband lässt sich dann mit einem Tight-Binding-Modell nach [MSLL05] ausdrücken:

$$\mathrm{E}_{\parallel}(\mathbf{k}_{\parallel}) = -2\mathrm{t}\left[\mathrm{c}_x(a) + \mathrm{c}_y(a)\right] - 4t'\mathrm{c}_x(a)\mathrm{c}_y(a) - 2t''\left[\mathrm{c}_x(2a) + \mathrm{c}_y(2a)\right] - 4t'''\left[\mathrm{c}_x(2a)\mathrm{c}_y(a) + \mathrm{c}_y(2a)\mathrm{c}_x(a)\right] \qquad (2.11)$$

Mit $c_i(\alpha a) \equiv \cos(\alpha k_i a)$, der Gitterkonstanten a und t bis t‘‘‘ den effektiven Transfertermen. Ein damit berechnetes Leitungsband für Bi2212 ist in Abbildung 2.16 gezeigt. Bei winkelaufgelösten Photoemissions-Messungen (ARPES - *Angle-resolved photoemission spectroscopy*) der Fermifläche, lässt sich unmittelbar die p-Dotierung der Proben bestimmen.

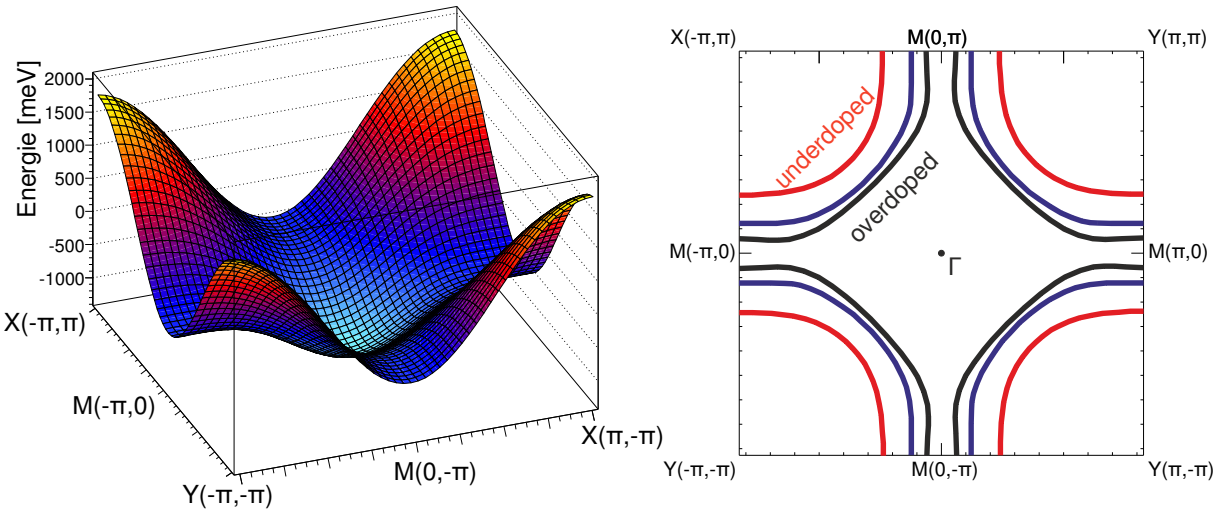


Abbildung 2.16: Das Leitungsband aus einem Tight-Binding-Modell nach XY für Bi2212 (t = 360 meV, t‘ = -100 meV, t‘‘ = 35 meV, t‘‘‘ = 10 meV aus [MSLL05]). Beim Dotieren verschiebt sich das Fermilevel, wodurch es möglich ist, die Dotierung direkt bei ARPES-Messungen festzustellen.

Die elektrische Leitfähigkeit beim Dotieren von Kupraten kommt nun dadurch zustande, dass das Fermilevel beim Dotieren entweder abgesenkt (p-Dotierung) oder angehoben (e-Dotierung) wird, wie in Abbildung 2.14 gezeigt.

2.2.2.2 Makroskopische Eigenschaften der supraleitenden Phase

Die makroskopischen Eigenschaften der supraleitenden Phase von Kuprat-Hochtemperatursupraleitern lassen sich als die eines extremen Typ-II-Supraleiters klassifizieren (Ginzburg-Landau-Parameter: $\lambda_{L,\parallel}/\xi_{0,\parallel}$ = 2500 Å / 20 Å ≫ 1/√2), wobei sich die Schichtstruktur des Kristallgitters in einer starken Anisotropie für die Kohärenzlänge und die Eindringtiefe zwischen paralleler und senkrechter Richtung zu den CuO_2-Ebenen wiederspiegelt (siehe Tabelle 2.1).

Für die supraleitenden Ladungsträger konnte experimentell[25], wie bei konventionellen Supraleitern, der Wert |q| = 2e bestimmt werden. Diese werden auch weiterhin als *Cooper-*

[25] Entweder durch das Messen der magnetischen Flussquantisierung im supraleitenden Ring oder bei Josephson-Kontakt-Messungen.

	Bi-2212	Y123	Blei
Verbindung	$BiSr_2CaCu_2O_{8-\delta}$	$YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$	Pb
Sprungtemperatur T_C	94 K (dünner Film 80 K)	93 K	7.2 K
Supraleiter	Typ-II	Typ-II	Typ-I
Energielücke (Gap)	30 meV	20 – 30 meV	2.73 meV
Gitterkonstante	3.83 Å (ab), 30.7 Å (c)	3.9 Å (ab), 27.2 Å (c)	4.951 Å
Kohärenzlänge ξ_0	2 nm (ab), 0.1 nm (c)	1.6 nm (ab), 0.3 nm (c)	41 – 83 nm
Eindringtiefe λ_L (T = 0K)	200-300 nm (ab), 15-150 µm (c)	150 nm (ab), 0.8 µm (c)<	32 – 44 nm
Kritisches Magnetfeld	$H_{C2,c}$ > 60 T $H_{C2,ac}$ > 250 T	$H_{C2,c}$ = 110 T, $H_{C2,ac}$ = 240 T	H_{C1} = 0.08 T

Tabelle 2.1: Parameter von den beiden Kuprat-Hochtemperatursupraleitern Bi2212 und Y123. Zum Vergleich sind auch die Parameter von Blei (konventioneller Supraleiter) angegeben. Quellen: [ABPS99, BuKl12, IORT98, LyOl05].

Paare bezeichnet, was allerdings einen anderen Paarungs-Mechanismus als in der BCS-Theorie nicht ausschließt. Die Paarwellenfunktion (Ψ_0) aller Cooper-Paare im Impulsraum (**k**-Raum) hingegen unterscheidet sich stark von der isotropen Verteilung, wie man sie bei konventionellen Supraleitern (s-Wellensymmetrie) vorfindet. Dies bedeutet einen endlichen Drehimpuls L. Dieser muss bei der beobachteten Spin-Singulett-Paarung[26] (S = 0) geradzahlig sein, um eine antisymmetrische Wellenfunktion zu erhalten, welche das Vorzeichen beim Vertauschen von zwei Elektronen wechselt. Der niedrigste mögliche Drehimpuls L = 2 ist dabei bei Kuprat-Hochtemperatursupraleitern zu beobachten, wobei der Entartungsgrad (m_z = $-2\hbar$ bis $+2\hbar$) wie bei freien Atomen im elektrische Feld des Kristalls aufgehoben wird. In Abbildung 2.17 links ist die zu beobachtende Paarwellenfunktion ($d_{x^2-y^2}$-Wellensymmetrie) gezeigt.

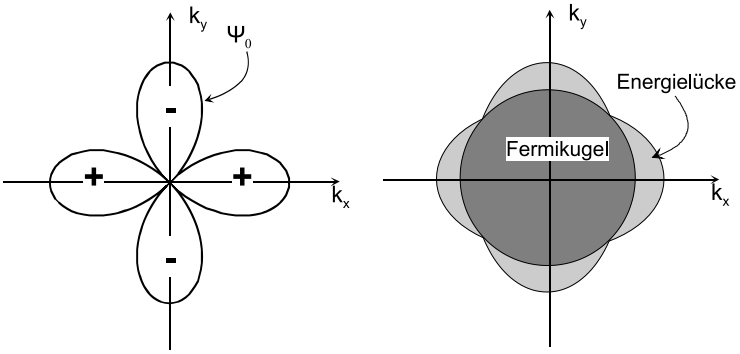


Abbildung 2.17: Unkonventioneller Supraleiter mit $d_{x^2-y^2}$-Paarwellen-Symmetrie. Links) Amplitude der Paarwellenfunktion im Impulsraum (Vorzeichen der Wellenfunktion ist explizit eingetragen). Rechts) Größe der Energielücke.

Entnommen aus [BuKl12].

Diese $d_{x^2-y^2}$-Wellensymmetrie konnte experimentell sowohl mit Hilfe der Kernspinresonanz als auch bei Josephson-Kontakt-Messungen bestimmt werden. Eine weitere sehr direkte Methode bietet die winkelaufgelöste Photoelektronenspektroskopie (ARPES), bei der allerdings nur der Betrag der Paarwellenfunktion bzw. die Energielücke gemessen werden kann ($\Delta_0 \propto |\Psi_0|$). In Abbildung 2.18 ist eine entsprechende experimentelle Messung gezeigt.

[26] Der Spin der supraleitenden Ladungsträger kann mit Hilfe von Kernspinresonanz-Messungen ermittelt werden (Kuprat-Hochtemperatursupraleitern S = 0). Nur wenige bekannte Materialien zeigen dabei eine Spin-Triplett-Paarung (superfluider ^{3}He sowie einige Verbindungen wie beispielsweise Sr_2RuO_4).

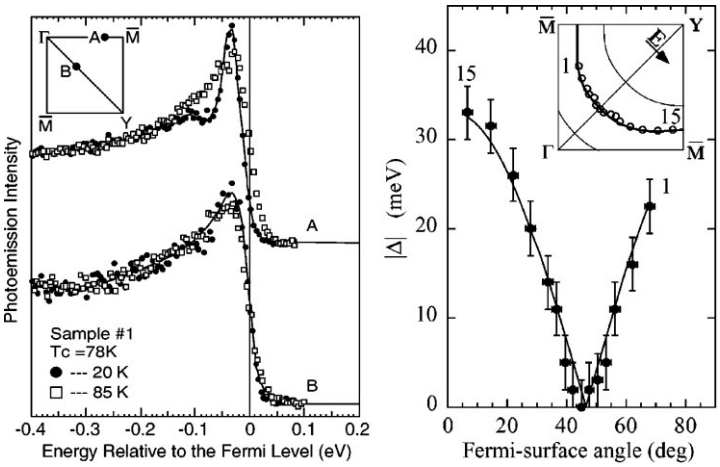


Abbildung 2.18: Links) Das Energiespektrum einer Bi2212-Probe ist an zwei Punkten im Impulsraum (siehe Inlet) überhalb und unterhalb der Sprungtemperatur gezeigt. Dabei ist bei A eine Energieverschiebung bzw. Energielücke deutlich zu erkennen. Entnommen aus [SDWK93].

Rechts) Die Größe dieser Energielücke ist entlang der Fermi-Fläche (siehe Inlet) geplottet. Dabei ist klar eine d-Wellen-Symmetrie (Fit) zu beobachten. Entnommen aus [DBCR96].

Die Energielücke oder das Betragsquadrat der Wellenfunktion können als Dichte der Cooper-Paare verstanden werden. Ein Verschwinden dieser Dichte für bestimmte Werte im Impulsraum (k_x,k_y) bedeutet, dass sich Cooper-Paare in bestimmte Kristallrichtungen nicht bewegen können (Γ-Y zeigt diagonal zu den Cu-O-Bindungen).

Die resultierende Quasiteilchen-Zustandsdichte für eine $d_{x^2-y^2}$-Wellensymmetrie ist in Abbildung 2.19 gezeigt (vergleiche Abbildung 2.6 links, auf Seite 12). Dabei wächst $N_s(E)$ bereits ab der Fermienergie linear an, divergiert bei $(E-E_F)=\Delta_{max}$ und nähert sich rasch dem Wert $N_n(E_F)$ des Normalzustands an.

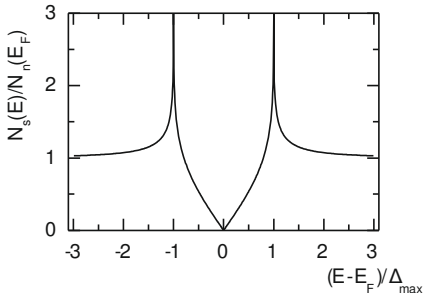


Abbildung 2.19: Quasiteilchen-Zustandsdichte $N_s(E)$ für einen unkonventionellen Supraleiter mit einer $d_{x^2-y^2}$-Symmetrie Paarwellenfunktion. Entnommen aus [BuKl12].

Neben der Energielücke im supraleitenden Zustand wurde bei Kuprat-Hochtemperatursupraleitern eine weitere Energielücke entdeckt, der sogenannte Pseudogap, welcher schon vor dem Unterschreiten der Sprungtemperatur auftritt (siehe Phasendiagramm in Abbildung 2.11 auf Seite 16). Für diesen Pseudogap konnte mit Hilfe von ARPES-Messungen [HSWM96] die gleiche $d_{x^2-y^2}$-Wellensymmetrie wie bei der supraleitenden Energielücke nachgewiesen werden.

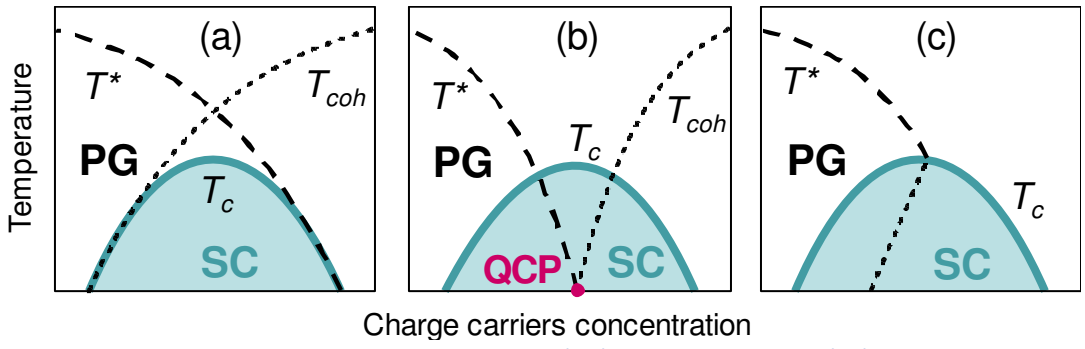


Abbildung 2.20: Zusammenhang zwischen Pseudogap (PG) und Supraleitung (SC) im Temperatur-Doping-Phasendiagramm (Idealisiert), für drei idealisierte Theorieansätze. T_c, T^* und T_{coh} zeigen den Phasenübergang zur Supraleitung, die Crossover zum Pseudogap und die kohärenten Zuständen. Entnommen aus [Kord15].

Der Ursprung des Pseudogap ist nach wie vor ungeklärt, jedoch lassen sich die Modelle im Wesentlichen in zwei Erklärungsansätze unterteilen:

Ein Erklärungsansatz sieht im Pseudogap eine direkte Vorstufe zur supraleitenden Energielücke, in welcher Cooper-Paare zwar geformt werden, aufgrund von thermischen Fluktuationen jedoch nicht in der Lage sind, eine kohärente makroskopische Phase aufzubauen (sog. *preformed pairs scenario*). Ein sich dafür ergebendes idealisiertes Phasendiagramm ist in Abbildung 2.20 (a) gezeigt.

Der andere Erklärungsansatz sieht den Pseudogap hingegen als Resultat einer mit der Supraleitung konkurrierenden Ordnung (sog. *competing order*). Eine Klasse von Modellen geht dabei von einem Fermi-Flüssigkeits-Modell mit starker Wechselwirkungen aus, in dem Spin- oder Ladungs-Fluktuationen in der Nähe eines quantenkritischen Punkts (QKP), welcher im Inneren der supraleitenden Kuppel verborgen ist, das Phasendiagramm bestimmt, wie in Abbildung 2.20 (b) gezeigt. Dabei handelt es sich im Gegensatz zu konventionellen Phasenübergängen, welche durch Variation oder Fluktuationen der Temperatur getrieben werden, um Änderungen der makroskopischen Ordnung am absoluten Nullpunkt aufgrund von Quantenfluktuationen innerhalb der Heisenbergschen Unschärferelation. Zu diesen Quantenfluktuationen gibt es kein Analogon im Rahmen klassischer Phasenübergänge. Auch ist zu beachten, dass diese Zustände durch quantenmechanische Wellenfunktionen beschrieben werden und sich dadurch fundamental von thermischen Fluktuationen unterscheiden. In Abbildung 2.21 ist ein typisches schematisches Phasendiagramm mit einem QKP gezeigt.

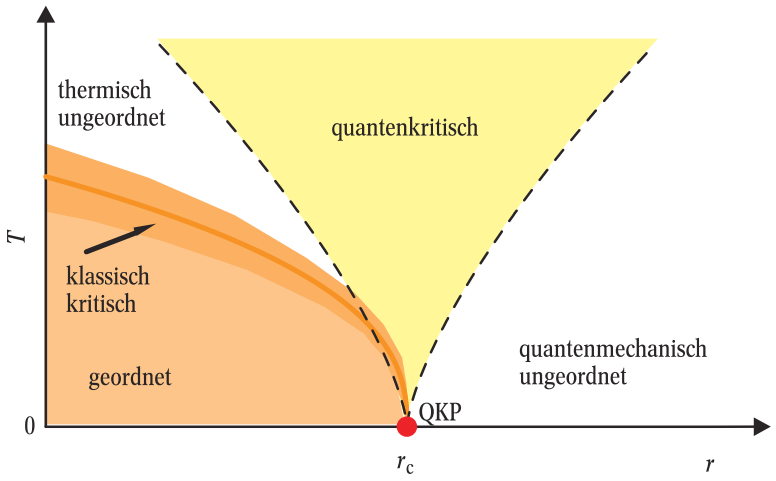


Abbildung 2.21: Schematisches Phasendiagramm in der Umgebung eines quantenkritischen Punktes (QKP), sofern eine makroskopische Ordnung auch bei endlichen Temperaturen existiert. Vorlage entnommen aus [Vojt02].

Auf der horizontalen Achse ist der den Quantenübergang steuernde Parameter aufgetragen, was im Fall von Kuprat-Hochtemperatursupraleitern die Dotierung δ ist. Die orangene Linie zeigt einen klassischen Phasenübergang, umgeben von thermischen Fluktuationen, wohingegen die gestrichelten Linien, ausgehend vom quantenkritischen Punkt, die *Crossover* zum quantenkritischen Bereich zeigen, in dem Konkurrenz zwischen thermischen Fluktuationen und Quantenfluktuationen herrscht. Bei einem *Crossover* handelt es sich allerdings nicht um einen scharfen, sondern um einen allmählichen Übergang (bei $k_B T \approx \hbar\omega_c(r)$). Für einen Kuprat-Hochtemperatursupraleiter entspräche die geordnete Phase dem sogenannten Pseudogap, die quantenkritische Phase dem Verhalten als seltsames

Metall[27] und die quantenmechanisch ungeordnete Phase der als Fermiflüssigkeit. Supraleitung selbst wird als supraleitende Kuppel, vergleichbar mit Abbildung 2.11, als eigene Phase ergänzt (Details siehe [NoPé03]).

Die Existenz eines quantenkritischen Punkts wird allerdings nicht von allen Modellen vorausgesetzt, z.B. Modellen mit Spin-Ladungs-Trennung (sog. *Stripes*) sowie Ladungsdichtewellen- (*Charge density wave* - CDW) oder Spindichtewellen-Ansätzen (*Spin density wave* - SDW), deren entsprechendes Phasendiagramm in Abbildung 2.20 (c) gezeigt ist.

Statt eines einzelnen Erklärungsansatzes bzw. Modells wird seit kurzem zunehmend in Betracht gezogen, dass mehrere miteinander verwobene Modelle (Ladungs- und Spin-Dichtewellen sowie auch *Preformed Pairs*) zur Erklärung des Pseudogap nötig sind. Eine aktuelle Übersicht zu diesem Thema findet sich in dem Artikel von A. Kordyuk [Kord15].

2.2.3 Unkonventionelle Supraleitung

Bei der mikroskopischen Beschreibung der Hochtemperatursupraleitung, speziell bei Kuprat-Hochtemperatursupraleitern, ist eine nur schwer zu systematisierende Bandbreite von Theorien und unterschiedlichen Konzepten entstanden. Um einen Eindruck davon zu bekommen, sind in Tabelle 2.2 einige dieser Theorien und Konzepte aufgelistet.

Anisotropic phonons	*Flux phases*	*Slave bosons*
Anyon superconductivity	*Gossamer superconductivity*	*Small q phonons*
BCS/BEC crossover	*Interlayer Coulomb*	*SO(5)*
Bipolarons	*Interlayer tunneling*	*Spin bags*
Charge fluctuations	*Kinetic Energy lowering*	*Spin fluctuations*
competing phases	*Marginal Fermi liquid*	*Spin liquids*
d-density wave	*Plasmons*	*Stripes*
Dynamical mean field theory	*Quantum critical points*	*van Hove singularities*
Excitons	*Resonating valence bonds*	

Tabelle 2.2: Möglichst vollständige Auflistung der mit Kuprat-Hochtemperatursupraleitung verbundenen Theorien und Konzepte.

Einige der verschiedenen Theorien können beispielsweise nach den ihnen zugrundeliegenden Kopplungsmechanismen (Elektron-Phonon- oder Elektron-Elektron-Kopplung) sowie dem Festkörpermodell (Fermi-Flüssigkeits-Modell oder kein Fermi-Flüssigkeits-Modell) unterteilt werden, wie in Abbildung 2.22 gezeigt.

Anschauliche Beschreibungen für den mikroskopischen Mechanismus der Hochtemperatursupraleitung sind bisher für die meisten Theorien kaum vorhanden. Es sollen an dieser Stelle daher nur einige der wichtigsten Ideen bzw. Ansätze zur theoretischen Beschreibung der Hochtemperatursupraleitung in Kupraten beleuchtet werden. Einer der am häufigsten anzutreffenden Ansätze ist es, die Hochtemperatursupraleitung aus dem Hubbard-Modell (t-J-Modell) heraus erklären zu wollen, statt aus einem Fermi-Flüssigkeits-Modell wie bei der BCS-Theorie.

[27] Der Bereich über der Supraleitung wird oft als seltsames Metall (*strange metal*) oder marginale Fermi-Flüssigkeit (*marginal fermi liquid*) bezeichnet. Das Verhalten in diesem Bereich ist ebenso wie die Hochtemperatursupraleitung noch nicht mikroskopisch verstanden und Gegenstand aktueller Forschung (siehe beispielsweise [Ande06]). Die charakterisierende Eigenschaft dieser Phase ist eine nahezu lineare Temperaturabhängigkeit des elektrischen Widerstands.

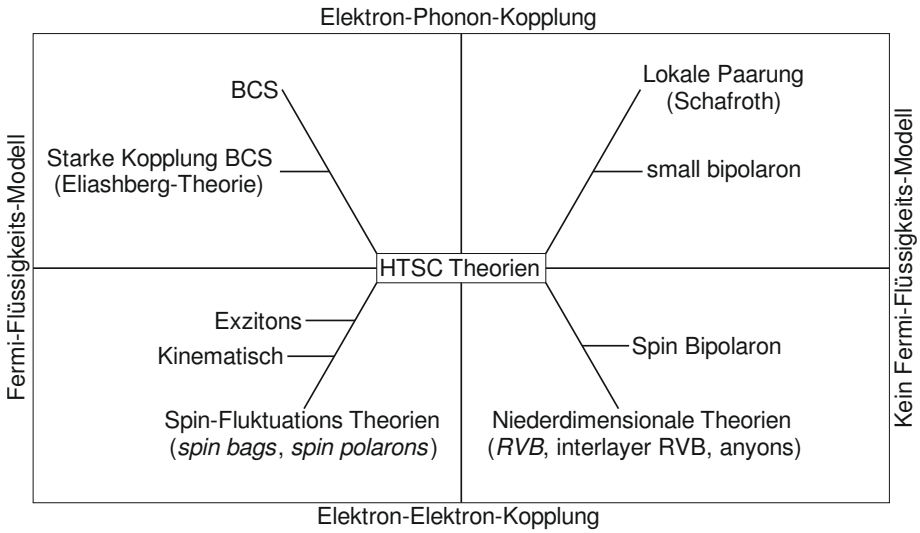


Abbildung 2.22: Verschiede Theorien für die Hochtemperatur-Supraleitung nach [Saxe12].

Eine der wenigen sehr anschaulichen Beschreibungen dazu liefern W. Buckel und R. Kleiner [BuKl12]:

> Bringt man ein Loch in die CuO_2-Ebene ein (p-Dotierung), wird dadurch die antiferromagnetische Wechselwirkungsenergie[28] (antiferromagnetische Ordnung ist favorisiert) zu den vier nächsten Cu-Nachbarn gestört. Ein weiteres Loch hat nun einen energetischen Vorteil wenn es sich auf einem der vier Nachbarplätzte befindet, da auf diese Weise nur die Wechselwirkung zu insgesamt sieben statt ansonsten acht Nachbarn gestört wird. In einem statischen Bild führt dies zu einer Ansammlung nahe benachbarter Löcher, allerdings nicht zu einer gesuchten Paarbildung. Stellt man sich hingegen das erste Loch dynamisch vor, indem benachbarte Elektronen immer auf den unbesetzten Platz hüpfen, erzeugt dies eine Art ferromagnetischer Spur (Elektronen haben auf ihrem neuen Platz die falsche Spin-Orientierung). Folgt ein zweites Loch auf dieser Spur, wird die antiferromagnetische Ordnung wieder hergestellt.

Diese Darstellung liefert zumindest qualitativ eine Vorstellung davon, wie Löcher in den CuO_2-Ebenen zu Paaren korreliert sein könnten. Eine quantitativ anerkannte Erklärung der Hochtemperatursupraleitung auf Basis eines solchen Spin-Fluktuations-Modells konnte bisher aber nicht erbracht werden.

Eine der bekanntesten Theorien, welche in eine ähnliche Richtung geht (aus dem t-J-Hubbard-Modell), ist die *Resonating Valence Bond Theory* (RVB) von P. W. Anderson [Ande87]. Dabei wird im Grundzustand eine Spin-Flüssigkeit beschrieben, in der sich benachbarte Elektronen über eine Valenzbindung zu Spin-Singulett-Paaren zusammenschließen. Die Elektronen senken dabei ihre Energie ab, indem diese Singulett-Paare untereinander in Resonanz stehen, wodurch eine Linearkombination aller möglichen Paar-Konfigurationen entsteht. Als Anregungen dieses Grundzustands werden neutrale *Spinions* (Spin ½) und geladene *Holonen* (ohne Spin) beschrieben, was einem Konzept der Spin-Ladungs-Trennung entspricht. Dabei wechselwirken *Spinions* und *Holonen* über den

[28] Das System gewinnt Energie, wenn sich benachbarte Spins antiparallel einstellen (antiferromagnetisch).

Austausch von Löchern, was als „Supersymmetrie“ bezeichnet wird bzw. die beiden Anregungen als „Superparter“:

$$\underset{[Spinion, Spin\ 1/2\ ]}{Cu_{\sigma}^{2+}} + \underset{[Fermion, Spin\ 1/2\ ]}{Loch} \rightarrow \underset{[Holon, Spin\ 0]}{Cu^{3+}} \qquad (2.12)$$

Supraleitung entsteht in diesem Modell durch die Möglichkeit der Bose-Einstein-Kondensation der Holonen.

Die magnetischen Neutronenstreuungs-Experimente von Tranquada [TAIM97] an LSCO ($La_{2-x}Sr_xCuO_4$) haben Hinweise auf eine tatsächliche Spin-Ladungs-Trennung gezeigt. Bei diesen wurde eine Aufspaltung der Bragg-Peaks (bei **Q**=(±π,±π)) in jeweils vier symmetrische, um den Betrag δ verschobene Peaks beobachtet. Dieses Verhalten könnte mit einer Spin-Ladungs-Trennung auf eindimensionalen Streifen (*Stripes*) im Ortsraum erklärt werden [Oren00]. Ob es jedoch überhaupt eine Verbindung zwischen dieser Streifenbildung und der unkonventionellen Supraleitung (darunter auch RVB Theorie) gibt, ist bisher ungeklärt. Ebenfalls konnten diese Streifen nicht in allen Kuprat-Hochtemperatursupraleitern nachgewiesen werden (darunter auch Bi2212).

Eine weitere Theorie, welche auf noch exotischere Quantenteilchen zurückgreift, ist die *Anyonic Theorie* von K. B. Lyons [LKDE90]. In dieser wird vermutet, dass *Anyonen* für die Supraleitung verantwortlich sein könnten. Dabei handelt es sich um Quantenteilchen, die weder Bosonen noch Fermionen sind und nur in zwei Dimensionen (alternativ masselos) existieren können.

Neben diesen - teils auch sehr exotischen - Theorien wird nach wie vor auch die BCS-Theorie bzw. die für starke Kopplung modifizierten BCS-Theorie-Varianten[29] (wie z.B. von G. M. Eliashberg) bei der Erklärung der mikroskopischen Supraleitung von Kuprat-Hochtemperatursupraleitern herangezogen, meist jedoch in Kombination mit weiteren Wechselwirkungsmechanismen. Eine ausführliche Auflistung der Gegenargumente zur Verwendung der BCS-Theorie bei Kuprat-Hochtemperatursupraleitern ist beispielsweise in [Saxe12] zu finden.

2.2.4 Probenauswahl

In dieser Arbeit ist Bi2212 ($Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$) aufgrund seiner besonderen experimentellen Eigenschaften, welche Bi2212 auch zu dem am häufigsten mit ARPES untersuchten Kuprat-Hochtemperatursupraleitern gemacht haben, die mit Abstand am intensivsten untersuchte Probe:

- Bi2212 besitzt aufgrund der nur schwach durch Van-der-Waals-Kräfte gebundenen Bi-O-Ebene eine natürliche Bruchebene (Details siehe 3.3.2 *Probenpräparation*), welche sich besonders gut für die Messungen eignet:
    - Die Bruchebenen bilden eine geordnete saubere Oberfläche.

[29] Die Gleichungen berücksichtigen vor allem eine Zeitabhängigkeit (Retardierung) der Paarwechselwirkung. Die resultierenden Eliashberg-Gleichungen sind ein System gekoppelter, nichtlinearer Integralgleichungen, die numerisch gelöst werden müssen. Näherungen davon sind beispielsweise die McMillan-Formel für die Sprungtemperatur T_c.

    - Mit einer geordneten Oberfläche steigt die Wahrscheinlichkeit, eine supraleitende Oberfläche zu erhalten.
    - Die Bruchebenen sind entsprechend gut reproduzierbar [LyOl05].
    - Die Oberfläche ist relativ inert gegen die Bedeckung mit Adsorbaten und kann bei dem erreichten Vakuum (< 3 x 10^{-11} mBar) vermutlich für bis zu ca. 24 h für Photoemissions-Messungen genutzt werden [ShDe95].
- Die hohe Sprungtemperatur von ca. 88 K lässt sich mit dem experimentellen Aufbau zuverlässig unterschreiten (< 30 K). Die Energielücke bzw. die Anzahl der Cooper-Paare kann so maximiert werden (siehe Abbildung 2.6 auf Seite 12).
- Hochqualitative Bi2212-Proben sind aufgrund der großen Popularität von Bi2212 in der Festkörperphysik gut verfügbar.
- Die Energielücke ist mit 30 meV im Vergleich zu konventionellen Supraleitern (zum Beispiel Blei mit 2.73 meV) sehr groß, wodurch der in dieser Arbeit gesuchte Prozess der direkten Emission von Cooper-Paaren begünstigt wird (siehe 2.4.1 *Direkte Emission von Cooper-Paaren*).

Allerdings müssen auch unvorteilhafte Eigenschaften von Bi2212 für eine ARPES-Messung mit Flugzeitspektrometern in Kauf genommen werden. Dabei ist vor allem die bei Kuprat-Hochtemperatursupraleitern sehr geringe Elektronen-Zustandsdichte (DOS - *density of states*) an der Fermikante (siehe Abbildung 2.29, Seite 34) ein Problem, speziell für Doppelphotoemissions-Messungen (Details siehe 5.3.4 *Qualität der Daten*).

Aufgrund der generell kaum untersuchten Doppelphotoemission sollte natürlich versucht werden, ein möglichst breites Spektrum von experimentellen Parametern, darunter auch der Probenauswahl, abzudecken. Dem gegenüber stehen allerdings sowohl die extrem niedrigen Aufnahmeraten (Details siehe 5.3.4 *Qualität der Daten*) als auch die begrenzt verfügbare Messdauer an Synchrotron-Großforschungseinrichtungen. Priorität war es damit zuallererst, miteinander vergleichbare Datensätze von einer Probe (unterschiedliche Temperatur, Photonenenergie etc.) zu erhalten (Details siehe 5.3.2 *Nachweismethoden*).

Neben Bi2212 wurde Y123 ($YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$) als zweiter Kuprat-Hochtemperatursupraleiter ($T_c = 92K$) aufgrund seiner leicht abweichenden elektronischen Struktur zur Kontrolle gemessen. Bei Y123 sind jedoch die Bruchebenen unbekannt und können sich von Bruch zu Bruch unterscheiden. Zudem ist ein sauberer Bruch bzw. eine geordnete Oberfläche entlang einer einzelnen atomaren Ebene unwahrscheinlich. Dadurch könnte die Oberfläche im Gegensatz zum Bulk nicht supraleitend werden [LyOl05].

2.3 Photoemission von Oberflächen

Photoelektronen-Spektroskopie (PES - *Photoemission Spectroscopy*) steht allgemein für alle Techniken basierend auf dem photoelektrischen Effekt, welcher erstmalig 1887 von H. Hertz und H. Hallwachs beobachtet wurde. Später konnte dieser als Manifestation der Quantennatur des Lichts von Albert Einstein[30] [Eins05] erklärt werden. Er erkannte, dass auf eine Probe treffendes Licht als Photon von einem Elektron absorbiert wird, welches daraufhin ins Vakuum entkommen kann. Dabei überträgt das Photon seine gesamte Energie $E_{photon}=\hbar\omega$ auf das Elektron. In der Atom- und Festkörper- bzw. Oberflächenphysik lässt sich bei bekannter Energie der Photonen und der gemessenen kinetischen Energie E_{kin} der Elektronen ein Rückschluss auf die Bindungsenergie bzw. die Energieeigenwerte der Elektronen ziehen. Beschrieben wird dies durch die Gleichung:

$$E_{kin} = E_{photon} - E_b(\boldsymbol{k}) \tag{2.13}$$

Dabei bezieht sich die Bindungsenergie $E_b(\mathbf{k})$ bei Festkörpern auf die Fermienergie, d.h. die höchste besetzte Energie im Festkörper (bei T = 0 K), und ist vom Impuls bzw. dem Wellenzahlvektor **k** der Elektronen, der sog. Bandstruktur, abhängig. Um Elektronen allerdings spektroskopieren zu können, müssen diese mindestens noch das Vakuumlevel (E_{vac}) erreichen. Die dazu zusätzlich nötige Energie, also der Abstand der Fermienergie zum Vakuumlevel, wird durch die Austrittsarbeit Φ_{WF} (engl. „work function“) berücksichtigt. Die tatsächlich beobachtbare Energie der Elektronen lautet also vollständig:

$$E_{kin} = E_{photon} - E_b(\boldsymbol{k}) - \phi_{WF} \tag{2.14}$$

Die Energiebetrachtung ist schematisch in Abbildung 2.23 dargestellt.

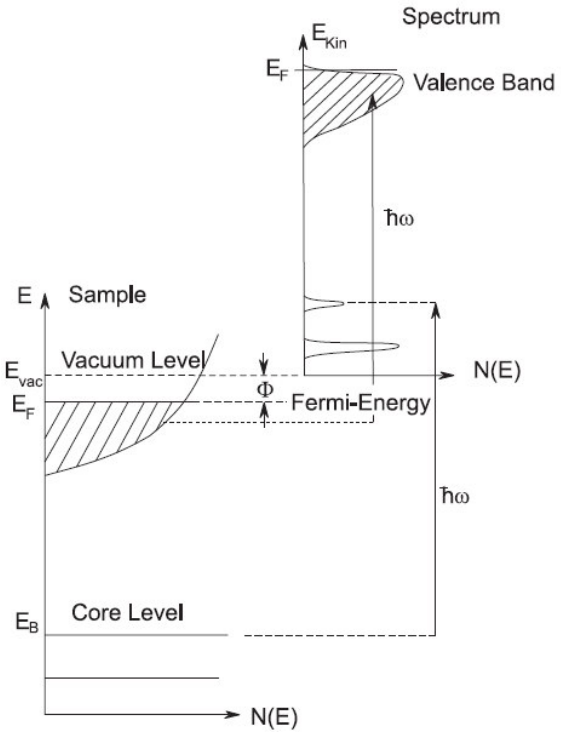


Abbildung 2.23: Beziehung zwischen den Energielevels im Festkörper und der gemessenen kinetischen Energie bei einer festen Photonenenergie. Entnommen aus [Hüfn03].

[30] **Nobelpreis für Physik 1921** an Albert Einstein „für seine Verdienste um die theoretische Physik, besonders für seine Entdeckung des Gesetztes des photoelektrischen Effekts“ [Nobel].

Wird zusätzlich zur kinetischen Energie auch die Startrichtung der Elektronen gemessen, spricht man von winkelauflösender Photoelektronenspektroskopie (ARPES - *Angular Resolved Photo Emission Spectroscopy*). Dabei können zusätzliche Informationen über die elektronische Struktur im Festkörper bzw. die Bandstruktur gewonnen werden. Eine phänomenologische Interpretation dazu bietet das im Folgenden beschriebene Drei-Stufen-Modell der Photoemission, mit dem auch die experimentellen Daten in dieser Arbeit interpretiert werden. Bei der theoretischen Beschreibungen der Photoemission wird häufig auch ein Ein-Stufen-Modell verwendet, das im Anschluss ebenfalls kurz vorgestellt werden soll.

2.3.1 Das Drei-Stufen-Modell der Photoemission

Im Drei-Stufen-Modell (*three-step model*) nach [BeSp64, Fan45, FeEa74] wird der Photoemissionsprozess unterteilt in drei voneinander unabhängige Schritte: Die optische Anregung des Elektrons im Festkörper durch ein Photon, den Transport zur Oberfläche und letztlich die Überwindung einer Oberflächenbarriere ins Vakuum, die im Folgenden separat beschrieben werden:[31]

1. **<u>Optische Anregung des Elektrons</u>**
   Die Übergangswahrscheinlichkeit der optischen Anregung des Elektrons, also dem Übergang zwischen dem Anfangszustand $|\psi_i^N\rangle$ im Festkörper und dem Endzustand $|\psi_f^N\rangle$ über dem Ferminiveau („free-electron-final-state“), kann mit Fermis Goldener Regel abgeschätzt werden. Bei den Zuständen handelt es sich jeweils um N-Teilchen-Blochzustände[32]:

$$w_{fi} \propto \frac{2\pi}{\hbar} \left| \left\langle \psi_f^N \left| \frac{e}{mc} \, \vec{A} \cdot \vec{p} \right| \psi_i^N \right\rangle \right|^2 \delta(E_f - E_i - \hbar\omega) \qquad (2.15)$$

   Das Matrixelement $M_{fi} = \left| \left\langle \psi_f^N \left| \vec{A} \cdot \vec{p} \right| \psi_i^N \right\rangle \right|^2$ beschreibt dabei die Wechselwirkung des Photons ($\vec{A}$: Vektorpotential) mit dem Elektron ($\vec{p}$: Impulsoperator). Ein für die Interpretation der experimentellen Daten wichtiges Detail ist, dass die Anregung eines Elektrons bevorzugt ist, wenn dessen Impuls parallel zum Polarisationsvektor des einfallenden Photons steht. Die δ-Funktion sorgt für Energieerhaltung während des Übergangs.

   Für die meisten praktischen Anwendungen wird die Photonenwechselwirkung in der Dipolnäherung behandelt, was einem vertikalen Übergang[33] im reduzierten Zonenschema entspricht, wie in Abbildung 2.24 gezeigt.

[31] Angelehnt an die Darstellung von Stefan Hüfner in [Hüfn03].

[32] Ein Blochzustand ist die allgemeinste Lösung der stationären Schrödingergleichung für ein periodisches Potential (z.B. Kristallgitter).

[33] Der Photonenimpuls für 40 eV beträgt 0,011 a.u.(p_γ = E /c) und kann daher im Vergleich zum reziproken Gittervektor von Bi2212 mit 0.868 a.u. vernachlässigt werden.

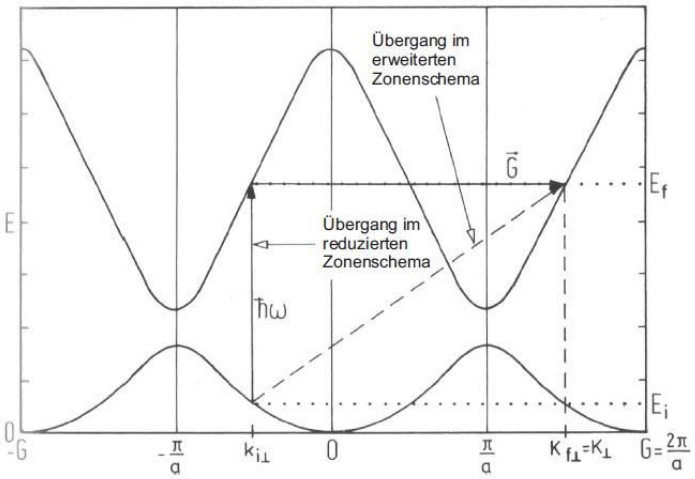


Abbildung 2.24: Darstellung eines direkten Bandübergangs im reduzierten und erweiterten Zonenschema. Aufgrund der Periodizität der Bandstruktur kann der Bandübergang mit einem Gittervektor im reduzierten Zonenschema wieder als direkter Bandübergang dargestellt werden. Entnommen aus [Hüfn03].

2. <u>Transport zur Oberfläche</u>

Auf dem Weg der Elektronen zur Oberfläche kommt es zu elastischen und inelastischen Stößen mit den Gitteratomen und den Elektronen im Festkörper, wobei die Elektron-Elektron-Stöße dominieren. Mit der Annahme, dass die Stoßfrequenz *1/τ* (τ = Lebenszeit) isotrop und nur von der Energie der Elektronen abhängt, kann die mittlere freie Weglänge *λ(E,k)* beschrieben werden als

$$\lambda(E,k) = \tau v_g = \frac{\tau}{\hbar}\frac{dE}{dk} \tag{2.16}$$

wobei v_g die Gruppengeschwindigkeit im Endzustand bzw. E die entsprechende Energie im Festkörper angibt. Mit einer klassischen Betrachtung findet sich ein Koeffizient *d(E,**k**)* [BeSp64], welcher den Anteil der die Oberfläche erreichenden Photoelektronen angibt:

$$d(E,k) = \frac{\alpha\lambda}{1+\alpha\lambda} \tag{2.17}$$

α ist dabei der optische Absorptionskoeffizient der Strahlung im Festkörper.

Um einen Eindruck für die mittleren freien Weglängen der Elektronen im Festkörper zu bekommen, ist in Abbildung 2.25 eine *universelle*[34] experimentelle Messung gezeigt. Demnach ist die mittlere freie Weglänge bei den in dieser Arbeit verwendeten Photonenenergien (40 bis 70 eV) sehr kurz (< 20 Å), wodurch die Messungen extrem oberflächensensitiv werden.

[34] Die Kurven für unterschiedliche Materialien zeigen nahezu das gleiche Verhalten und haben ihr Minimum bei einer mittleren freien Weglänge von ca. 50 eV.

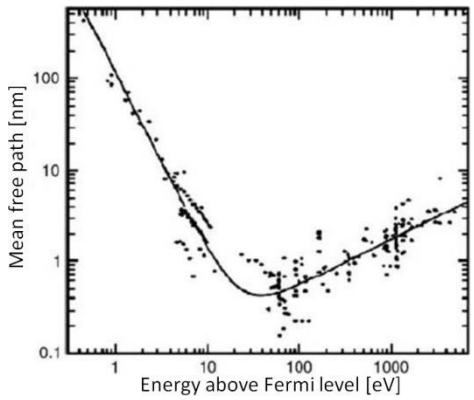


Abbildung 2.25: Universelle (materialunabhängig) mittlere freie Weglänge [nm] eines Elektrons im Festkörper, abhängig von seiner kinetischen Energie [eV].

Entnommen aus [Groo72].

Theoretische Untersuchungen der mittleren freien Weglänge bei den gemessenen extrem anisotropen Kuprat-Hochtemperatursupraleitern zeigen zwar kleine qualitative Abweichungen, sind aber wohl experimentell zu vernachlässigen [PeMa94].

Die Eindringtiefe der Photonen hingegen ist in diesem Energiebereich mit ca. 100 Å [CODC01] deutlich größer als die mittlere freie Weglänge der Elektronen. Dies führt zum einen dazu, dass viele Photoelektronen, die vergleichsweise tief im Festkörper angeregt werden, diesen niemals verlassen können. Zum anderen steigt der Anteil der Elektronen, die nach einem Stoß den Festkörper verlassen (sog. Streuelektronen) insgesamt an. In modernen Einfachphotoelektronen-Messungen (SPE – *single photoemission*) sind diese meist irrelevant, sie stellen jedoch speziell für Doppelphotoemissions-Messungen (DPE – *double photoemission*) ein Problem dar (Details siehe 2.4 *Doppelphotoemission (DPE)*).

3. Übergang ins Vakuum

Der Übergang eines Elektrons ins Vakuum lässt sich analog zur Lichtbrechung beim Übergang in ein Medium mit optisch geringerem Brechungsindex beschreiben (Snellius-Gesetz). Dabei wird vereinfacht eine scharfe Potentialstufe beim Übergang angenommen.

Die Photoelektronen bewegen sich quasi frei mit der Energie $E = E_i + \hbar\omega$ durch den Festkörper, befinden sich dabei allerdings in einem Potential-Topf der Tiefe $V = E_{Fermi} + \Phi_{WF} = E_{Vakuum} - E_0$. Daher müssen Elektronen, welche den Festkörper verlassen, die Bedingung

$$\frac{\hbar^2}{2m} K_\perp^2 \geqq E_{Vakuum} - E_0 \qquad (2.18)$$

erfüllen ($K_\perp$: Impulskomponente des Photoelektronen Wellenvektors ***K'*** senkrecht zur Probenoberfläche). Elektronen, die nicht genügend kinetische Energie in Richtung der Oberflächennormalen besitzen, erfahren an der Grenzschicht eine Totalreflektion und verbleiben im Festkörper. Die Potentialbarriere wirkt dabei lediglich auf die senkrechte Bewegungskomponente des Elektrons. Die Bewegungskomponenten parallel zur Oberfläche bleiben erhalten (es gilt: $\partial V/\partial z \neq 0$, $\partial V/\partial x = \partial V/\partial y = 0$, siehe Abbildung 2.26). Die Wechselwirkung an der Oberfläche führt zu einer Änderung des Emissionswinkels θ der Elektronen (Wellenvektor $\boldsymbol{p}/\hbar$) relativ zum Emissionswinkel θ'

innerhalb des Festkörpers. Für die Parallelkomponente, abhängig von Energie und Winkel, gilt:

$$p_{\parallel}/\hbar = \sin\theta \sqrt{\frac{2m}{\hbar^2} E_{kin}} = \sin\theta' \sqrt{\frac{2m}{\hbar^2} E_{Fermi} - E_0} = K'_{\parallel} \tag{2.19}$$

Mit der Bedingung (2.18) ergibt sich ein kritischer Emissionswinkel, ab welchem Elektronen den Festkörper nicht mehr verlassen können:

$$\theta'_{krit} = \sin^{-1}\left(\frac{E_{kin}}{E_f - E_0}\right)^{1/2} \tag{2.20}$$

Für den Winkelbereich $0 \leq \theta' \leq \theta_{krit}'$ ergibt sich ein Kegel, innerhalb dessen das Auslösen von Elektronen aus dem Festkörper möglich ist. Dieser Kegel wird deshalb als „Flucht-Kegel“ (*escape cone*) bezeichnet. Zusammengefasst ist der Übergang ins Vakuum in Abbildung 2.27 dargestellt.

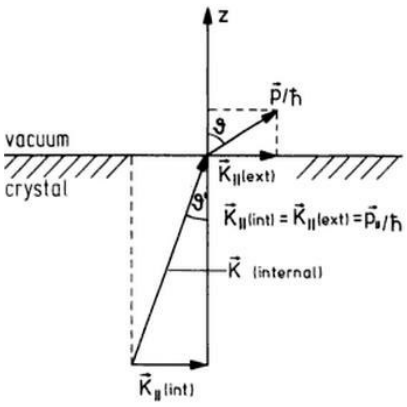


Abbildung 2.26: Impulskomponenten während des Übergangs aus dem Festkörper ins Vakuum. Die parallele Impulskomponente bleibt erhalten: $\vec{K}_{\parallel\,(int)} = \vec{K}_{\parallel\,(ext)}$ Entnommen aus [Hüfn03].

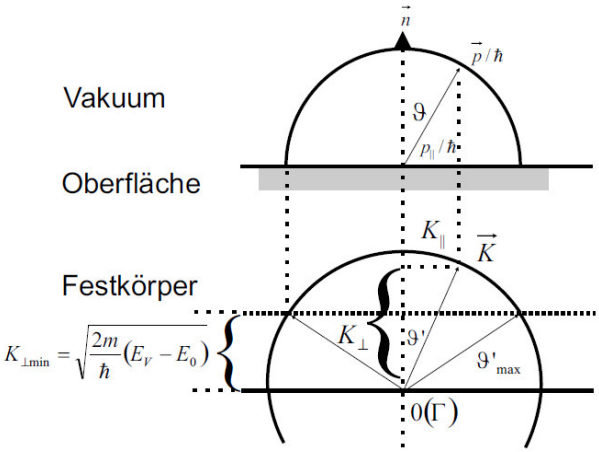


Abbildung 2.27: Geometrische Konstruktion des Fluchtkegels (escape cone) für das einfache Modell der Oberfläche. Vom verfügbaren Impuls-Kegel mit Radius |K| wird der Anteil $|K_{senk.\ min}|$ abgeschnitten. Der verbliebene Winkelbereich definiert den Fluchtkegel. Entnommen aus [Hüfn03].

Der tatsächliche Photoelektronenstrom *I(E,hω)* ergibt sich aus dem Produkt dieser drei Faktoren. Eine formale Angabe von *I(E,hω)* kann beispielsweise in [LyOl05] gefunden werden. Zudem ist zu beachten, dass bei der Herleitung des Drei-Stufen-Modells (siehe [Dama03] oder [Hüfn03]) Näherungen gemacht werden, deren Gültigkeit bzw. Limitationen man sich bei der Benutzung dieses Modells bewusst sein sollte:

- Bei der Herleitung der Übergangswahrscheinlichkeit wurde die sogenannte Dipolnäherung angewendet. Dabei wird das Vektorpotential ($\vec{A}$) über atomare Dimensionen als konstant angenommen. Diese häufig angewandte Näherung führt jedoch bei Oberflächen, bei denen die elektromagnetischen Felder stark ortsabhängig sind, zu Fehlern im Drei-Stufen-Modell.

- Ebenfalls wird die *Sudden Approximation* des adiabatischen Theorems der Quantenmechanik angewendet, in deren Limit der gesamte Photoemissionsprozess

als instantan angenommen wird. Es findet also keine Wechselwirkung zwischen dem entkommenden Photoelektron und dem zurückgelassenen System statt. Je weniger kinetische Energie ein entkommendes Photoelektron allerdings besitzt, umso wahrscheinlicher wird eine solche Wechselwirkung.
Bei den untersuchten Kuprat-Hochtemperatursupraleitern gibt es allerdings Hinweise darauf, dass die *Sudden Approximation* bis hinunter zu 20 eV (kinetische Energie) quantitativ zu gelten scheint [RDCB95].

2.3.2 Ein-Stufen-Modell der Photoemission

Für eine physikalisch präzisere Beschreibung der Photoemission geht man in der Theorie zu einem Ein-Stufen-Modell über. Im Prinzip ist dabei Fermis Goldene Regel (siehe Formel (2.15)) schon eine korrekte Formulierung des Photoemissions-Prozesses und könnte als ein Ein-Stufen-Modell bezeichnet werden. Vorausgesetzt, der Endzustand beschreibt ein entkommendes Elektron im Vakuum (im Drei-Stufen-Modell wurde Fermis Goldene Regel hingegen nur auf den Photoabsorptions-Prozess selbst angewandt.). In der Form (siehe Formel (2.15)) kann das Problem allerdings nicht exakt gelöst werden, so dass verschiedene Näherungen gemacht werden müssen, um ein wirklich anwendbares Ein-Stufen-Modell zu erhalten.

Eine der besten gefundenen Näherungen für ein Ein-Stufen-Modell, welches auch die relativ kurze mittlere freie Weglänge der angeregten Photoelektronen berücksichtigt, ist die sogenannte inverse LEED Theorie (*Low-Energy Electron Diffraction*) der Photoemission. Die dadurch beschriebenen Prozesse sind schematisch in Abbildung 2.28 dargestellt.



Abbildung 2.28: Links) Asymptotische Wellenfunktion in der LEED Theorie. Dort gibt es einen einfallenden (-v), einen reflektierten und einen eindringenden Elektronenstahl. Rechts) Asymptotische Wellenfunktion der Photoemission. Diese besteht hingegen in diesem Bild nur aus den zeitumgekehrt eindringenden und einfallenden (v) Elektronenstahlen.

Die asymptotische Form, also bei großen Entfernungen der beiden Wellenfunktionen zur Oberflächen, lässt sich wie folgt beschreiben:

Mit einer aus dem Vakuum einfallenden Welle

$$\Psi^{L}_{z\to\infty} = \exp(i\vec{K}_{\parallel}\cdot\vec{\rho})\{\exp[-i(p_{\perp}/\hbar)z] + r\exp[i(p_{\perp}/\hbar)z]\} \tag{2.21}$$

und einer in den Festkörper transmittierten Welle

$$\Psi^{L}_{z\to-\infty} = t\exp(i\vec{K}_{\parallel}\cdot\vec{\rho} - iK_{\perp}z)\Psi(\vec{k},z) \tag{2.22}$$

wobei z die Koordinate entlang der Oberflächennormalen ist (aus der Oberfläche hinauszeigt). $\Psi(\vec{k},z)$ ist die Blochwellenfunktion des Festkörpers. Die Oberfläche liegt dabei in der x-y-Ebene und $\vec{\rho} = \vec{e}_x x + \vec{e}_y y$ ist ein Vektor in dieser Ebene; r und t sind die Reflektions- und Transmissions-Koeffizienten.

Um damit einen Photoemissions-Prozess zu beschreiben, wird die Geschwindigkeitsrichtung des einfallenden Elektronenstahls umgekehrt und Ψ^L als Endzustand verwendet. Fermis Goldene Regel ändert sich damit zu:

$$N(E,\hbar\omega,\vec{R}) \propto \vec{v} \sum_{besetzt,i} \left(\left| \langle \Psi^L(\vec{r},E,\vec{K}) | H^{int} | \Psi_i(\vec{r},\vec{k}) \rangle \right|^2 \right) |M_{fi}|^2 \delta(E_f - E_i - \hbar\omega) \qquad (2.23)$$

Dabei ist E = E_f - W_Φ die kinetische Energie des Photoelektrons, $\vec{R} = \vec{v}/|\vec{v}|$ der Einheitsvektor entlang der Emissionsrichtung und $\vec{k} = \vec{\rho} + \vec{e}_z z$ der Wellenvektor. Damit ist eine korrekte und anwendbare Formulierung der Photoemission in einem Ein-Stufen-Modell gegeben.

Die Eigenschaft einer zweidimensionalen Oberfläche, dass nur Wellenvektorenkomponenten parallel zur Oberfläche erhalten bleiben, wird durch eine Erweiterung der beiden Wellenfunktionen Ψ^L und Ψ_i berücksichtigt. Meist werden diese dafür einfach als zweidimensionale Blochwellenfunktionen mit dem Positions-Vektor $\vec{\rho}$ in der x-y-Ebene beschrieben. Soll die gesamte Wellenfunktion der Elektronen mit Berücksichtigung der Wellenvektorkomponenten senkrecht zur Oberfläche betrachtet werden, wird üblicherweise zum Potential in der Schrödingergleichung ein imaginärer Anteil (das sog. optische Potential) addiert, welcher die Dämpfung der Elektronen durch die Bandstruktur beschreibt. Beispielsweise ist die Wellenfunktion des Endzustands im Falle einer sehr kurzen mittleren freien Weglänge oder einer Anregung innerhalb einer Bandlücke exponentiell gedämpft, wohingegen ein Interbandübergang nur sehr schwach gedämpft ist.

2.3.3 Photoemissionseigenschaften von Kuprat-Hochtemperatursupraleitern

Der in dieser Arbeit untersuchte Kuprat-Hochtemperatursupraleiter Bi2212 gehört, wie bereits erwähnt, zu den am intensivsten durch Photoemission (ARPES) untersuchten Proben. An dieser Stelle sollen die für diese Arbeit relevantesten Aspekte kurz zusammengefasst werden.

In Abbildung 2.29 ist dazu ein Photoemissionsspektrum von einer Bi2212-Probe (dünner Film von Amit Kanigel) gezeigt [Voss11], welches mit einem hemisphärischen Analysator und einer Anregungsenergie von 70 eV aufgezeichnet worden ist.

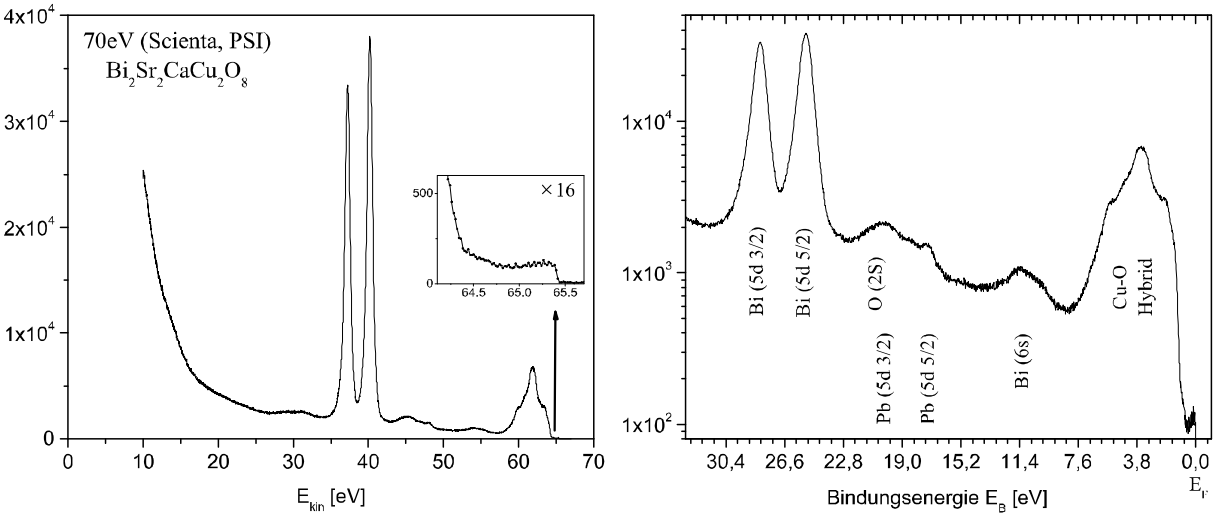


Abbildung 2.29: Photoemissionsspektrum von Bi2212 bei E_{photon} = 70 eV, gemessen mit einer Scienta SES-2002 an der Swiss Light Source. Links) Die gemessene kinetische Energie. Rechts) Logarithmisch skaliert und in Bindungsenergien umgerechnet. Die beiden Innerschalenzustände der Bismut-Atome liegen bei Bindungsenergien von 25.2 eV und 28.2 eV. Entnommen aus [Voss11].

In diesem Photoemissionsspektrum können neben der Valenzbandstruktur auch lokalisierte Innerschalenzustände sowie der exponentielle Anstieg der Streuelektronen (*Secondaries*) bei niedrigeren Energien beobachtet werden. Interessant für diese Arbeit sind besonders die relativen Intensitäten der verschiedenen Strukturen untereinander. Die Hochtemperatursupraleitung spielt sich dabei in dem nur sehr schwach ausgeprägten Bereich unterhalb der Fermikante ab (siehe Inlet). Die beiden stark ausgeprägten Innerschalenzustände der Bismut-Atome bei 25.2 und 28.2 eV Bindungsenergie eignen sich zudem gut zur Kalibration des Experiments. Der Versatz von 1.4 eV zu den Literaturwerten von elementarem Bismuth (23.8 und 26.9 eV [ThVa09]) ist auf die ionische Einbindung im Kristallpotential zurückzuführen [GVLP95].

Neben der in 2.2.2 *Elektronische Struktur und makroskopische Supraleitung* vorgestellten Energielücke ist der supraleitende Peak ein weiteres charakteristisches Merkmal der Supraleitung bei ARPES-Messungen. Die Temperaturabhängigkeit dieses Peaks ist in Abbildung 2.30 gezeigt. Weitere Details zum supraleitenden Peak und dessen Energieabhängigkeit können beispielsweise in [KrPi88] gefunden werden.

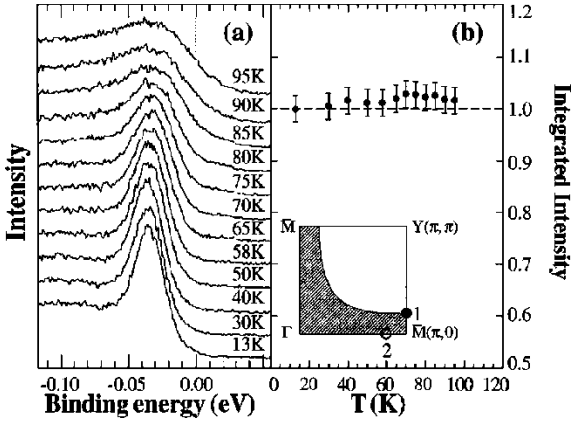


Abbildung 2.30: Temperaturabhängigkeit des Energiespektrum von $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$ (T_c = 87 K): (a) ARPES-Spektrum an der Fermikante (siehe Inlet); (b) Integrierte Intensität. Entnommen aus [RDCB95].

Eine moderne LDA Bandstrukturrechnung für verschiedene p-Dotierungen (δ) ist in Abbildung 2.31 gezeigt. Derartige Rechnungen sind nach wie vor Gegenstand aktueller Forschung. Beispielsweise konnten die erwarteten Sauerstoff-Pockets bei niedriger p-Dotierung, bei der das Sauerstoffband unterhalb der Fermienergie am M(π,0)-Punkt ragt, bisher nicht experimentell nachgewiesen werden, was vermutlich auch mit der Probenqualität zusammenhängt.

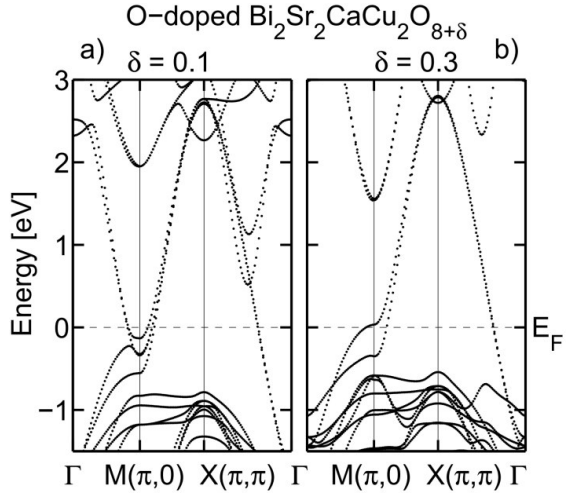


Abbildung 2.31: Theoretische LDA Bandstruktur-rechnung für zwei unterschiedliche Sauerstoffdoping-Konzentrationen. Entnommen aus [LSMB08].

2.4 Doppelphotoemission (DPE)

Unter Doppelphotoemission versteht man zunächst einmal jeden Prozess, der bei der Absorption eines einzelnen Photons zur simultanen Emission von zwei Elektronen führt (γ→2e). Die dominantesten derartigen Prozesse sind die Streuung von Elektronen und gegebenenfalls der Augerzerfall (stark energie- und materialabhängig):

> **Streuung**: Wird ein Photoelektron durch die Absorption eines Photons im Festkörper angeregt, kann es auf dem Weg zur Oberfläche zu elastischen oder inelastischen Stößen mit anderen Elektronen kommen. Dabei gehen in der Regel sämtliche Informationen über die Anfangszustände verloren.
>
> **Augerzerfall**: Werden bei der Photoemission Elektronen aus tieferliegenden Energiezuständen (Innerschalenzustände) ausgelöst, werden die zurückbleibenden Löcher durch Elektronen aus höheren Energieniveaus wieder gefüllt. Die dabei freiwerdende Energie kann zur Emission eines weiteren Elektrons führen, dem sogenannten Augerelektron.

In dieser Arbeit wird ebenfalls unter Doppelphotoemission der von Jamal Berakdar [Bera98] beschriebene Prozess der Doppelphotoemission verstanden. Dabei handelt es sich um einen quantenmechanischen Prozess - bisher ohne phänomenologische Interpretation - bei dem zwei simultan emittierte Elektronen Informationen über den Anfangszustand sowie über die Art der Wechselwirkung enthalten. Eine der wichtigsten Vorhersagen dieser Theorie ist das sogenannte Korrelationsloch, welches schon in früheren Arbeiten an der Universität Frankfurt untersucht wurde [HJSC08, Hatt04, Voss11, Wall11, WVFB12]. Für eine kurze Zusammenfassung der Theorie wird auf [Baue11] oder [Wall11] verwiesen.

Eine weitere, auf der ursprünglichen Theorie aufbauende Vorhersage ist die Emission von Cooper-Paaren, mit welcher sich die vorliegende Arbeit hauptsächlich auseinandersetzt. Im nächsten Abschnitt wird die zugrunde liegende Theorie kurz zusammengefasst. Anschließend wird ebenfalls kurz eine unabhängige Betrachtung der Doppelphotoemission von E. Altman und E. Demler vorgestellt.

2.4.1 Direkte Emission von Cooper-Paaren

Die direkte Emission von Cooper-Paaren bzw. die simultane Emission der beiden Elektronen durch ein einzelnes Photon wurde von den beiden Theoretikern K. A. Kouzakov und J. Berakdar theoretisch untersucht und vorhergesagt [KoBe03]. Im Folgenden wird diese Theorie kurz zusammengefasst:

Es wird ein Prozess angenommen (siehe Abbildung 2.32), bei dem nach der Absorption eines einzelnen Photons der Energie ω zwei Elektronen aus einer supraleitenden Probe ins Vakuum emittiert werden. Gemessen werden dabei die Energien ($E_{1/2}$) relativ zum chemischen Potential (Fermikante) sowie die Emissionsrichtungen ($\theta_{1/2}$).

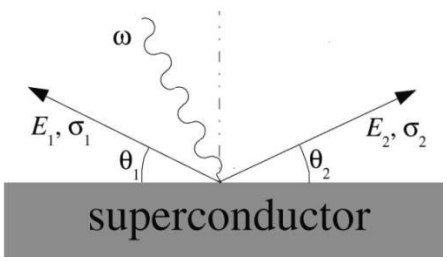


Abbildung 2.32: Schematische Darstellung des Doppelphotoemissions-Prozesses. Der Prozess wird über die Photonenenergie (ω), die kinetischen Energien (E_1,E_2) und Spins (σ_1,σ_2) sowie die Emissionswinkel (θ_1,θ_2) der beiden Elektronen definiert. Entnommen aus [KoBe03].

Der DPE-Strom J_{12} wird mithilfe von Zwei-Teilchen-Green`s Funktionen und der Loch-Loch-Spektralfunktion $A_{12}^{(-)}$ ausgedrückt:

$$J_{12} \propto \left\langle \Psi_{p_1 p_2}^{(-)} \middle| D_{12} A_{12}^{(-)}(E_{12}) D_{12}^{\dagger} \middle| \Psi_{p_1 p_2}^{(-)} \right\rangle \tag{2.24}$$

Dabei ist $\Psi_{p_1 p_2}^{(-)}$ die korrelierte Wellenfunktion der beiden Elektronen und D_{12} der Kopplungs-Operator des Photons mit dem Elektronenpaar ($D_{12} = (\boldsymbol{A}/c)\left[e^{i\boldsymbol{q}\boldsymbol{r_1}}\,\hat{\boldsymbol{\epsilon}}\,\boldsymbol{p_1} + e^{i\boldsymbol{q}\boldsymbol{r_2}}\,\hat{\boldsymbol{\epsilon}}\,\boldsymbol{p_2}\right]$, mit dem Polarisationsvektor $\hat{\boldsymbol{\epsilon}}$, den Ein-Elektron-Impulsoperatoren $\boldsymbol{p_{1/2}}$ und dem Wellenvektor $\boldsymbol{q}$). Die Spektralfunktion $A_{12}^{(-)}$ kann mit Hilfe der BCS-Molekularfeldtheorie ausgewertet werden und lässt sich in zwei Terme aufteilen:

$$A_{12}^{(-)}(k_1 k_2 k_1' k_2'; E_{12}) = A_{UP}^{(-)}(E_{12}) + A_{CP}(E_{12}) \tag{2.25}$$

Der erste Term $A_{UP}^{(-)}$ beschreibt dabei zwei unabhängige Normalzustandsanregungen [$f_k = 1/(\exp(\beta\varepsilon_k) + 1)$], also unkorrelierte Paarzustände (*UP*).

Für T > T_C reduziert sich dieser zu

$$A_{UP}^{(-)}(E_{12}) = \left(\delta_{k_1,k_1'}\delta_{k_2,k_2'} - \delta_{k_1,k_2'}\delta_{k_2,k_1'}\right) f_{k_1} f_{k_2} \times \delta(E_{12} - \varepsilon_{k_1} - \varepsilon_{k_2}) \tag{2.26}$$

Der zweite Term

$$A_{CP}(E_{12}) = \delta_{k_1,-k_2}\delta_{k_1',-k_2'} \frac{\Delta_{k1}(T)\Delta_{k_1'}(T)}{4E_{k_1}E_{k_1'}} \delta(E_{12}) \tag{2.27}$$

beschreibt hingegen die kondensierten, also korrelierten Paarzustände (*CP*). Die Abhängigkeit vom Paarungs-Mechanismus ist mit der aus der BCS-Theorie stammenden Funktion für die Energielücke

$$\Delta_k = \frac{1}{2}\sum_{k'} V(k,k')(\Delta_{k'}/E_{k'}) \tag{2.28}$$

berücksichtigt, wobei $V(k,k')$ das Paarungs-Potential ist. Die Intensität der korrelierten Paare ist daher direkt von der Größe der Energielücke sowie der Probentemperatur abhängig.

Die Eigenschaften des Matrixelements $M_{k_1 k_2}$ (für kristalline Proben), die sich aus der BCS-Theorie ergeben, lassen sich mathematisch ausdrücken durch:

$$M_{k_1 k_2} = m_{\vec{k}_1,\vec{k}_2}\delta[(\vec{p}_1 + \vec{p}_2)_{\parallel} + \vec{g}_{\parallel} - (\vec{k}_1 + \vec{k}_2 + \vec{q})_{\parallel}]\delta_{\sigma_1,\mu_1}\delta_{\sigma_2,\mu_2} \tag{2.29}$$

$m_{\vec{k}_1,\vec{k}_2}$: Reduzierte Matrixelement
$\vec{g}_{\parallel}$: Reziproker Gittervektor
$\sigma_{1/2}, \mu_{1/2}$: Elektronen Spin
$\vec{q}$: Photonen Wellenvektor

Wird kein Parallel-Impuls aus dem Gitter aufgenommen, werden die beiden Elektronen demnach unter entgegengesetztem Winkel emittiert. Zudem bleibt der Gesamtspin (Spin-Singulett = 0) der Elektronen erhalten.

Die getrennt berechneten DPE-Ströme für unkorrelierte und korrelierte Paarzustände, sind in Abbildung 2.33 gezeigt.

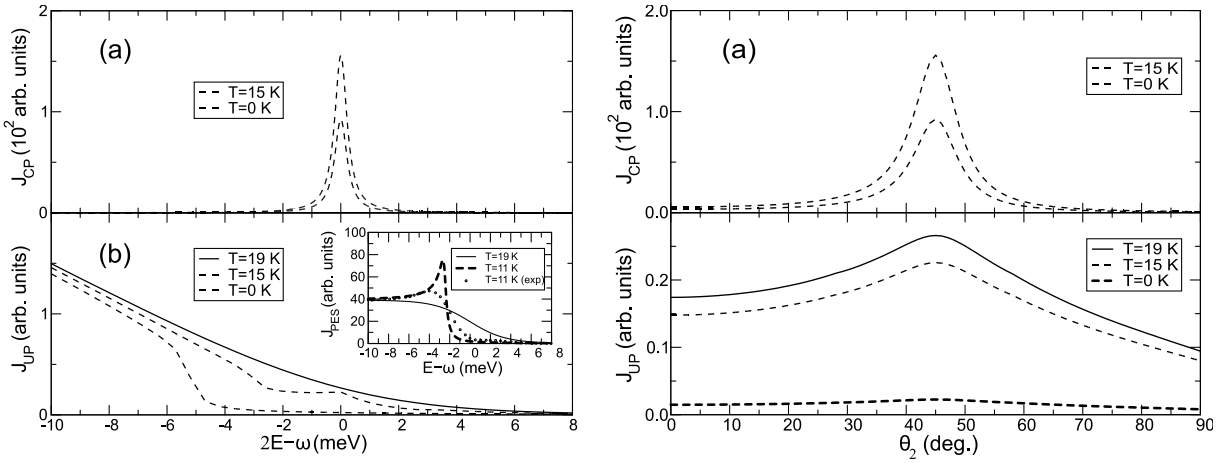


Abbildung 2.33: Der korrelierte J_{CP} (oben) und unkorrelierte J_{UP} (unten) DPE-Strom von einer V_3Si -Probe (Δ_0 = 2.6 meV, T_C = 17 K). Links) Summenenergiespektrum relativ zur Fermienergie. Unterhalb der Sprungtemperatur liegt der korrelierte Anteil zwei Größenordnungen über dem unkorrelierten Anteil. Rechts) Winkelverteilung des zweiten Elektrons, wenn das erste unter 45° detektiert wurde. Entnommen aus [KoBe03].

Im Energiespektrum der Elektronenpaare (links) bzw. der Summenenergie bildet sich beim Unterschreiten der Sprungtemperatur an der Fermikante ein scharfer Peak bei den korrelierten Paaren. Gleichzeitig schwächt sich die Intensität im gleichen Bereich für die unkorrelierten Paare ab. Gleiches passiert in der Winkelverteilung des zweiten Elektrons (rechts), bei der es ebenfalls beim Unterschreiten der Sprungtemperatur zu einer bevorzugten Emission unter entgegengesetztem Winkel (θ_2 = 45°) zum ersten Elektron kommt (festgehalten bei θ_1 = 45°), wobei zusätzlich die gleiche kinetische Energie der beiden Elektronen angenommen wurde ($E_1 = E_2$). Der Betrag der beiden Winkel (θ_1 und θ_2) ergibt sich dabei aus dem Verhältnis von Parallelimpuls im Festkörper und senkrechtem Impuls nach der Absorption des Photons. Zu beachten ist, dass der berechnete DPE-Strom für korrelierte Paare mehr als zwei Größenordnungen oberhalb der unkorrelierten Paare liegt. Zu berücksichtigen ist, dass sich all dies auf einer sehr kleinen Energieskala abspielt.

Die hier vorgestellte Analyse der Doppelphotoemission beschränkt sich auf konventionelle Supraleiter, welche sich mithilfe der BCS-Theorie beschreiben lassen. Diese sind allerdings aufgrund ihrer kleinen Energielücken (typisch ≈ 1 meV) experimentell extrem schwer zu untersuchen. Deutlich besser hingegen sollten sich Kuprat-Hochtemperatursupraleiter aufgrund ihrer deutlich größeren Energielücken (typisch ≈ 10 - 30 meV) eignen. Zusätzlich sorgt die größere Kohärenzlänge ξ in der Größenordnung der Abschirmlänge λ zu einer Verstärkung des DPE-Matrixelements.

Zwar mangelt es für Hochtemperatursupraleiter an einer ähnlich erfolgreichen Theorie wie der BSC-Theorie (siehe 2.2.3 *Unkonventionelle Supraleitung*), jedoch verspricht die Doppelphotoemission gerade deshalb neue grundlegende Erkenntnisse auf diesem Gebiet. Konkret sind die erhofften Ziele bei Doppelphotoemissions-Messungen bei Kuprat-Hochtemperatursupraleitern die Folgenden:

- Informationen über den mikroskopischen Paarungsmechanismus zu erhalten.
- Klärung der Frage, ob sich Cooper-Paare bereits im Pseudogap bilden.
- Untersuchung der Symmetrieeigenschaften der Cooper-Paare bzw. der Energielücke bei der Verwendung von zirkular-polarisiertem Licht [KoBe07].
- Allgemein einen Einblick in die Zwei-Teilchen-Green`s-Funktion der Kuprat-Hochtemperatursupraleitern zu erhalten.

2.4.2 Dynamische Paarungsprozesse

In einer bisher unveröffentlichten Arbeit von E. Altman und E. Demler [AlDe05] wird ebenfalls über Möglichkeiten von Doppelphotoemissions-ARPES-Messungen zur direkten Untersuchung von Korrelations-Effekten nachgedacht. Dabei ist die Grundidee, den Paarungswechselwirkungskanal (*particle-particle channel*) direkt zu messen, statt indirekt über die Wechselwirkung mit dem System (*particle-hole channel*).

Normale ARPES-Messungen werden üblicherweise wie in Abbildung 2.34 (a) gezeigt interpretiert. Dabei gibt J den ausgehenden Photoelektronenstrom und A die Photonenströme an. Die Verbindung zwischen den beiden Photon-Vertices ist die Ein-Teilchen-Green's-Funktion[35] des Grundzustands. Die anderen beiden Verbindungen repräsentieren Photoelektronen. In der Stoßnäherung (impulse approximation) werden dabei die Wechselwirkungen des verlassenden Photoelektrons mit dem zurückbleibenden System (Elektronen und Loch) vernachlässigt[36]. Demnach handelt es sich bei der Photoemission um einen komplett unkorrelierten Prozess.

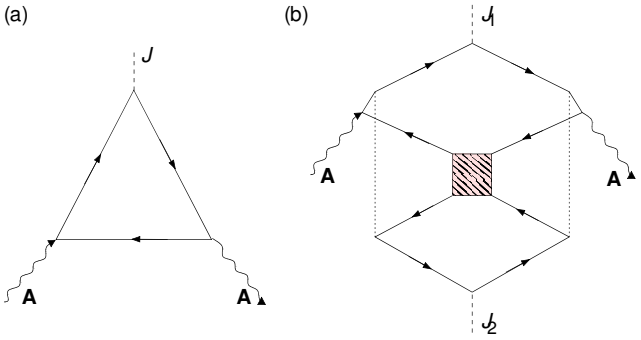


Abbildung 2.34: Photoemissions-Diagramme im Rahmen einer Stoßnäherung (impulse approximation). (a) Einzel-Photoemission (γ→e). (b) Doppelphotoemission (γ→2e). Entnommen aus [AlDe05].

Bei dem von den beiden Autoren angedachten Prozess (Abbildung 2.34 (b); Coulomb-Wechselwirkung, angedeutet durch die gestrichelten Linie) stößt hingegen das erste Photoelektron (J_1) mit einem zweiten Elektron im Festkörper zusammen, welches daraufhin ebenfalls emittiert wird (J_2). Die beiden Elektronen sind dabei über die Zwei-Teilchen-Green`s-Funktion im Paarwechselwirkungskanal (Box in der Mitte) miteinander verknüpft.

Aus dem in diesem Modell aufgestellten Ausdruck für den Doppelphotoemissions-Strom lassen sich Aussagen über die emittierten Elektronen ableiten. Zum einen gilt, dass der parallele Schwerpunkts-Impuls erhalten ist, wohingegen dies nicht für die einzelnen Parallelimpulse gilt. Für die Gesamtenergie ergibt sich die Formel $E_{ges} = E_1 + E_2 - h\nu - 2W_\Phi$.

Die Aussage, dass die Information über die Zwei-Teilchen-Green`s-Funktion inbegriffen der Cooper-Paare auch bei Stößen nicht vernichtet wird, ist für diese Arbeit besonders interessant, da der Streuprozess, wie in früheren Arbeiten [Voss11, Wall11] beobachtet, dominant ist. Wie sich diese Informationen als Signaturen in den Messdaten zeigen könnten, ist bisher nicht genauer untersucht worden. Zudem wird in der Theorie für jeden Vertice ein Matrixelement angenommen, deren absolute Größen unbekannt ist, weshalb genaue Vorhersagen für experimentelle Messungen bislang nicht möglich sind.

[35] Funktion, welche die Aufenthaltswahrscheinlichkeiten eines Elektrons abhängig von der Zeit beschreibt.
[36] Bei Kuprat-Hochtemperatursupraleitern wird angenommen, dass die Stoßnäherung bis auf 10% gültig ist.

3 Experimenteller Aufbau

Im Rahmen dieser Arbeit wurde eine neue Messapparatur aufgebaut, mit welcher die koinzidente energie- und winkelaufgelöste Photoelektronenspektroskopie (ARPES) von zwei Elektronen an Kuprat-Hochtemperatursupraleitern durchgeführt werden kann. Dazu konnte teilweise auf den von Stefan Voss und Robert Wallauer im Rahmen ihrer Doktorarbeiten [Voss11, Wall11] entwickelten Aufbau zurückgegriffen werden. Die wichtigsten Komponenten, wie z.B. das Elektronenspektrometer und der Detektor, wurden jedoch durch komplette Neuentwicklungen ersetzt. Zudem wurde der experimentelle Aufbau um ein zweistufiges Probenpräparationssystem erweitert.

Nach einem ersten Überblick über den experimentellen Aufbau werden die einzelnen Abschnitte des Experiments in der Reihenfolge der Verwendung im Detail vorgestellt.

3.1 Überblick

Das gesamte Experiment muss, wie alle Photoemissionsexperimente an Oberflächen, im niedrigen Ultrahochvakuum-Bereich durchgeführt werden (10^{-7}–10^{-12} mbar) und findet daher in einer geschlossenen Vakuumkammer, wie in Abbildung 3.1 gezeigt, statt. Diese wird durch mehrere Turbomolekularpumpen (1)(4)(5) und Ionengetterpumpen (2)(3) auf unter 3×10^{-11} mBar abgepumpt. Die Oberfläche der Kuprat-Hochtemperatursupraleiter Bi2212 und Y123 ist jedoch auch bei erreichtem Vakuum nur für maximal rund 24 Stunden vermessbar, bevor sie mit Adsorbaten aus dem Restvakuum bedeckt ist. Das Experiment verfügt daher über ein zweistufiges Probenpräparationssystem, bestehend aus einem sog. „Loading Dock" (1) (< 5×10^{-7} mBar) und einer Präparationskammer (2) (< 4.99×10^{-10} mBar), mit deren Hilfe sich Proben in der Streukammer austauschen lassen, ohne dabei das Vakuum in der Streukammer zu kontaminieren.

In der Streukammer befinden sich die Proben (3.3) am Ende eines mit Flüssig-Helium betriebenen Durchfluss-Kryostaten (3.1), mit welchem sie bis auf ca. 30 K heruntergekühlt werden können. Der Kryostat ist dabei auf einem XYZ-Manipulator und einer Drehdurchführung (3.2) gelagert, wodurch sich die Proben ausrichten lassen. Die für die Versuchsdurchführung benötigten kurzen Röntgenblitze stammen aus Synchrotron-Großforschungsanlagen (BESSY II oder SOLEIL) und treffen im 70°-Winkel zur Oberflächennormalen auf die Probe. Die dabei ausgelösten Elektronen werden von einem elektrostatischen Spektrometer, bestehend aus einer ±30°-Weitwinkelvorsatzlinse (5) und einem Themis 1000 Flugzeitspektrometer (6), zu einem orts- und zeitauflösenden Detektor (7) transportiert, welcher die Flugzeit und den Auftreffort der einzelnen Elektronen aufzeichnet.

In der sich anschließenden Datenanalyse (4. *Datenanalyse*) kann aus den aufgezeichneten Flugzeiten und Auftrefforten auf die einzelnen Startenergien und die dreidimensionale Startrichtungen der Elektronen zurückgeschlossen werden.

3.2 Vakuumsystem

Um eine sauber präparierte Oberfläche (siehe 3.3.2 *Probenpräparation*) für möglichst lange Zeit stabil[37] zu halten, muss das Experiment im unteren Ultrahochvakuum-Bereich durchgeführt werden. Anderenfalls würde die Wiederbelegung der Oberfläche durch Partikel aus dem Restvakuum (Adsorbate) zu schnell stattfinden. Die Wiederbelegungszeit, in der die Oberfläche mit einer Ein-Ebenen-Moleküllage bedeckt ist, kann mit Hilfe der kinetischen Gastheorie grob abgeschätzt werden (nach [Hüfn03]):

> Danach ist die Anzahl der Teilchen Δn, welche auf eine Fläche ΔF in der Zeit Δt auftreffen, gegeben durch
>
> $$\frac{\Delta n}{\Delta t \Delta F} = \frac{1}{4} n \bar{v} \cong \frac{p}{\sqrt{MT}} \cdot 2.63 \times 10^{22} \left[\frac{1}{cm^2 \cdot s}\right] \qquad (3.1)$$
>
> wobei n die Teilchendichte in cm^{-3} und $\bar{v} = \sqrt{8RT/2\pi M}$ die Durchschnittsgeschwindigkeit der Teilchen ist. Die für eine vollständige Belegung der

[37] Stabil meint in diesem Zusammenhang die Möglichkeit, ARPES-Messungen an den jeweiligen Proben durchführen zu können, ohne dass diese durch Adsorbate verfälscht werden (Auswirkungen auf die elektronische Struktur). DPE-Messungen sind aufgrund ihrer hohen Oberflächensensibilität besonders anfällig für derartige Einflüsse.

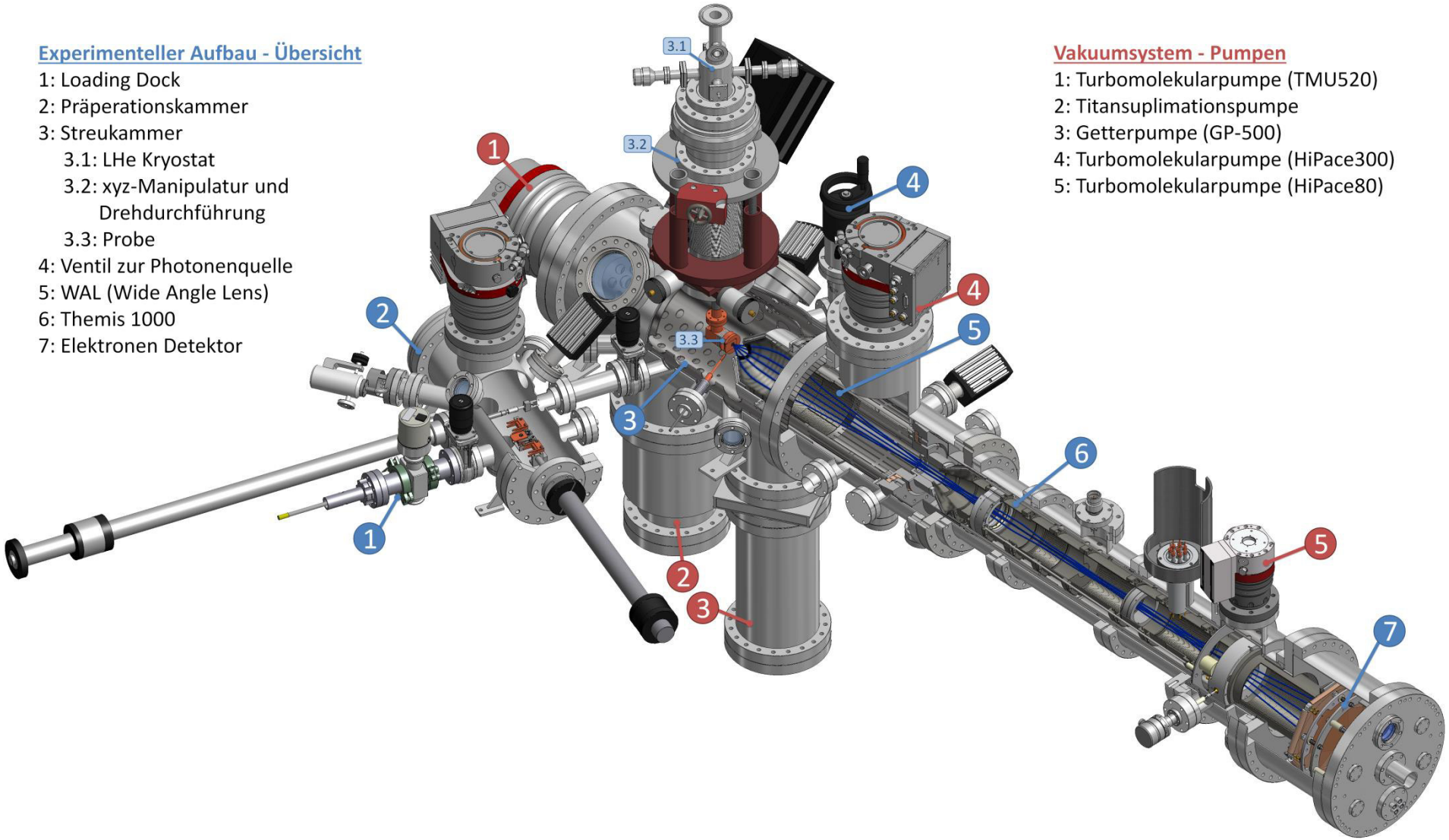


Abbildung 3.1: Übersicht über den experimentellen Aufbau sowie das Vakuumsystem der Streukammer.

Oberfläche, was grob 6 x 10^{14} Teilchen pro cm^2 entspricht, benötigte Zeit lässt sich abschätzen mit (angenommen wurde T = 300 K und als Restgaspartikel Kohlenstoffmonoxid M = 28):

$$t = \frac{1.7 \times 10^{-6}}{p \cdot S} [s] \tag{3.2}$$

Dabei ist auch der Haftkoeffizient S ($0 \leq S \leq 1$) berücksichtigt, welcher die Wahrscheinlichkeit dafür angibt, ob ein Restgaspartikel an der Oberfläche auch haften bleibt bzw. adsorbiert wird. Für einen Haftkoeffizient von Eins, was bei tief heruntergekühlten Proben gerechtfertigt ist, wäre die Wiederbelegungszeit bei einem Druck von 10^{-6} mBar nur etwa 1.7 Sekunden. Um eine Probe etwa 10 Stunden lang vermessen zu können, muss demnach ein Druck im unteren 10^{-11} mBar-Bereich erreicht werden (Ultrahochvakuum).

Um ein niedriges Ultrahochvakuum (10^{-7}–10^{-12} mBar) zu erreichen, sind mehrere Dinge zu beachten. Zuallererst muss die Vakuumkammer bestmöglich abgedichtet sein. Daher sind alle Flanschverbindungen kupfergedichtet (nach ConFlat-Standard). Zudem wurde bei allen verbauten Komponenten - wie Messinstrumente, Fenster und Durchführungen - darauf geachtet, dass sie eine möglichst geringe bis keine Leck-Rate aufweisen. Gepumpt wird die Kammer mit einer Vielzahl unterschiedlicher Pumpen und Pumpentypen, welche in Tabelle 3.1 aufgelistet sind. Eine detaillierte Funktionsbeschreibung der verwendeten Pumpen und Pumpentypen kann in [Voss11] gefunden werden.

Pumpenname Typ	**Hersteller**	**Flansch** (CF)	**Saugleistung** [l/s]		**Kompressions-Verhältnis**	**Nr. in Abb. 3.1**
HiPace80 Turbomolekularpumpe	Pfeiffer	64	N_2 H_2	67 48	> 1 x 10^{11} 1,4 x 10^5	1
HiPace300 Turbomolekularpumpe	Pfeiffer	160	N_2 H_2	260 220	> 1 x 10^{11} 9 x 10^5	2
TMU520 Turbomolekularpumpe	Pfeiffer	160	N_2 H_2	500 480	> 1 x 10^{12} 5 x 10^6	3
GP-500 MK5 Getterpumpe (NEG)	SEAS Getters	160	N_2 H_2	- 1900	-	4
TSP 9190180 Titansuplimationspumpe mit Cryopanel (919-0180)	Agilent	200	N_2 H_2	555 1760	-	5

Tabelle 3.1: Auflistung der verwendeten Pumpen an der Streukammer.

Das Endvakuum hängt dabei nicht nur von der Pumpleistung und der Leck-Rate ab (Permeation[38] und Lecks) sondern zusätzlich von der Desorptionsrate (Abgasrate) von Oberflächen innerhalb der Vakuumkammer. Es ist daher erforderlich, möglichst ausschließlich Materialien mit einem niedrigen Dampfdruck und geringen Ausgasraten zu verwenden. Dazu zählen zum Beispiel Edelstahl (304L/316L/316LN-ESU), Molybdän, Tantal, Keramiken sowie sauerstoffarmes Kupfer. Zusätzlich müssen die eingesetzten Materialien sowie die Konstruktionen die Temperaturen während des Ausheizvorganges von ca. 150°C

[38] Permeation: Dichtungen und sogar Metallwände können von kleinen Gasmolekülen, wie z.B. Helium, durch Diffusion durchdrungen werden. Details siehe [Pfei13].

unbeschadet überstehen. Dieses Ausheizen ist nötig, um die Desorptions- und Diffusionsraten stark zu erhöhen [Pfei13], wodurch die Oberflächen gereinigt werden und die nötige Abpumpzeit deutlich verkürzt wird. Die verwendete Streukammer wurde entsprechend bei jeder Strahlzeit knapp 7 Tage lang ausgeheizt, wodurch ein Endvakuum von 6 x 10^{-11} mBar in der Streukammer erreicht werden konnte. Der Verlauf eines Ausheizvorgangs ist in Anhang A.2.1 *Ausheizvorgang* auf Seite 153 gezeigt. Bei Messungen mit gekühltem Kryostat wirkt dessen Oberfläche zusätzlich wie eine Kühlfalle (Kryopumpe), wodurch das Vakuum weiter auf 2.55 x 10^{-11} mBar verbessert wird. Der Enddruck kann vereinfacht ausgedrückt werden mit:

$$Enddruck[mbar] \propto \frac{Desorptionsrate\left[\frac{mbar\,l}{cm^2\,s}\right]\cdot Fläche[cm^2] + Leckrate\left[\frac{mbar\,l}{s}\right] + Permeationsrate\left[\frac{mbar\,l}{s}\right]}{Saugleistung_{effektiv}\,[l/s]}$$

Sobald ein ausreichendes Vakuum in der Streukammer erreicht wurde, muss darauf geachtet werden, dass es beim Einsetzen bzw. Austauschen der Proben nicht kontaminiert wird. Dies wird durch das zweistufige Probenpräparationssystem sichergestellt.

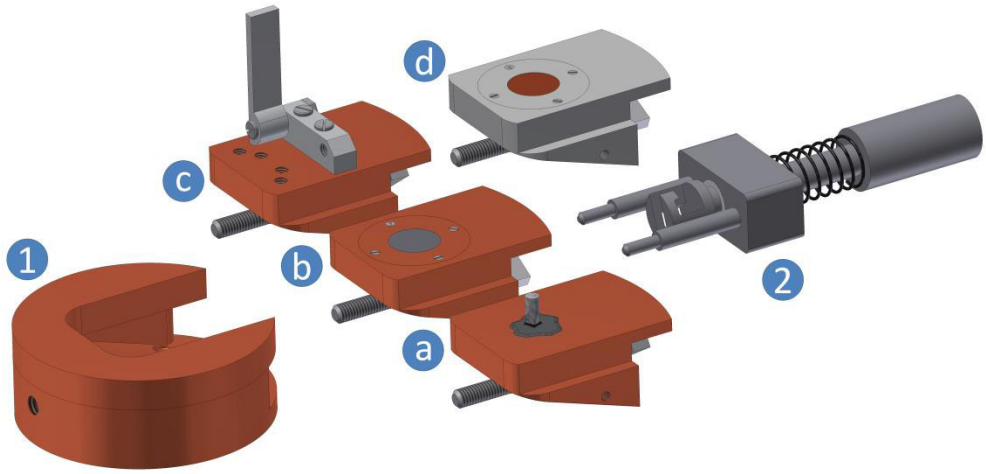


Abbildung 3.2: Die unterschiedlichen Proben sind auf sog. Schlitten befestigt (a,b,c und d), welche mithilfe einer speziellen Greifvorrichtung (2) zwischen Docks (1) transferiert werden können. Für die verschiedenen Proben bzw. Aufgaben gibt es spezielle Schlittentypen: a) blanke Kupferschlitten zum Aufkleben von Kuprat-Hochtemperatursupraleiter-Proben, b) Kupferschlitten für Blei-Einkristalle, c) Spezialschlitten zum Bestimmen des Arbeitsabstands. Dabei kann der sog. Zeiger ein- und ausgeklappt werden, damit der Schlitten durch die CF40-Verbindungsrohre transferiert werden kann. d) Titanschlitten für Kupfer-Einkristalle.

3.3 Probenpräparationssystem

Um die für die Messungen erforderliche Probenqualität zu gewährleisten, musste ein komplexes Probenpräparationssystem entworfen und aufgebaut werden, dessen Funktion am Beispiel eines Probeneinbaus erklärt werden soll (*Vergleiche Abbildung 3.3 rechts*):

Die Proben befinden sich in diesem Experiment auf unterschiedlichen sogenannten Schlitten, welche sich mit Hilfe von Transferstangen im Vakuum transferieren lassen (Details siehe Abbildung 3.2 auf Seite 45). Im ersten Schritt wird der benötigte Schlitten in das sog. Loading Dock eingebaut, welches nur KF (Kleinflansch-Schnellverbindung) gedichtet ist, wodurch der Ein- und Ausbau der Schlitten sehr schnell erfolgen kann (< 5 Minuten). Ist das Loading Dock wieder verschlossen, wird es mithilfe eines Pfeiffer HiCube 80 Eco[39] auf einen Enddruck von weniger als 5×10^{-7} mBar abgepumpt, was in der Regel etwa 20 Minuten dauert. Ist der Enddruck erreicht, wird das Ventil zur Präparationskammer geöffnet und der Schlitten mithilfe einer elastomergedichteten Dreh-/Schiebedurchführung auf einen freien Platz im Probenhalterdock (Details siehe Abbildung 3.6 auf Seite 51) transferiert. Der Druck in der Präparationskammer steigt während dieses Vorgangs von 5×10^{-10} mBar auf meist etwas unter 7×10^{-8} mBar an und braucht knapp eine Stunde, um den vorherigen Wert wieder zu erreichen, nachdem das Ventil geschlossen wurde. Abhängig von der Probe kann diese nun in der Präparationskammer präpariert werden. Dazu stehen eine Ionenkanone (1) (ICE 11/35 von *Specs*) zum Absputtern der obersten Atomlagen bzw. Adsorbate sowie eine Elektronenstoßheizung (2), welche die Schlitten und somit auch die Proben auf bis zu 550°C erhitzen kann, zu Verfügung. Das Vakuum kann währenddessen mit einem Heißkatoden-Ionisations-Vakuummeter (ITR 90 von *Leybold*) nach dem Bayard-Alpert-Prinzip und die Probentemperatur mit einem zuvor kalibrierten Referenz-Platintemperaturmesselement (Typ PT-1000) überwacht werden. Ist die Probe fertig präpariert, kann sie mithilfe einer magnetisch gekoppelten Dreh-/Schiebedurchführung in die Streukammer transferiert werden, in der ein Vakuum von $< 3 \times 10^{-11}$ mBar herrscht. Wieder steigt das Vakuum bei diesem Vorgang um ca. eine Größenordnung auf etwas unter 5×10^{-10} mBar an und benötigt etwa 30 Minuten, um wieder den vorherigen Wert zu erreichen. In der Streukammer befindet sich der jeweils benötigte Schlitten dann am Ende des mit Flüssig-Helium betriebenen Durchfluss-Kryostaten (4) (RC102 von *Cryophysics*), mit dessen Hilfe sich der Schlitten bzw. die Probe auf unter 20 K herunterkühlen lässt. Zur Temperaturmessung ist eine Siliziumdiode (5) (DT-670-CU-HT, kalibriert von 1.4K bis 325K von *LakeShore*) am Kryostaten befestigt. Zur genaueren Temperaturregelung ist eine Gegenheizung (6) (Widerstandsheizdraht aus Nickel-Chrom, der um den Kryostat gewickelt ist) angebracht. Für die Überwachung des Vakuums stehen in der Streukammer eine ITR 90 Messzelle, ein Quadrupol-Massenspektrometer (Microvision Plus von *MKS Instruments*) sowie eine Extraktorröhre (IM 540 von *Ionivac*) für Vakua bis zu 10^{-12} mBar zur Verfügung. Zum Brechen von Kuprat-Hochtemperatursupraleiter-Proben ist ein sogenannter *Wobble-Stick*[40] (3) in der Streukammer eingebaut. Zur Ausrichtung der Probe ist der gesamte Kryostat durch eine Drehdurchführung (theoretisch 360°, jedoch effektiv nur ±30° aufgrund der befestigten Anschlüsse) drehbar gelagert sowie durch einen XYZ-Manipulator verschiebbar.

[39] Kompakter Pumpstand mit kleiner Turbo-Pumpe (HiPace 80) und trockener Membran-Vorpumpe (Enddruck < 1×10^{-7} mBar | Saugvermögen für N_2 67 l/s).

[40] *Wobbel-Stick*: Kupferarm in der Kammer, der durch einen Wellbalg von außen bewegt werden kann.

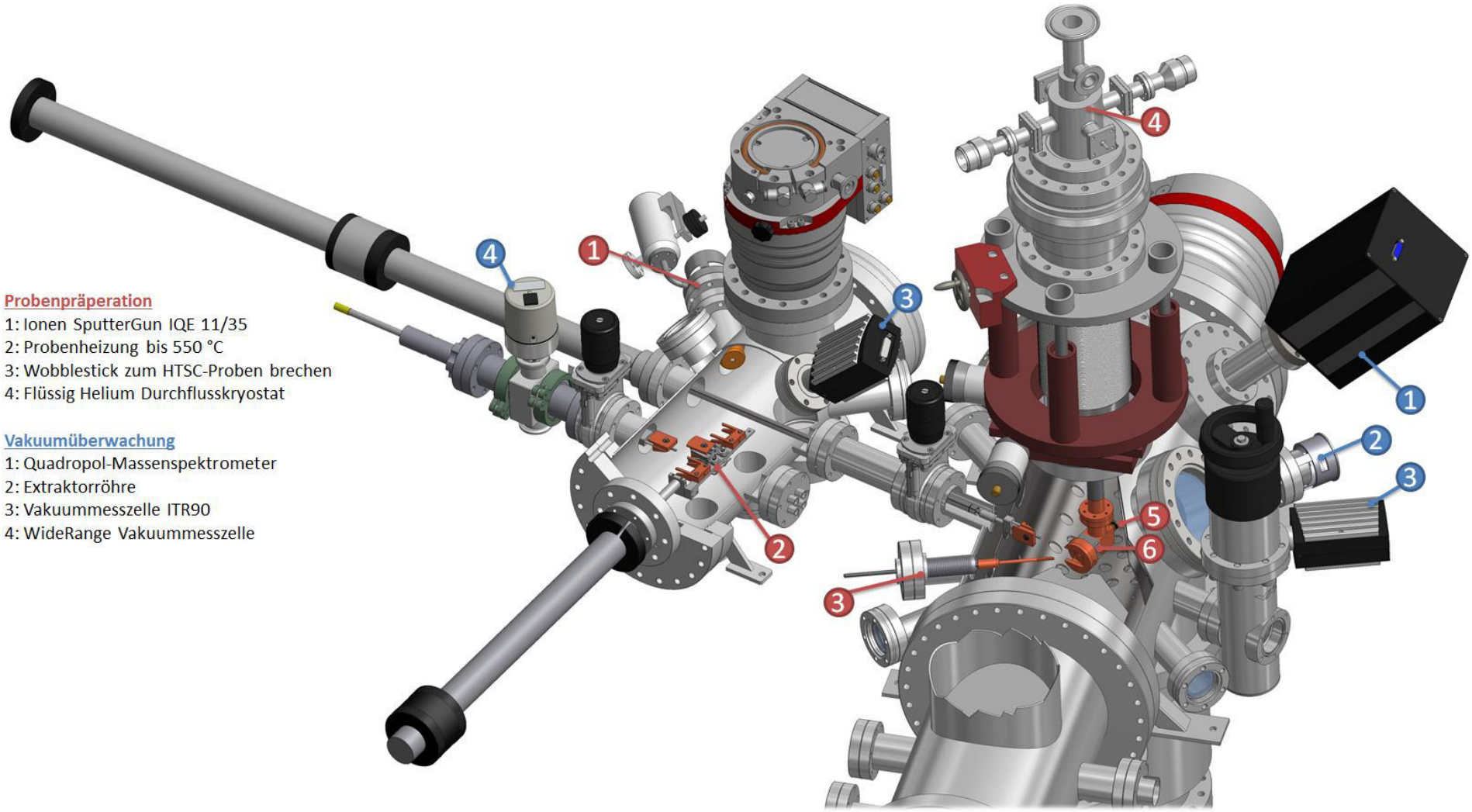


Abbildung 3.3: Übersicht des Probensystems. Mit Transferstangen können die Proben welche sich auf Schlitten befinden zwischen der Präperationskammer und der Streukammer transferiert werden.

3.3.1 Probenherstellung (Dünne Filme)

Die meisten Bi2212-Proben wurden in der Gruppe von Amit Kanigel[41] am Technion (Haifa, Israel) hergestellt. Im Folgenden soll die Herstellung von dünnen Bi2212-Filmen kurz vorgestellt werden.

Ausgangspunkt dafür sind die einzelnen Bestandteile (Bi: Bismut, Sr: Strontium, Ca: Calcium und Cu: Kupfer) in Pulverform (Bi_2O_3, $SrCO_3$, $CaCO_3$, CuO), welche im richtigen Verhältnis (Bi 2 : Sr 2 : Ca 1 : Cu 2) zusammengemischt, gemörsert und fein gemahlen werden. Das entstandene Pulver wird in einem Ofen für ca. 24 Stunden auf eine Temperatur knapp unterhalb des Schmelzpunktes erhitzt (790 °C). Dadurch wird die Beweglichkeit der Atome erhöht und sie versuchen die energetisch günstigste Verteilung in Clusterform, welches dem idealen Verhältnis entspricht, zu erreichen. Die Prozedur des Mörserns, fein Mahlens und Erhitzens wird insgesamt noch zweimal mit einer schrittweisen Erhöhung der Temperatur (810 °C, 830 °C) wiederholt. Dadurch soll erreicht werden, dass sich das Pulver mit jeder Wiederholung homogener nach dem idealen Verhältnis verteilt. Anschließend wird das Pulver unter einem Druck von 15 Tonnen zu einem Pellet zusammengepresst, welcher anschließend für mindestens eine Woche bei 850 °C gesintert wird.

Das Pellet dient im nächsten Schritt als Material-Reservat (*Target*) für den zu züchtenden Bi2212-Film. Dazu gibt es zwei unterschiedliche Techniken, deren Funktionsweisen sich sehr ähneln. Bei beiden Techniken wird der Bi2212-Film auf einem Substrat ($LaAlO_3$[42]) gezüchtet, indem das heiße Substrat (ca. 910 °C) mit den atomaren Bestandteilen aus dem Pellet beschossen wird. Da das Substrat eine Kristallstruktur besitzt, welche in etwa der von Bi2212 entspricht (Gitterkonstante), und die Atome auf dem heißen Substrat sehr beweglich sind, bauen diese einen Bi2212-Film bzw. eine sehr dünnen Kristallschicht auf, was dem energetisch günstigsten Zustand entspricht. Der Unterschied zwischen den beiden Techniken liegt in der Erzeugung des atomaren Beschusses vom Pellet auf das Substrat. Bei der sogenannten Laserablation (oder Laserverdampfung) wird das Pellet mit einem gepulsten, sehr intensiven Laser[43] beschossen, wodurch es bei richtig gewählten Parametern zu einer Plasmaexplosion/-flamme kommt, welche auf das Substrat gerichtet ist. Bei der anderen Technik, dem sogenannten Plasma-Sputtern, wird zwischen Substrat und Pellet, welche sich gegenüberliegen, eine Spannung von ca. 390 V angelegt und Sauerstoff in die Präparationskammer eingelassen. Sind die Parameter richtig gewählt (Druck und Spannung), zündet ein Plasma, welches den Sauerstoff ionisiert. Die Sauerstoff-Ionen werden dann auf das auf einem Potential von -390 V liegende Pellet beschleunigt, wo diese beim Aufprall Atome aus dem Pellet ausschlagen.

Das Plasma-Sputtern führt öfter zu homogeneren Filmen als die Laserablation, weshalb für die vorliegende Arbeit auf diese Art hergestellte Proben gewählt wurden. Die Laserablation ist demgegenüber deutlich flexibler, so dass z.B. dünne Filme aus mehreren unterschiedlichen Schichten (bei der Verwendung von unterschiedlichen Pellets) zusammengesetzt werden können. Zudem lassen sich die Schichtdicken genauer einstellen.

---

[41] Technion ARPES Lab – http://physics.technion.ac.il/~arpes.

[42] $LaAlO_3$ wird oft als Substrat gewählt, da es relativ inert gegen Sauerstoffverbindungen ist, günstige dialektische Eigenschaften besitzt und allgemein gut kommerziell verfügbar ist. Alternative Substrat-Materialien für Bi2212 sind MgO oder $SrTiO_3$.

[43] Laser Parameter: 3 Harmonischen ND:YAG, Wellenlänge: 350nm, Repetitionsrate: 10Hz, Pulsdauer: 5ns, Leistung: 1 Watt.



Abbildung 3.4: Links) Die einzelnen Bestandteile in Pulverform. Mitte) Der gepresste Pellet beim Sintern. Rechts) Ein Substrat (1x1 cm) mit aufgesputterten Bi2212-Film.

Bei beiden Techniken wird die Sauerstoff-Dotierung durch Einlassen von Sauerstoff in die Präparationskammer gesteuert. Wichtige Parameter dabei sind die Probentemperatur (für ideale Dotierung ca. 450 °C), der Sauerstoffdruck (ca. 500 mBar) und die Dauer (ca. 40 Minuten). Die Dotierung kann anschließend zum Beispiel durch die Messung der Sprungtemperatur [PTBL91], wie in Abbildung 3.5 gezeigt, oder direkt in den ARPES-Messungen durch das vermessen der Fermifläche [MSLL05] kontrolliert werden.

Eine detaillierte Übersicht zur Herstellung dünner Kuprat-Hochtemperatursupraleiter-Filme ist beispielsweise in dem Artikel von Y. Mai und H. L. Luo zu finden [LuMa90].

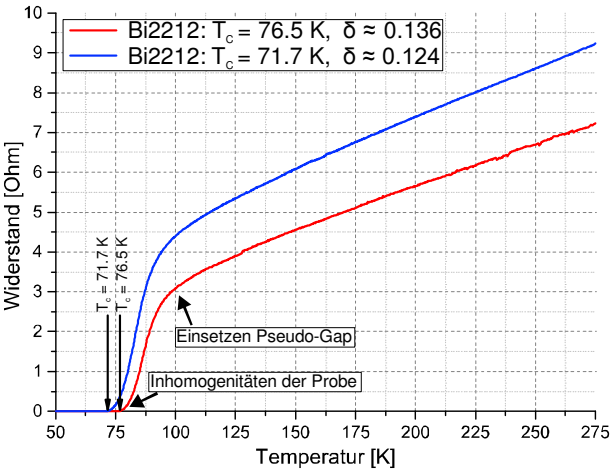


Abbildung 3.5: RT-Messung für zwei hergestellte Bi2212-Proben mit unterschiedlicher p-Dotierung. Der schnellere Abfall des Widerstands unterhalb von ca. 100 K kann durch das Einsetzen des Pseudogap erklärt werden [LGSS10]. Das Abflachen der Kurve zum Schluss wird durch Inhomogenitäten in der Probe verursacht.

3.3.2 Probenpräparation

Ziel der Probenpräparation ist es, eine saubere Oberfläche für die Messung bereitzustellen. Dazu gibt es bei diesem Experiment grundsätzlich zwei Prozeduren, die von der jeweiligen Probenart abhängig sind:

Einkristallproben

Die Bleikristall- (Pb111) und Kupferkristallproben (Cu111), welche der Charakterisierung des Experiments dienen, können in der Präparationskammer außerhalb der Streukammer präpariert werden. Dazu werden sie zuerst mit schnellen Argonionen beschossen (Strahlstrom ca. 7µA/cm^2)[44], wodurch Adsorbate bzw. die obersten Atomlagen abgetragen

[44] Die Argonionen stammen dabei aus einer Ionenkanone (IQE 11/35 von *Specs*) und treffen im 45°-° Winkel auf die Oberfläche.

werden (Sputtern). Sind nach einer gewissen Zeit sämtliche Adsorbate von der Oberfläche entfernt, bleibt eine sehr raue Oberfläche zurück. Um wieder eine gleichmäßig glatte Oberfläche zu erhalten, werden die Proben anschließend getempert (anealed)[45]. Dadurch wird die Beweglichkeit der einzelnen Atome erhöht und sie setzen sich wieder zu einem geordneten Gitter zusammen, da dies dem energetisch günstigsten Zustand entspricht [MMCM82]. Die genau verwendeten Prozeduren sind in Tabelle 3.2 kurz zusammengefasst:

	Blei, Pb(111)	Kupfer, Cu(111)
Argon, kinetische Energie	1000 eV	500 eV
Argon, Strahlstrom	ca. 7 µA/cm²	ca.7 µA/cm²
Argon, Beschussdauer	15 min	15 min
Ausheiztemperatur	150 °C	550 °C
Schmelzpunkt (poly)	327,5 °C	1085 °C
Ausheizdauer	> 3 h	> 4 h
Typische Verunreinigungen	Kohlenstoff Sauerstoff Stickstoff Wasserstoff	Kohlenstoff Sauerstoff Schwefel teilw. Chlor/Stickstoff

Tabelle 3.2: Übersicht über die verwandten Probenpräparationsprozeduren. Teilweise entnommen aus [MMCM82].

Dünne Filme und Kristalle (Bi2212 und Y123)

Eine saubere Oberfläche lässt sich bei Bi2212 ($Bi_2Sr_2CaCu_20_8$) und Y123 ($YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$) durch Brechen bzw. Spalten der Probe erreichen (*cleaving*). Dazu wird die Probe mit einer Seite auf einen Kupferschlitten geklebt[46], bevor auf der anderen Seite der Probe ein kleiner Aluminium-Pin[47] aufgeklebt wird (siehe Abbildung 3.6). Sofern dabei ein isolierender Kleber verwendet wird (z.B. TorrSeal), muss die Probe mit Hilfe von Graphit-Spray geerdet werden. So präpariert, kann die Probe in die Streukammer transferiert werden, wo sie zunächst heruntergekühlt[48] wird, bevor sie mit Hilfe eines beweglichen Arms, eines sog. *Wobble-Sticks*, durch einen Druck auf den Aluminium-Pin gebrochen wird.

Bi2212 hat dabei die sehr vorteilhafte Eigenschaft, dass es nahezu ausschließlich sauber entlang der Bi-O-Ebene bricht, was wichtig ist, um reproduzierbare Ergebnisse zu erhalten. Grund dafür ist, dass die Bi-O-Ebenen nur durch Van-der-Waals-Kräfte mit einer Bindungslänge von 3.8 Å gebunden sind, was mit Abstand die schwächste Bindung im Kristall ist. Eine genauere Beschreibung der Bruch-Eigenschaften von Bi2212 ist beispielsweise in [LSDS94] zu finden.

[45] Ausheilen von Kristalldefekten durch kontrolliertes Erhitzen über eine definierte Zeitspanne. Geheizt werden die Proben mit einer selbstkonstruierten Elektronenstoßheizung (siehe Abbildung 3.6 auf Seite 51).

[46] Als Kleber kommt entweder Silberleit-Epoxidkleber (E-Solder 3021 von *Epoxy Produkte*) oder Epoxidkleber (TorrSeal von *Varian*) zum Einsatz. Silberleit-Epoxidkleber bietet den Vorteil, dass die Proben automatisch geerdet werden und er die bessere Wärmeleitfähigkeit besitzt, wohingegen mit TorrSeal die Erfahrung gemacht wurde, dass er besser haftet und häufiger zu erfolgreichen Brüchen führt.

[47] Aluminium-Pins werden aufgrund der einfachen Bearbeitung (Form auf die Probe anpassen) und des geringen Gewichts (weniger unbeabsichtigtes Brechen beim Bewegen) gewählt.

[48] Für Messungen bei tiefen Temperaturen ist es sehr wichtig, dass die Probe im kältesten Zustand gebrochen wird, um so die Verschmutzung durch Adsorbate zu minimieren.

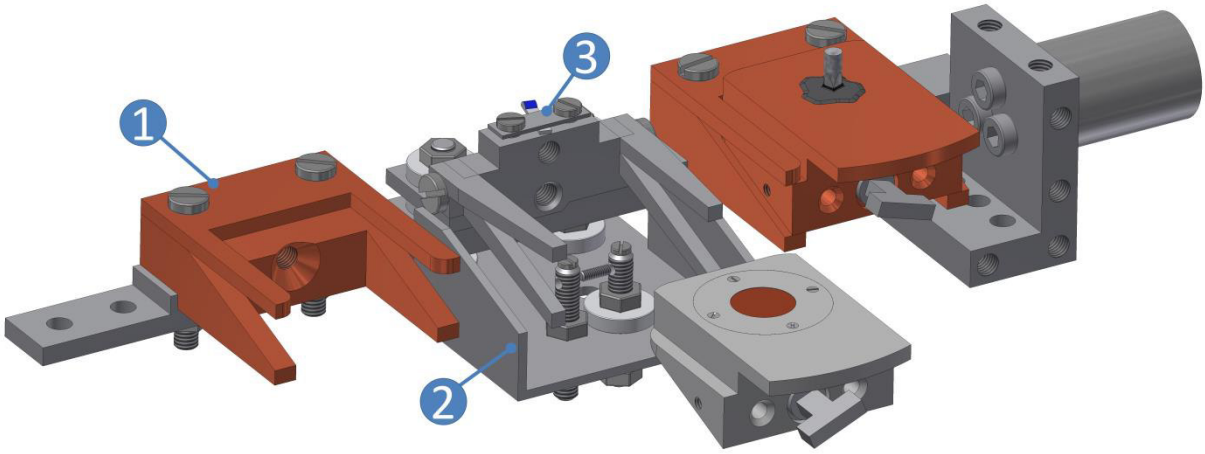


Abbildung 3.6: Das Probenhalterdock in der Präparationskammer bietet Platz für bis zu drei Schlitten (1). Dabei verfügt der mittlere Platz gleichzeitig über eine Elektronenstoßheizung (2), welche die Schlitten bzw. Proben mit einer Heizleistung von bis zu 8 Watt auf max. 550 °C erhitzen kann (Dauer ca. 15 Minuten). Die Temperatur kann dabei an einer zuvor kalibrierten Referenzposition mit einem Platintemperaturmesselement (PT-1000) überwacht werden (3).

Als guter Indikator für einen erfolgreichen Bruch der Bi2212- und Y123-Proben hat sich die Intensität der Bismuth-Innerschalenzustände bei Photoemissionsmessungen bewährt (siehe 5.2.1 *Einstellung und Kalibrierung* auf Seite 96). Eine Kontrolle der Oberfläche erfolgt anschließend ebenfalls direkt in den Photoemissionsmessungen durch das Aufzeichnen der Fermifläche. Die bei ARPES-Messungen üblicherweise zur Kontrolle von Oberflächen eingesetzte LEED-Technik (*Low Energy Electron Diffraction*) wird bei Kuprat-Hochtemperatursupraleitern meist nur zur kristallographischen Orientierung eingesetzt, welche bei dem verwendeten Flugzeitspektrometer (3.5 *Spektrometer*) nicht erforderlich ist.

3.4 Synchrotronstrahlung

Für das Experiment müsste die Probe im Idealfall mit einzelnen Photonen einer genau einstellbaren Energie (im VUV-Bereich[49]) am immer gleichen Ort und zu einem exakt bekannten Zeitpunkt beschossen werden. Wie versucht wird, diesen Idealfall an Synchrotron-Großforschungsanlagen zu erreichen, soll zunächst kurz theoretisch und anschließend am praktischen Beispiel dieser Arbeit erklärt werden.

3.4.1 Theorie

Beschleunigte Ladungen emittieren elektromagnetische Strahlung, die sogenannte Bremsstrahlung. Die abgegebene Leistung P eines Teilchens mit Ladung q und Ruhemasse m_0, das sich auf einer Kreisbahn mit der Energie E bewegt, ist gegeben durch [BeGr90]:

$$P = \frac{2q^2c}{3R^2}\frac{E^4}{(m_0c^2)^4} \tag{3.3}$$

Die Leistung ist demnach stark abhängig von der Masse ($1/m^4$) und der Energie (E^4) des geladenen Teilchens. Aus diesem Grund werden Elektronen oder Positronen, als die leichtesten geladenen Teilchen, eingesetzt und auf Energien von einigen GeV (1.72 GeV BESSY II, 2.75 GeV SOLEIL) beschleunigt.

[49] Vakuum-Ultraviolett-Strahlung: Wellenlänge 5 bis 190nm entspricht etwa 6 bis 250eV.

Verbunden mit der hohen Energie und der somit relativistischen Geschwindigkeit der Elektronen (299.792,44 km/s oder 99,999.995% der Lichtgeschwindigkeit) ändert sich das Abstrahlverhalten von einer Dipolverteilung um die Beschleunigungsrichtung (v << c) zu einem engen Kegel in Vorwärtsrichtung (tangential zur Kreisbahn), wie in Abbildung 3.7 dargestellt.

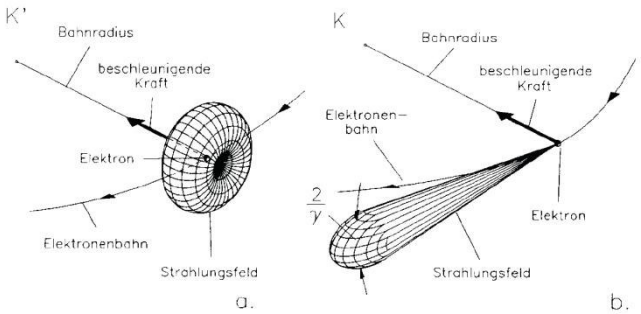


Abbildung 3.7: Abstrahlcharakteristik einer bewegten Ladung für die Fälle Links: v << c und Rechts: v ≈ c. Entnommen aus [Klau96].

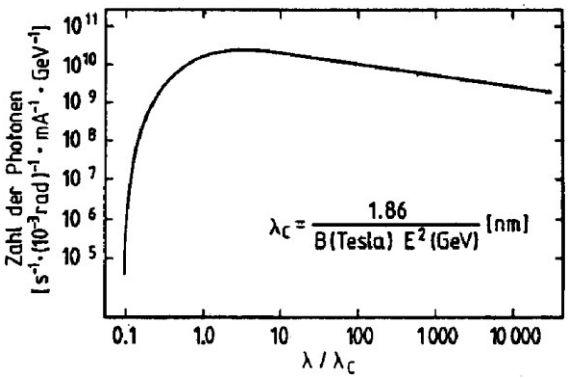


Abbildung 3.8: Intensität der Synchrotron-Strahlung über einen weiten Wellenlängenbereich. Entnommen aus [Hüfn03].

Der Öffnungswinkel des Stahlkegels ist dabei gegeben durch [BER]:

$$\theta = \sqrt{1-\beta^2} = \frac{m_0 c^2}{E} \tag{3.4}$$

Das Maximum der spektralen Verteilung (siehe Abbildung 3.8) befindet sich bei einer Wellenlänge von:

$$\lambda_c = \frac{4}{3}\pi R \left(\frac{m_0 c^2}{E}\right)^3 \tag{3.5}$$

3.4.2 Synchrotronanlagen

Bei Synchrotronanlagen handelt es sich um Großforschungsanlagen, in denen Elektronen in mehreren Stufen auf eine Energie von einigen GeV beschleunigt werden und anschließend in einem Elektronenspeicherring gespeichert werden. Der Aufbau wird im Folgenden für die beiden für diese Arbeit besuchten Synchrotronanlagen BESSY II in Berlin und SOLEIL in Paris beschrieben:

1. Die benötigten Elektronen werden in einer gepulsten[50] Elektronenkanone mit Hilfe einer Glühkatode erzeugt und verlassen diese mit 90 keV und 600 mA (90 keV und 600 mA).

2. Ein Linearbeschleuniger (bis 04/2013 ein Microtron) beschleunigt die einige hundert Picosekunden langen Elektronenpakete auf 50 MeV (100 MeV), wobei diese auch zeitlich komprimiert werden (<100 ps / <70 ps FWHM), und injiziert die Elektronenpakete anschließend in das Booster-Synchrotron.

[50] Die Elektronenkanone wird mit 500 MHz gepulst, was in Kombination mit dem Ringumfang (240 m) und der Geschwindigkeit im Elektronenspeicherring die maximale Anzahl der Elektronenpakete (400) definiert.

3. Im Booster-Synchrotron werden die Elektronenpakete mit Hilfe von Magneten auf einer genäherten Kreisbahn gehalten und in den geraden Zwischenstücken durch hochfrequente Wechselfelder, die in Hohlraumresonatoren eingekoppelt werden, auf ihre Endenergie von 1.72 GeV (2.75 GeV) weiterbeschleunigt.

4. Anschließend können die Elektronenpakete in den großen Elektronenspeicherring injiziert werden. Um den vollen Strahlstrom zu erreichen (20 – 200 mA) muss dieser Vorgang mehrmals wiederholt werden. Zur Vermeidung der Abnahme des Strahlstroms, bedingt durch Kollisionen der Elektronen mit dem Restgas, kann bei modernen Synchrotronanlagen durch fortlaufendes Injizieren von Elektronenpaketen, dem sog. TOP-UP-Modus, der Strahlstrom konstant gehalten werden.

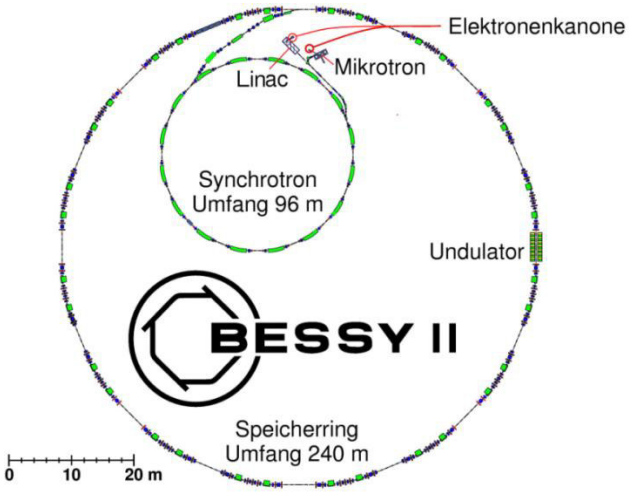


Abbildung 3.9: Übersichtsskizze BESSY II. Das Mikrotron wurde in der letzten Ausbaustufe durch einen Linearbeschleuniger (Linac) ersetzt. Vorlage entnommen von [BESSY].

Der Elektronenspeicherring besteht im Wesentlichen aus elektronenoptischen Komponenten (Magneten), Hohlraumkavitäten sowie speziellen, Synchrotronstrahlung erzeugenden Elementen:

- **Elektrooptische Komponenten**
  Bei den elektrooptischen Komponenten handelt es sich im Einzelnen um 32/32 Dipolmagnete zum Erreichen der genähert kreisförmigen Umlaufbahn, 144/160 Quadrupolmagnete zur Kompensation der Strahlaufbreitung (Fokussierung) und 112/120 hinter den Quadrupolmagneten montierte Sextupolmagnete, welche im Prinzip dazu dienen, Abbildungsfehler der Quadrupolmagnete zu korrigieren[51].

- **Hohlraumkavitäten** (*High Harmonic RF Cavities*)
  In den Hohlraumkavitäten kann den durchfliegenden Elektronen durch Einkoppeln einer Hochfrequenz wieder Energie zugeführt werden, welche sie durch das

[51] Die Fokuslänge eines Quadropolmagneten ist energieabhängig, es tritt also eine unerwünschte Dispersion auf. Setzt man nun einen Sextupolmagneten dahinter (an eine Stelle mit nicht Null-Dispersion), kann dieser so eingestellt werden, dass die Fokuslänge für einen geeigneten Energiebereich identisch ist. Somit wird die Eigenschaft des Quadropols, den Strahl auszuweiten, wieder ausgeglichen. Als Faustformel gilt: Beim Quadropol hängt die Fokuslänge proportional vom Abstand zur Strahlachse ab, wohingegen die Fokuslänge beim Sextopol inversproportional zum Abstand steigt.

Abstrahlen von Synchrotronstrahlung verloren haben. Ebenfalls lassen sich durch diese Hohlraumkavitäten Strahleigenschaften wie die Elektronenpaketbreite und die Lebenszeit optimieren bzw. beeinflussen. Es findet ebenfalls eine Landau-Dämpfung[52] statt.

- **Synchrotronstrahlung erzeugende Elemente** (*Insertion Device: ID*)
  Neben der Entstehung von Synchrotronstrahlung an den Dipolmagneten werden auch Undulatoren bzw. Wiggler zur Synchrotronstrahlerzeugung eingesetzt. Dabei handelt es sich um eine periodische Anordnung von Ablenkmagneten mit wechselnder Polarität (siehe Abbildung 3.10). Durchfliegt ein Elektronpaket diese Anordnung, wird es auf eine Art Schlangenbahn gezwungen und strahlt dadurch Synchrotronstrahlung ab. Wählt man die magnetischen Feldstärken B sehr gering und den Abstand der alternierenden Feldbereiche klein, so dass die Elektronen nur noch sehr wenig abgelenkt werden, wird die Synchrotronstrahlung immer mehr in Vorwärtsrichtung emittiert. Ist sie beinahe parallel zur Flugrichtung, kommt es zu einer kohärenten Überlagerung der Photonen und damit auch zu konstruktiver Interferenz für bestimmte Wellenlängen und ihrer höheren Harmonischen [Hatt04]. In diesem Fall spricht man von einem Undulator. Das Licht ist dabei linear polarisiert, abhängig von der Orientierung des Undulators. Durch das Hintereinanderschalten von zwei Undulatoren, wobei der zweite um 90° gegen den ersten gedreht ist, können durch kohärente Überlagerung die Polarisationseigenschaften der nutzbaren Synchrotronstrahlung beeinflusst werden. Es ist dadurch möglich, den Polarisationsvektor von linear polarisiertem Licht beliebig zu drehen sowie zirkular- oder elliptisch-polarisiertes Licht zu erzeugen.

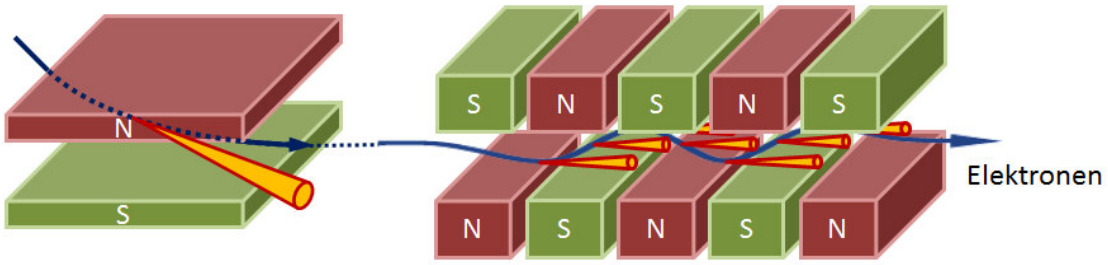


Abbildung 3.10: Schematische Darstellung eines Umlenkmagneten (links) und eines Undulators (rechts).

Für Experimente stehen den Nutzern an Synchrotronanlagen sogenannte Strahlrohre (*Beamlines*) zur Verfügung. Diese haben entweder eigene, Synchrotronstrahlung erzeugende Komponenten im Ring (*Insertion Device Beamlines*, kurz: ID) oder nutzen die Synchrotronstrahlung direkt von Ablenkmagneten (*Dipole Beamlines*). Hauptaufgabe dieser Beamlines ist es, mithilfe eines Monochromators[53] die gewünschte Photonenenergie aus dem breiten Synchrotronspektrum (siehe Abbildung 3.8) möglichst scharf zu selektieren und durch weitere optische Elemente am Nutzerexperiment, meist als möglichst kleinen

[52] Landau-Dämpfung: Langsame Elektronen nehmen mehr Energie auf als die schnellen Elektronen. Die Energien gleichen sich aneinander an.
[53] Im Monochromator wird das Licht an einem Gitter gebeugt, wo es aufgrund der Dispersion zu einer spektralen Aufspaltung kommt, so dass man mithilfe von Schlitzen die gewünschte Wellenlänge selektieren kann.

Lichtspot, zur Verfügung zu stellen[54]. Der schematische Aufbau der benutzten Pléiades Beamline am SOLEIL ist in Abbildung 3.11 erklärt.

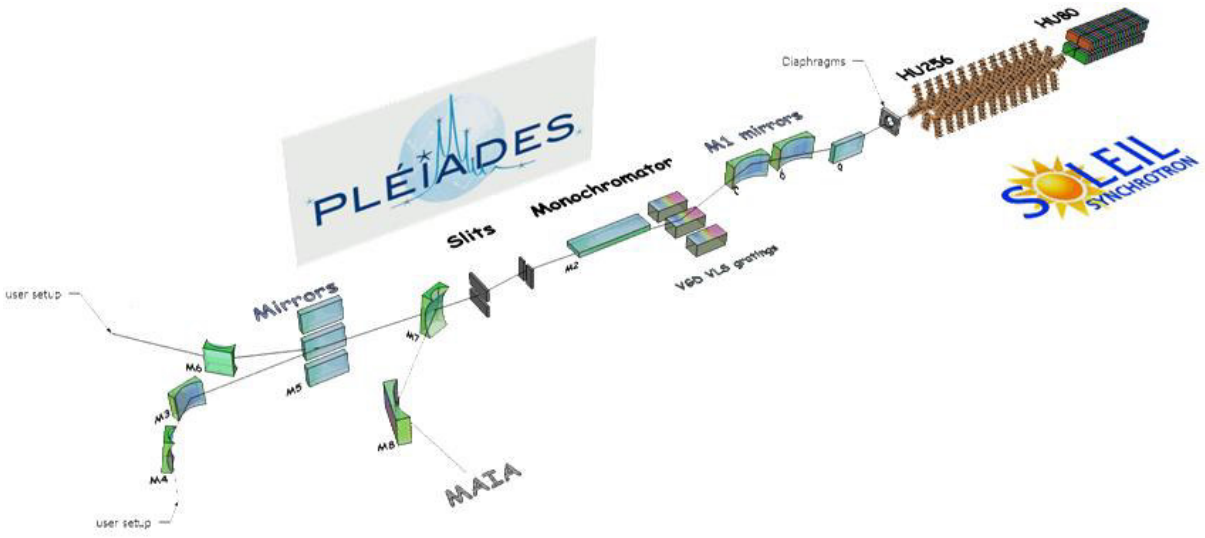


Abbildung 3.11: Schematische Darstellung des optischen Aufbaus der Pléiades Beamline am Synchrotron SOLEIL [SOLEIL]. Die Beamline verfügt über zwei Undulatoren (HU256 / HU80) im Ring, einen PGM Monochromator sowie ein optisches System, welches den Strahl an drei unterschiedliche Endstationen verteilen kann. Mit einem Diaphragma und den Schlitzen kann die Strahlintensität kontrolliert werden (oder durch Verstimmung des Undulators, erklärt in [Baue11]). Abbildung entnommen aus [Pléiades].

Die wichtigsten Parameter der besuchten Synchrotronanlagen sowie der verwendeten Beamlines sind in Tabelle 3.3 aufgelistet.

	BESSY II U125_2 SGM	SOLEIL Pléiades	
Synchrotronanlage			
Elektronenenergie [GeV]	1.72	2.75	
Strahlstrom [mA]	20	88.93	
Speicherringumfang [m]	240	354	
Umflugzeit [ns]	800	1181.40	
Bunch-Anzahl	1	8	
Bunch-Abstand [ns]	800	147.64	
Bunch-Breite FWHM [ps]	< 100	70	
Umlauffrequenz [MHz]	1.25	6.77	
Beamline			
Photonenquelle	U125-2	HU256 / HU80	
Monochromator	spherical grating	plane grating	
Polarisation	H	**H,**V **/** H, V, tilted, elliptical	
Fokus, horizontal [µm]	120	180	
Divergenz, horizontal [mrad]	4.5	2	
Fokus, vertikal [µm]	60	100	
Divergenz, vertikal [mrad]	0.6	0.6	
Energiebereich [eV]	29 - 138	10 – 40	35 – 1000
Energieauflösung (E/ΔE)	16000	15000	20000-100000

Tabelle 3.3: Auswahl der relevanten Parameter der Synchrotronanlagen im verwendeten Modus (Single- und 8-Bunchmodus) sowie der jeweils besuchten Beamlines.

[54] Die Anforderung einer besonders scharfen Energie (Energieauflösung) oder einer kleinen Spotgröße können für besondere Beamlines/Experimente abweichen, z.B. wenn nur ein hoher Photonenfluss verlangt wird.

Das letzte den Photonenstrahl beeinflussende Element, bevor das Licht auf die Proben trifft, ist eine nur ca. 150 nm dünne Aluminiumfolie, welche in das vorletzte Ventil vor der Streukammer eingebaut ist. Dort dient sie zur Unterdrückung der höheren Harmonischen[55] vom Monochromator und trennt gleichzeitig das typischerweise eher mäßige Vakuum in der Beamline (5x10^{-9} mBar bei Pléiades) von dem in der Streukammer (< 3x10^{-11} mBar).

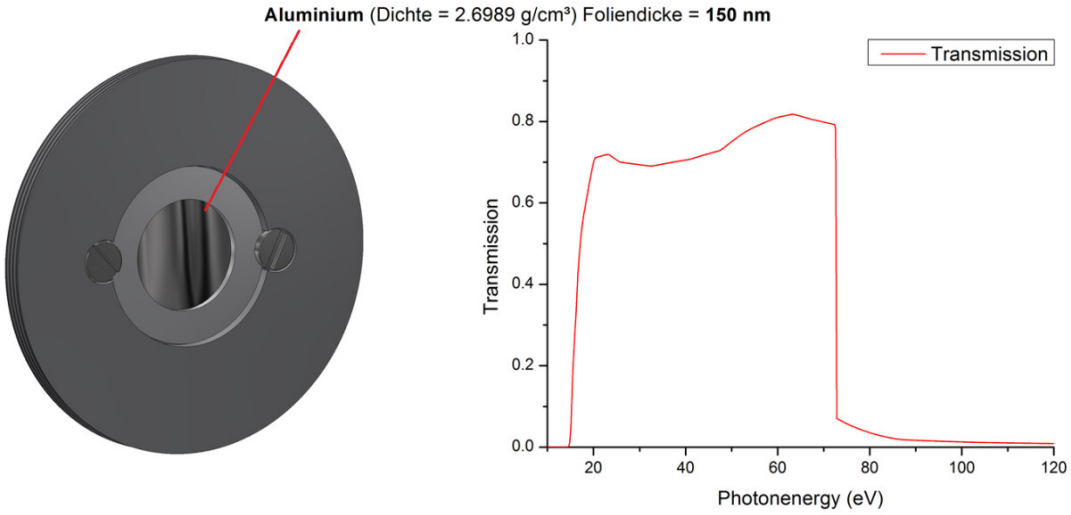


Abbildung 3.12: Links) Aluminiumfolie eingebaut im Ventileinsatz. Rechts) Transmission durch eine 150nm dicke Aluminiumfolie, abhängig von der Photonenenergie (erstellt mit [XRay]).

Um möglichst nur ein einzelnes Photon pro Photonenbunch auf die Probe zu lassen, kann der Photonenstrahl durch im Strahlgang verbaute Blenden und ein Diaphragma sehr stark beschnitten werden. Durchschnittlich kommen dann nur in jedem X-ten Photonenbunch (typisch in jedem 500sten) überhaupt Photonen auf der Probe an. Dabei handelt es sich um einen rein stochastischen Prozess, was auch in den Messungen[56] bestätigt wurde. In Abschnitt 5.3.2 *Nachweismethoden* werden die Auswirkungen dieses stochastischen Prozesses (stochastische Photonenquelle) auf die Doppelphotoemissions-Messungen im Detail diskutiert.

3.5 Spektrometer

Das Spektrometer ist das Herzstück dieses Experiments, da es über seine Eigenschaften unmittelbar die Möglichkeiten der physikalischen Messungen vorgibt. In diesem Abschnitt sollen zunächst die Vor- und Nachteile verschiedener Konfigurationen von Spektrometern für die geplanten Koinzidenzmessungen diskutiert werden, bevor anschließend das gewählte Messverfahren allgemein und das verwendete Spektrometer im Detail vorgestellt werden.

3.5.1 Koinzidenzmessungen

Experimente, welche zwei oder mehr Elektronen in Koinzidenz aus Festkörperproben nachweisen, sind aufgrund lediglich vereinzelter theoretischer Beschreibungen sowie

[55] Ein Monochromator lässt zwangsläufig zu der gewählten Energie auch ein Vielfaches dieser Energie passieren (mit geringer Intensität). Dies liegt daran, dass für die Reflektionswinkel α_n am Gitter: d sin(α_n) = n h c / E_γ gilt (n: Beugungsordnung, d: Gitterkonstante, h: Plank`sches Wirkungsquantum, c: Lichtgeschwindigkeit). Demnach ist der Reflektionswinkel identisch, solange der Quotient n/E_γ gleich ist. Details siehe [Baue11].

[56] Untersucht wurde die Häufigkeit von direkt aufeinanderfolgenden Events, wobei die für unabhängige Photonen erwartete exponentielle Abnahme beobachtet wurde.

enormer technischer Schwierigkeiten[57] nach wie vor selten. Eine kurze Übersicht zu dem Thema ist in der Arbeit von Robert Wallauer [Wall11] zu finden. Dabei unterscheiden sich die Experimente jeweils in ihrer Konfiguration. Manche Experimente verwenden zwei verschaltete herkömmliche SPE-Spektrometer, wohingegen andere Experimente eigens entwickelte Geräte einsetzen.

Für die Wahl der experimentellen Konfiguration spielt die Nachweiswahrscheinlichkeit P_c der koinzidenten Ereignisse eine entscheidende Rolle:

$$P_C \propto \frac{\Delta\Omega_1}{2\pi}\frac{\Delta\Omega_2}{2\pi} \times \Delta E_1 \Delta E_2 \times \delta_1 \delta_2 \times \Delta_{12} \tag{3.6}$$

$\Delta\Omega_{1,2}$: abgedeckter Raumwinkel
$\Delta E_{1,2}$: abgedeckter Energieausschnitt
$\delta_{1,2}$: Detektor-Detektionswahrscheinlichkeit für ein Elektron
Δ_{12}: Detektor-Detektionswahrscheinlichkeit für zwei Elektronen

Diese Formulierung gilt allgemein für die Untersuchung der Doppelphotoemission, wie beispielsweise in [Hatt04] beschrieben. Für gezieltere Untersuchungen hingegen spielt die physikalische Natur der zu messenden Koinzidenzereignisse eine wichtige Rolle. Ist zum Beispiel die absolute Emissionsrichtung und/oder die kinetische Energie beider Elektronen durch eine Theorie bekannt oder vorhergesagt, kann unter Umständen der abgedeckte Raumwinkel und/oder der Energieausschnitt nur eine untergeordnete Rolle spielen. Ein Beispiel dafür sind Augerelektronen-Messungen, bei denen sich die kinetischen Energien der beiden Elektronen gut eingrenzen lassen. In diesen Fällen kann es je nach Messtechnik sogar von Vorteil sein nur einen kleinen Energieausschnitt und/oder einen kleinen Raumwinkel abzudecken.

Bei den in dieser Arbeit untersuchten zweidimensionalen Kuprat-Hochtemperatursupraleitern ergibt sich solch ein einfaches Bild aus der Theorie für die zu messenden Koinzidenzereignisse (2.4.1 *Direkte Emission von Cooper-Paaren*). Dabei liegen die beiden Elektronen entgegengesetzt auf dem Rand einer Impulsscheibe, deren Radius ($P_\parallel$) durch die Größe der ersten Brillouin-Zone bestimmt wird (siehe 2.2.2 *Elektronische Struktur und makroskopische Supraleitung*). Dabei wird, ähnlich der $d_{x^2-y^2}$-Wellensymmetrie der Paarwellenfunktion (bzw. der Energielücke, siehe 2.2.3 *Unkonventionelle Supraleitung*), auch eine entsprechende Symmetrie der Koinzidenzereignisse erwartet. Der senkrechte Impuls ($P_\perp$) und somit auch der Emissionswinkel zur Oberflächennormalen (Theta Θ) lassen sich somit durch die Photonenenergie einstellen, wie in Abbildung 3.13 erklärt.

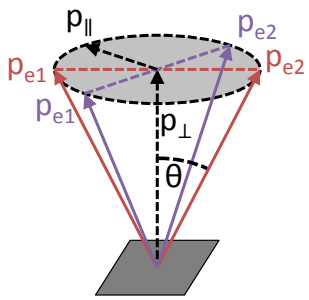


Abbildung 3.13: Die für die direkte Emission von Cooper-Paaren erwartete Emissionsgeometrie. Die beiden Elektronen liegen auf dem Rand einer Impulsscheibe, deren Radius ($P_\parallel$) durch die Größe der ersten Brillouin-Zone definiert ist. Der senkrechte Impuls ($P_\perp$) lässt sich über die Photonenenergie einstellen.

[57] Besonders der geringe Wirkungsquerschnitt der Doppelphotoemission gegenüber der Einfachphotoemission (bzw. des unkorrelierten Untergrunds aus 2γ→2e-Prozessen aufgrund der nur stochastischen Photonenquellen) stellt hohe Herausforderungen an die Experimente.

Es gibt eine Vielzahl von möglichen Konfigurationen, um mit einem Experiment diese speziellen Koinzidenzereignisse nachweisen zu können. Eine abstrakte Auswahl dazu ist in Abbildung 3.14 gezeigt. Darunter werden die jeweiligen Vor- und Nachteile kurz aufgelistet:

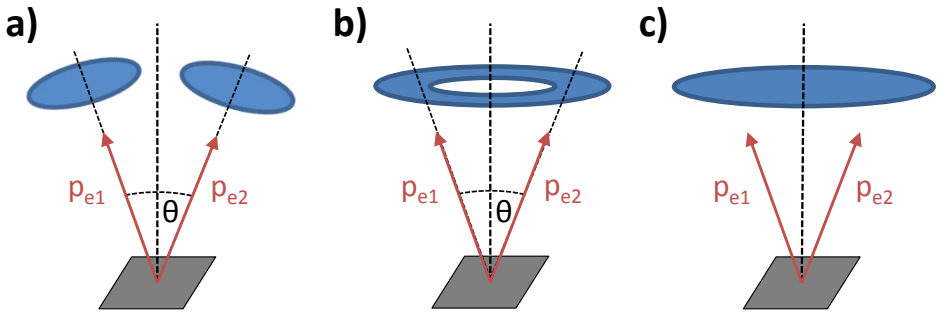


Abbildung 3.14: (a) Zwei separate SPE-Spektrometer, die in einem eingestellten Winkel auf die Probe schauen. (b) Ein doppeltes Torus-Elektronenspektrometer (c) Ein einzelner Detektor, der zwei Elektronen in Koinzidenz messen kann.

a) Zwei verschaltete herkömmliche SPE-Spektrometer

+ Die Detektionswahrscheinlichkeit für zwei Elektronen mit einem Detektor (Δ_{12}) entfällt bzw. ist gleich 1.
+ Das Experiment eignet sich neben der Koinzidenz-Messung auch für SPE-Messungen, wodurch die Durchführung bzw. die Charakterisierung des Experiments erleichtert wird.
- Durch Festlegen auf einen Emissionswinkel (Theta) ist automatisch auch die Photonenenergie festgelegt (in den Grenzen der jeweiligen Akzeptanzwinkel, typisch ±15°).
- Die erwartete d-Wellenförmige Intensitätsmodulation ist nicht direkt zugänglich.

b) Doppeltes Torus-Elektronenspektrometer (Multi-Hit-fähig)

+ Die erwartete Emissionsgeometrie ist komplett abgedeckt.
- Durch Festlegen auf einen Emissionswinkel (Theta) ist automatisch auch die Photonenenergie festgelegt (in den Grenzen des Akzeptanzwinkels, typisch ±3°).
- Durch die sehr eingeschränkte Geometrie wird die experimentelle Durchführung bzw. die Charakterisierung des Experiments extrem erschwert (Vergleichsmessungen).
- Die Detektionswahrscheinlichkeit für zwei Elektronen mit einem Detektor (Δ_{12}) ist geringer als bei zwei einzelnen Detektoren.

c) Einzelnes Spektrometer (Multi-Hit-fähig)

+ Die erwartete Emissionsgeometrie ist komplett abgedeckt.
+ Das Experiment eignet sich neben der Koinzidenz-Messung auch für SPE-Messungen, wodurch die Durchführung bzw. die Charakterisierung des Experiments erleichtert wird.
± Die Photonenenergie ist frei wählbar (bei einem begrenzen Akzeptanzwinkel existiert allerdings eine Untergrenze).
- Die Detektionswahrscheinlichkeit für zwei Elektronen mit einem Detektor (Δ_{12}) ist geringer als bei zwei einzelnen Detektoren.

Mögliche Aufnahmeraten der unterschiedlichen Konfigurationen wurden in der Auflistung nicht berücksichtigt, da diese zusätzlich von der konkreten experimentellen Umsetzung (Messprinzip: hemisphärischer Analysator oder Flugzeitmessung, Strahlungsquellen, Detektionsgeschwindigkeiten usw.) sowie der physikalischen Eigenschaften der zu untersuchenden Festkörperproben abhängen. Eine sinnvolle Diskussion dieses Punktes ist daher an dieser Stelle noch nicht möglich, er wird allerdings bei der Diskussion der

Doppelphotoemission wieder aufgegriffen (5.3.6 *Diskussion der Doppelphotoemissions-Messungen*).

Reale Beispiele von experimentellen Aufbauten der verschiedenen Konfigurationen sind in Abbildung 3.15 gezeigt und kurz beschrieben.

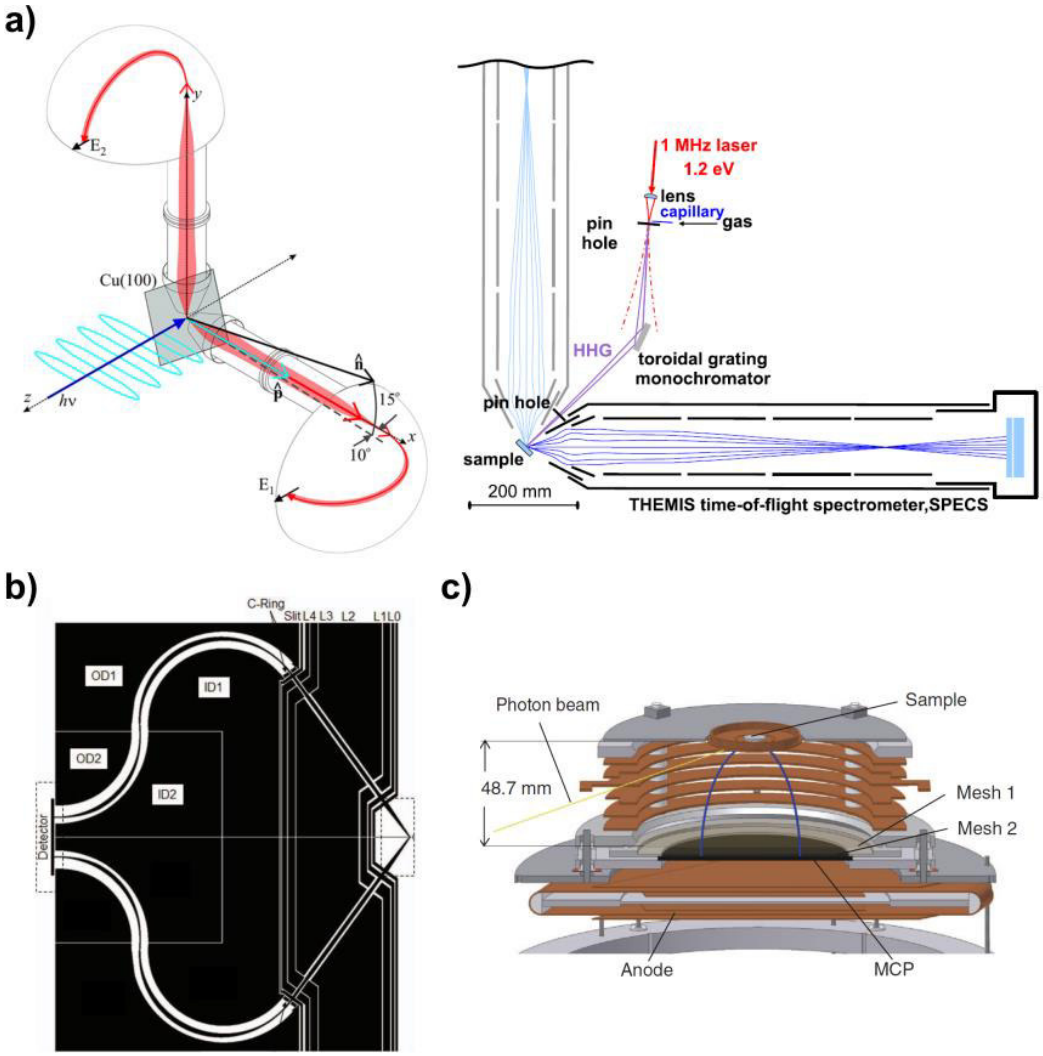


Abbildung 3.15: a) Rechts zwei hemisphärische Elektronenanalysatoren - *kleine* spezifische Raumwinkelabdeckung, dafür eine *hohe* Energieauflösung [RWDW10]. Links zwei Themis 1000 Flugzeitspektrometer - *mittlere* spezielle Raumwinkelabdeckung, dafür auch eine *mittlere* Energieauflösung [HCTS14]. c) Ein doppeltes Torus Elektronenspektrometer (DTA), wie es bisher nur in Gasphasenexperimente eingesetzt wird – *kleine* spezifische Raumwinkelabdeckung mit *mittlerer* Energieauflösung [LiNM13]. d) Ein teilweise aus der Atomphysik adaptiertes COLTRIMS Spektrometer – *maximaler* Raumwinkel mit *geringer* Energieauflösung [WVFB12].

In dieser Arbeit wurde aufgrund der damit bisher in Frankfurt gesammelten Erfahrungen Konfiguration C [Voss11, Wall11] mit einem einzelnen Flugzeitspektrometer gewählt. Vor allem der große Erfahrungsschatz mit der Optimierung der Detektionswahrscheinlichkeit für zwei Elektronen (Δ_{12}), die hohe Flexibilität dieser Konfiguration (unterschiedliche Proben etc.) und die Möglichkeit, auch SPE-Untersuchungen zur Charakterisierung durchführen zu können, waren ausschlaggebend. Praktische Erwägungen waren zudem, dass die bereits vorhandene Streukammer mit Kryostat, Manipulator, Vakuumsystem etc. ohne große Modifikationen weiter genutzt werden konnten. Ziele des neuen Aufbaus sind es, einen möglichst großen Raumwinkel abzudecken und gleichzeitig die Energieauflösung so sehr zu verbessern, dass damit erstmalig auch Kuprat-Hochtemperatursupraleiter untersucht

werden können. Die Verbesserung der Energieauflösung ist auch aus der Erfahrung früherer Experimente [Voss11, Wall11] unerlässlich, um das Signal zu Untergrund Verhältnis (siehe 5.3.2 *Nachweismethoden* auf Seite 114) zu verbessern.

3.5.2 Flugzeitspektrometer

Eine sehr direkte Möglichkeit, die Energie eines Elektrons zu bestimmen, ist über dessen Geschwindigkeit[58], was einer Flugzeitmessung über eine bekannte Strecke entspricht. Fliegen die Elektronen dabei im feldfreien Raum, so kann die Emissionsrichtung ebenfalls direkt aus dem Auftreffort auf dem Detektor bestimmt werden. Die Energieauflösung und der maximale Akzeptanzwinkel sind allerdings durch die Zeitauflösung und die maximale Größe des Detektors limitiert (realistisch 200 ps Zeitauflösung und 80 mm Detektordurchmesser). Der Zusammenhang zwischen der Energieauflösung und dem Akzeptanzwinkel für den feldfreien Fall ist in Abbildung 3.16 gezeigt. Die Energieauflösung bezieht sich jeweils auf Elektronen, die parallel zur optischen Achse starten. Eine endliche Ortsauflösung des Detektors sowie eine Ausdehnung des Elektronenstartorts wurden als Fehlerquellen im Folgenden vernachlässigt.

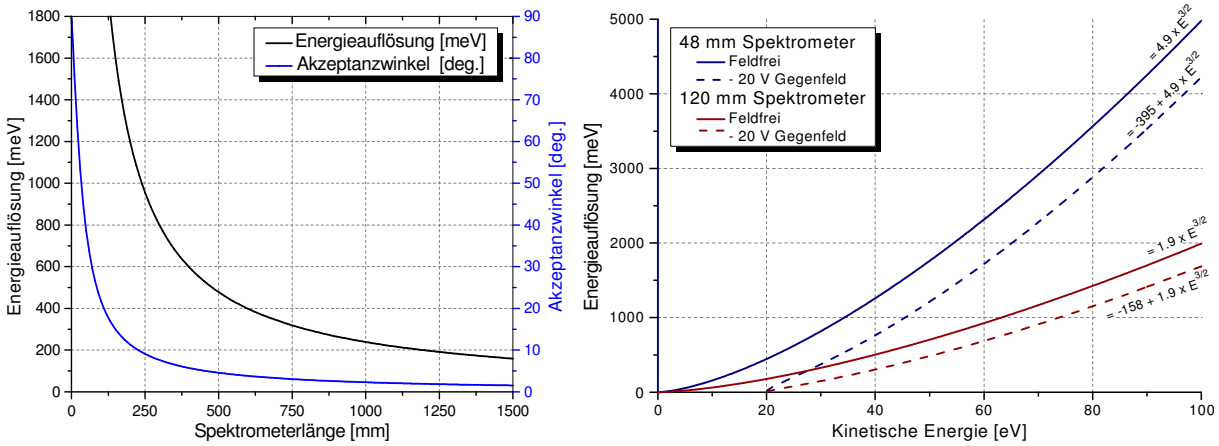


Abbildung 3.16: Links) Simulation der Energieauflösung und des Akzeptanzwinkels für ein feldfreies Spektrometer, abhängig von der Spektrometerlänge für 100 eV Elektronen (angenommen eine Zeitauflösung des Detektor von 200 ps und einen Detektordurchmesser von 80 mm). Rechts) Energieauflösung abhängig von der kinetischen Energie der Elektronen für ein feldfreies sowie ein mit 20 V Gegenspannung betriebenes, 120 mm langes Spektrometer.

Mit einem längeren Spektrometer lässt sich erwartungsgemäß eine bessere Energieauflösung auf Kosten eines kleineren Akzeptanzwinkels erreichen (einem sogenannten *Trade-off*). Um zusätzliche Flexibilität zu gewinnen, kann ein homogenes elektrisches Feld zwischen Probe und Detektor angelegt werden, wie dies bisher auch in Frankfurt eingesetzt wurde (siehe Abbildung 3.15 c)). Der Einsatz von Magnetfeldern ist aufgrund des Meissner-Ochsenfeld-Effekts und der dadurch entstehenden inhomogenen Magnetfelder an der Probe in diesem Experiment nicht möglich.

Die sich mit homogenen elektrischen Feldern ergebenden Einstellmöglichkeiten zwischen Energieauflösung und Akzeptanzwinkel sind in Abbildung 3.17 anhand von drei Spektrometern (48 mm [Voss11, Wall11], 120 mm [Baue11] und 540 mm) und durchvariierter Spannungen dargestellt (farbige Linien). Wie man erkennen kann, ergibt sich für diese Spektrometer ein unzugänglicher Bereich (schraffiert).

[58] Eine kinetische Energie der Elektronen von 10 eV entspricht dabei bereits 1,875,000 m/s.

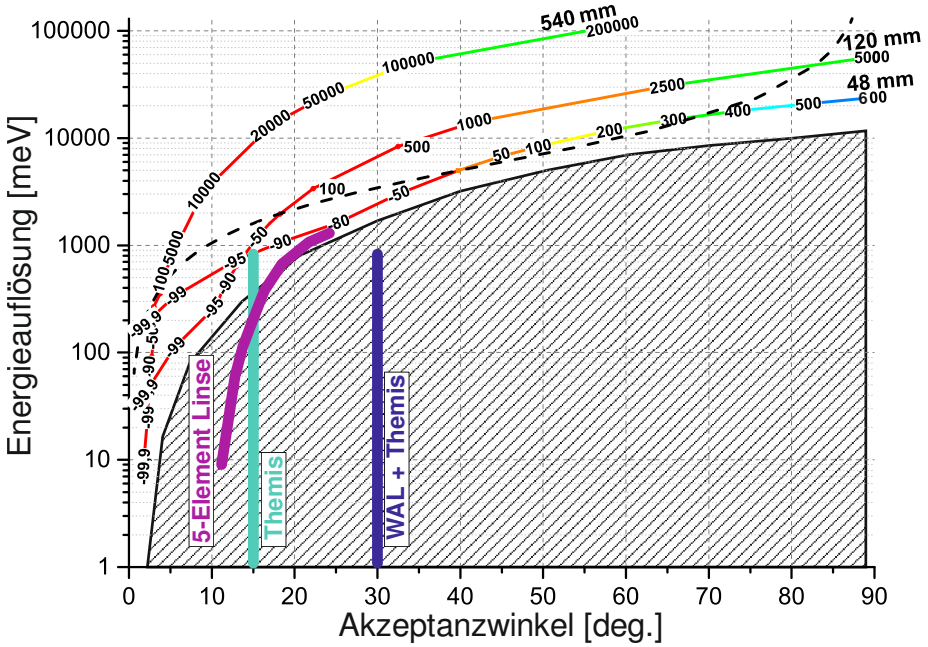


Abbildung 3.17: Energieauflösung gegen den Akzeptanzwinkel für drei unterschiedlich lange Spektrometer (48 mm, 120 mm und 540 mm) mit homogenen elektrischen Feldern. Simuliert wurden 100 eV-Elektronen mit einem Detektor von 80 mm Durchmesser und einer Zeitauflösung von 200 ps. Die Gegenspannungen (Potential auf der Detektorseite) ist sowohl farblich als auch mit absoluten Spannungswerten [V] angegeben. Ebenfalls sind die theoretisch mit der im Folgenden beschriebenen 5-Elemente-Linse und modernen Linsensystemen (Themis 1000 mit und ohne Weitwinkelvorsatzlinse WAL) erreichbaren Energieauflösungen und Akzeptanzwinkel eingezeichnet. Die dazu nötigen Trade-offs werden im nächsten Abschnitt detailliert beschrieben.

In Abbildung 3.18 ist der mit einem 120 mm langen Spektrometer und 70 V Gegenspannung entstehende Messbereich dargestellt. Die bessere Energieauflösung (1680 meV für 100 eV Elektronen statt 2020 meV für ein feldfreies Spektrometer) wurde dabei durch einen kleineren Akzeptanzwinkel (±14° für 100 eV Elektronen statt ±18.43°) und einen kleineren Energieausschnitt erkauft (kinetische Energie in Detektorrichtung größer als die Gegenspannung). Die Energieauflösung fällt dabei rapide mit Ansteigen der kinetischen Energie ab, weshalb man üblicherweise von einem nutzbaren Energiefenster spricht. Die Definition eines solchen Energiefensters ist dabei nicht festgeschrieben. Im gezeigten Beispiel wurde es so gewählt, dass sich die Energieauflösung nicht mehr als einen Faktor 2 im Vergleich zu den 100 eV-Elektronen verschlechtern soll.

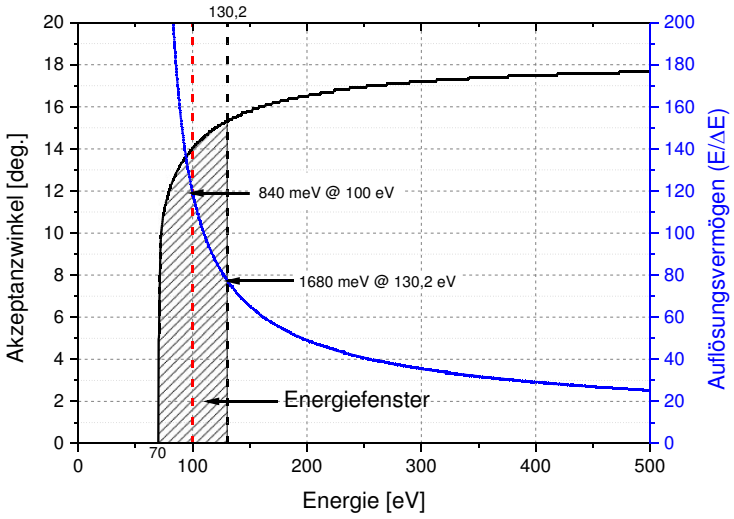


Abbildung 3.18: Akzeptanzwinkel und Auflösungsvermögen (E/ΔE), abhängig von der kinetischen Energie der Elektronen (Spektrometer 120 mm, Spannung -70 V, Detektordurchmesser 80 mm, Zeitauflösung 200 ps).

Um die 100 eV-Elektronen herum lässt sich in einem ca. ±30 eV großen Energiefenster messen (schraffierter Bereich). Das Energiefenster wurde so definiert, dass die absolute Energieauflösung maximal doppelt so groß wie für 100 eV-Elektronen sein soll (130.2 eV-Elektronen).

Diese einfachen Spektrometer sind dabei in der Anwendung besonders robust, da eine Korrektur des Startorts der Elektronen (Abstand und Lage) sowie der Spektrometerspannung in der nachträglichen Analyse noch möglich ist.

Eine weitere Möglichkeit, die Energieauflösung zu verbessern und gleichzeitig den Akzeptanzwinkel zu erhalten oder ggf. zu vergrößern, also in den schaffierten Bereich in Abbildung 3.17 zu gelangen, ist der Einsatz von inhomogenen elektrischen Feldern oder genauer elektrostatischen Linsen. Die grundsätzlichen Eigenschaften solcher Linsen sollen im Folgenden anhand einer einfachen 5-Element-Linse, wie in Abbildung 3.19 gezeigt, vorgestellt werden.

Die elektrostatische Linse befindet sich dabei in der ersten Hälfte des Spektrometers und fokussiert die Elektronen in den Eintrittsbereich einer Driftstecke, in welcher die Elektronen abhängig von den Fokuseigenschaften der Linse auf dem Detektor verteilt werden. Ein derartiger Aufbau von Linse und Driftstrecke ist nötig, da elektrostatische Linsen grundsätzlich nur fokussieren, nicht aber defokussieren können.

In dem vereinfachten Beispiel starten die Elektronen auf dem Potential V1, welches der zu messenden kinetischen Energie Ekin entspricht. Die Auftreffenergie der Elektronen auf dem Detektor ist dann durch das letzte Potential V5 definiert und wird als Pass-Energie Epass = Ekin – V5 bezeichnet. Das Verhältnis zwischen Ekin und Epass wird als Abbremsfaktor (Retarding Ratio: RR = E_{kin} / E_{pass}) bezeichnet. Dabei steigt die Energieauflösung mit höherem Abbremsfaktor, da die Elektronen bei einer längeren Flugzeit in der Driftstrecke für unterschiedliche Energien größere Flugzeitunterschiede entwickeln können.

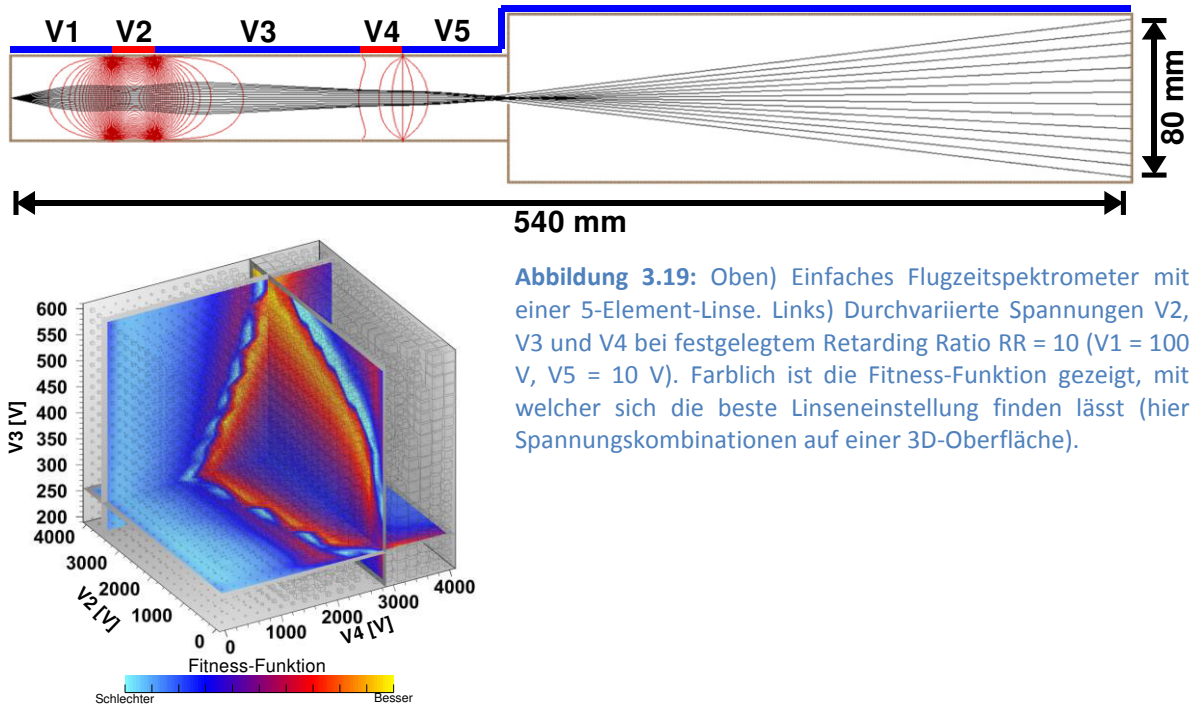


Abbildung 3.19: Oben) Einfaches Flugzeitspektrometer mit einer 5-Element-Linse. Links) Durchvariierte Spannungen V2, V3 und V4 bei festgelegtem Retarding Ratio RR = 10 (V1 = 100 V, V5 = 10 V). Farblich ist die Fitness-Funktion gezeigt, mit welcher sich die beste Linseneinstellung finden lässt (hier Spannungskombinationen auf einer 3D-Oberfläche).

In Abbildung 3.19 links wurde das Spektrometer für einen gewünschten Abbremsfaktor von RR = 10 (Ekin = 100 eV, Epass = 10 eV) mit einem „Brute-Force“-Ansatz optimiert. Dabei wurden entsprechend alle verbleibenden Freiheitsgrade des Systems (V2, V3 und V4)

durchvariiert und mithilfe einer einfachen „Fitness-Funktion“[59], welche in diesem Beispiel nur den maximalen Akzeptanzwinkel und die Winkelauflösung beinhaltet, die optimale Einstellung gefunden. Für das Spektrometer ergibt sich ein maximaler Akzeptanzwinkel von ±12.3° mit einer Energieauflösung von 23.9 meV für 100 eV-Elektronen. Für niedrigere Abbremsfaktoren kann der Akzeptanzwinkel auf Kosten der Energieauflösung, ähnlich dem homogenen Fall, vergrößert werden, wie in Abbildung 3.20 gezeigt.

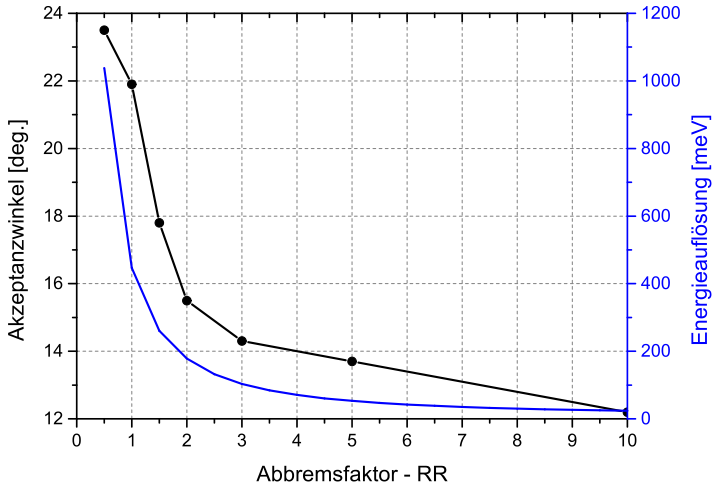


Abbildung 3.20: Trade-off-Beziehung zwischen dem Akzeptanzwinkel und der Energieauflösung, für das in Abbildung 3.19 gezeigte Spektrometer.

Für die Funktionsweise der Linsen, als winkelauflösendes Flugzeitspektrometer, wurden bisher keine allgemeinen theoretischen Formulierungen, wie beispielsweise das Helmholtz-Lagrange-Gesetz[60] für Zoomlinsen, gefunden.

Der Zusammenhang zwischen Energieauflösung und Akzeptanzwinkel für das Spektrometer (RR = 10) wird in Abbildung 3.21 gezeigt.

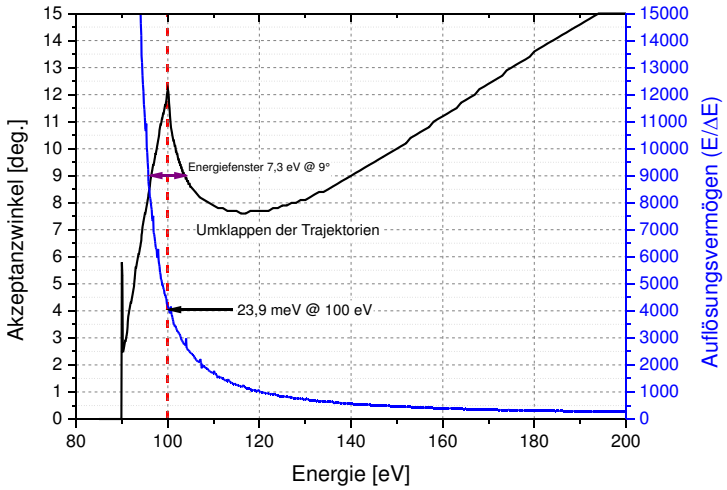


Abbildung 3.21: Der optimierte Linsenmodus für 100 eV-Elektronen verfügt nur noch über ein sehr kleines nutzbares Energiefenster.

Die dazugehörigen Trajektorien für das Beispiel sind in Abbildung 3.22 gezeigt. Diese können nicht mehr, wie im homogenen Fall, analytisch berechnet werden, sondern müssen simuliert werden. Entsprechend muss auch die Rücktransformation von den aufgezeichneten Flugzeiten und Auftrefforten mit „Lookup“-Tabellen erfolgen.

---

[59] Eine Fitness-Funktion kombiniert die gewünschten Linseneigenschaften zu einem einzigen Wert. Im angegeben Fall wird der Akzeptanzwinkel und die Winkelauflösung (1:1) kombiniert. Je nach Anwendung des Spektrometers können beispielsweise noch die Auswirkungen der Spotgröße oder die Energiefenstergröße hinzugenommen werden.

[60] Das Helmholtz-Lagrange-Gesetz verknüpft die lineare Vergrößerung M ($=r_2/r_1$, r: Abstand zur optischen Achse) mit der Winkelvergrößerung m ($=\alpha_2/\alpha_2$, α: Winkel zur optischen Achse in der Objekt- und Bild-Ebene) durch eine elektrostatische Linse mit den Potentialen an den beiden Enden der Linse: $(V1/V2)^{1/2} = Mm$.

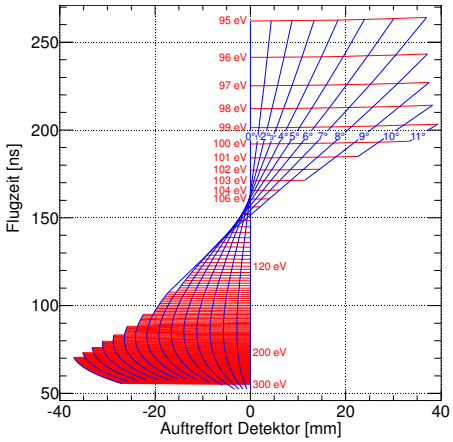


Abbildung 3.22: Die Auftrefforte auf dem Detektor und die Flugzeit für verschiedene Elektronen Trajektorien. Die roten Linien zeigen Isoenergielinien, die blauen Linien Isostartwinkel.

Bei ca. 107 eV klappen die Elektronen aufgrund von sphärischen und chromatischen Aberrationen um.

Um die Energieauflösung weiter zu verbessern, könnte am einfachsten die Driftstrecke des Spektrometers verlängert werden. Je flacher die Elektronen dazu fokussiert werden müssen, umso weniger können sie allerdings gleichzeitig abgebremst werden. Eine Lösung dieses Problems wäre der Einsatz weiterer elektrostatischer Linsen für den Transport. Dabei treten allerdings die sphärischen und chromatischen Aberrationen immer stärker in Erscheinung, da jede Linse mit ihren Aberrationen den Ausgangspunkt für die folgenden Linsen verschlechtert. Diese Eigenschaft geht bis auf das Scherzer-Theorem von 1933 zurück [Sche36], welches besagt, dass axiale Farbfehler (chromatische Aberrationen) und Öffnungsfehler (sphärische Aberrationen) bei statischen rotationssymmetrischen Elektronenlinsen unvermeidbar sind.

Ein Konzept dazu ist in Abbildung 3.23 gezeigt. Die Möglichkeiten eines solchen Flugzeitspektrometers sind dabei durch das gesamte Design, wie zum Beispiel die Anzahl, Positionierung und auch Form der elektrostatischen Linsen, bestimmt. Aufgrund der damit enorm anwachsenden Komplexität[61] solcher Systeme ist man auf ein Zusammenspiel zwischen Erfahrungswerten (Ausgangsdesign/Ausgangswerte/Regeln) und heuristische Optimierungsverfahren angewiesen. Gleichzeitig ist bei dieser Art von Flugzeitspektrometer, bei dem es auf eine hohe Übereinstimmung zwischen Simulation und Experiment ankommt (siehe 4.3 *Konvertierung in Startwinkel und Energie*), die Konstruktion ein kritischer Faktor.

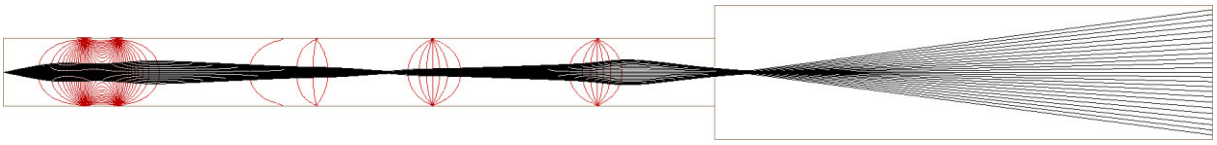
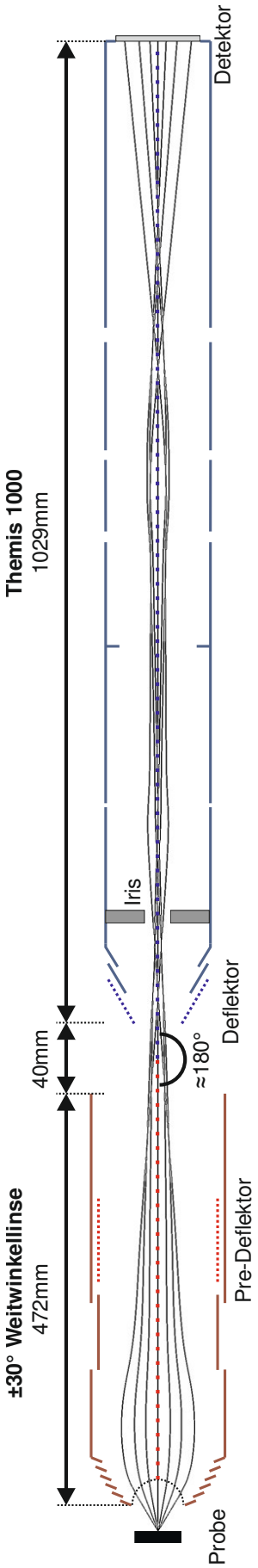


Abbildung 3.23: Die in Abbildung 3.19 vorgestellte Linse, erweitert um eine identische 5-Element-Linse. Der einfachste Fall wäre es, die erste Linse als Punkt-zu-Punkt Linse auf einen Startpunkt für die zweite Linse zu fokussieren. Durch sphärische und chromatische Aberrationen werden allerdings durch abweichende Konfigurationen meist bessere Lösungen gefunden.

Für diese Arbeit wurde sich daher, unter Abwägung des alternativen Entwicklungs- und Konstruktionsaufwands, für die Anschaffung eines kommerziell verfügbaren Flugzeitspektrometers der Firma Specs GmbH entschieden. Gleichzeitig bieten sogenannte moderne *State-of-the-Art* Linsensysteme eine Reihe weiterer Eigenschaften, die für das Experiment von Vorteil sind und im nächsten Abschnitt beschrieben werden.

[61] Die benötigte Rechenleistung für einen einfachen Brute-Force Ansatz steigt exponentiell mit der Anzahl der zu variierenden Spannungen: Potential Variationen hoch der Anzahl der Spannungen.

3.5.3 Themis 1000 mit ±30° Weitwinkelvorsatzlinse



Bei dem verwendeten Flugzeitspektrometer (siehe Abbildung 3.24) handelt es sich um ein kommerzielles Flugzeitspektrometer der Firma Specs GmbH [SPECS]. Dabei wurde erstmalig ein Themis 1000 Flugzeitspektrometer mit einer ±30° Weitwinkelvorsatzlinse (*Wide Angular Lens* - WAL) ausgestattet. Beide Spektrometer sind leicht abgewandelte Versionen der PHOIBOS-Linsen, welche ursprünglich bei hemisphärischen Analysatoren eingesetzt wurden.

Die erste Aufgabe der Linse ist es, das Spektrometer physikalisch von den Proben zu trennen, wodurch die Zugänglichkeit zu den Proben zwecks Präparation und der Einschuss von Synchrotronstrahlung erleichtert werden. Der Probenbereich ist dabei komplett feldfrei, was durch ein geerdetes hemisphärisches Gitter am Spektrometereingang sichergestellt wird. Gleichzeitig dient das hemisphärische Eintrittsgitter dazu, sphärische Aberrationen zu korrigieren, wie von H. Matsuda et. al. [MDKK05] beschrieben.

Konzeptionell fokussiert die Weitwinkelvorsatzlinse dabei die Elektronen auf den Arbeitspunkt des Themis 1000 Flugzeitspektrometers, welcher zwischen den beiden Spektrometern liegt [SPECS], analog zur Fokussierung auf den Eingangsschlitz bei einem hemisphärischen Analysator. In diesem Modus ließ sich allerdings nur ein sehr kleines Energiefenster erreichen (Details siehe A.2.2.1 *Entwicklung Themis 1000 mit ±30° Weitwinkelvorsatzlinse* auf Seite 154). Im schließlich verwendenden Linsenmodus existiert zwischen den beiden Spektrometern kein solcher Fokuspunkt mehr, wie in Abbildung 3.24 zu erkennen. Dies zeigt anschaulich, dass es sich beim genutzten Linsenmodus um ein einzelnes optimiertes Gesamtsystem handelt. Ausgangspunkt dafür waren die beiden als einzelne für hemisphärische Analysatoren optimierten Spektrometer, die am Ende mit einer Driftstrecke erweitert wurden.

Die Optimierungsparameter, welche in die Fitness-Funktion eingehen, sind dabei [SPECS]:

- Die volle Abdeckung eines ±30° Akzeptanzwinkels.
- Ein gewünschtes Energiefenster von ±4 % der Passenergie.
- Eine geeignete Dispersionsrelation für den Startwinkel bzw. allgemein die Winkelauflösung im Energiefenster.

Abbildung 3.24 (links): Das verwendete Flugzeitspektrometer (±30° Weitwinkelvorsatzlinse und Themis 1000) von der Firma Specs GmbH. Prinzipiell fokussiert die Weitwinkelvorsatzlinse die Elektronen vor dem Themis 1000, welches als eigenständiges Flugzeitspektrometer einen Akzeptanzwinkel von max. ±15° besitzt.

Gezeigt sind die Trajektorien für RR = 1 (ohne Abbremsung).

Als heuristisches Optimierungsverfahren wurde ein simuliertes Abkühlungsverfahren (*simulated annealing*) benutzt, da durch die hohe Komplexität des Systems ein vollständiges Ausprobieren aller Möglichkeiten (Brute-Force) nicht mehr möglich ist [SPECS].

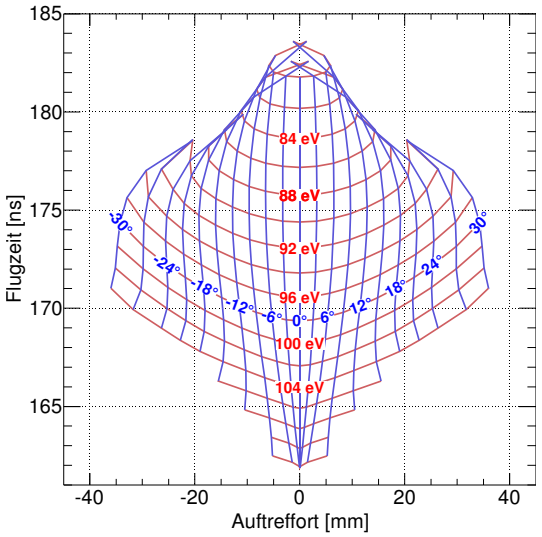


Abbildung 3.25: Die Auftrefforte und Flugzeiten der Elektronentrajektorien für die Linseneinstellung Ekin 100 / Epass 100 (RR = 1) auf dem Detektor (für die Trajektorien in Abbildung 3.24).

Für Bereiche, in denen sich benachbarte Trajektorien zu nahe kommen, ist aufgrund der begrenzen Ortsauflösung keine ausreichende Winkelauflösung mehr gegeben. Im Fall von überlappenden Trajektorien ist überhaupt keine eindeutige Rücktransformation mehr möglich.

Analog zu einfachen Flugzeitspektrometern (siehe 3.5.2 *Flugzeitspektrometer*) ist die erreichbare Energieauflösung von der kinetischen Energie und dem Abbremsfaktor (RR) abhängig. Der entsprechende Zusammenhang ist in Abbildung 3.26 gezeigt. Das nutzbare Energiefenster (*Energy Window* – EW) ist dabei so definiert, dass für die vollen ±30° Akzeptanzwinkel in einem um die kinetische Energie symmetrischen Energiebereich Winkel- und Energieauflösung erreicht wird (Details siehe Abbildung 3.25).

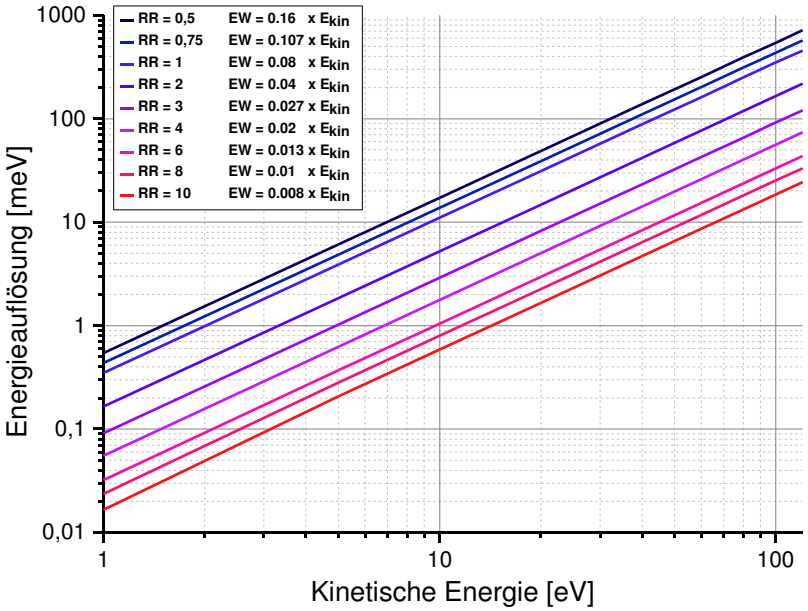


Abbildung 3.26: Übersicht der theoretisch erreichbaren Energieauflösung, abhängig vom Abbremsfaktor (RR=Ekin/Epass) und der kinetischen Energie. Zu beachten ist, dass die Energiefenstergröße (Box) konträr dazu läuft.

In Abbildung 3.27 ist die Energieauflösung innerhalb des Energiefensters für verschiedene Abbremsfaktoren gezeigt. Diese skaliert wie im feldfreien Fall proportional mit $E_{kin}^{3/2}$.

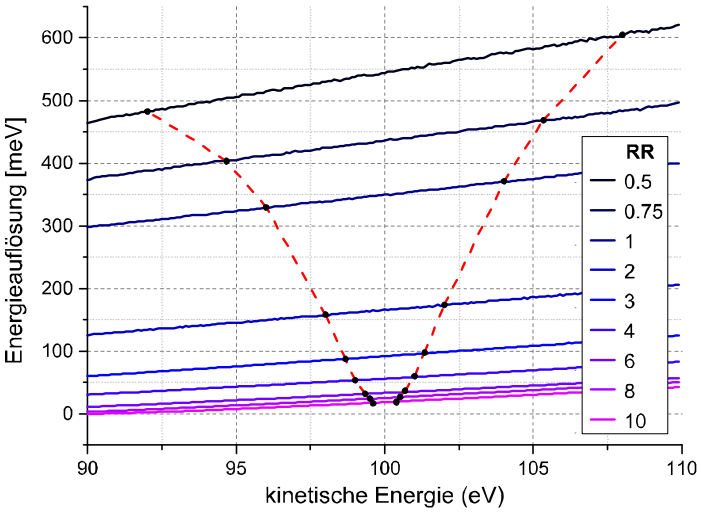


Abbildung 3.27: Energieauflösung für verschiedene Retarding Ratios (RR) bei 100 eV Elektronen (angenommen 200 ps Zeitauflösung). Der Bereich zwischen den beiden gestrichelten roten Linien zeigt den winkelauflösenden Bereich des Spektrometers. Die Energieauflösung skaliert wie im feldfreien Fall mit ~Ekin3/2 ($\Delta E = A + B \times E^{3/2}$).

Eine weitere wichtige Eigenschaft des Spektrometers ist die Ortsfokussierung im winkelauflösenden Modus (*Angular-Resolved Mode* - AR). Damit ist gemeint, dass parallel startende Elektronen mit der gleichen kinetischen Energie, unabhängig vom Startort auf der Probe, auf den gleichen Ort am Detektor fokussiert werden. Dabei sollten stärkere Abbremsfaktoren prinzipiell sensibler auf die Ausdehnung des Startorts reagieren. Wie man jedoch in Abbildung 3.28 erkennt, ist es bei dem vorliegenden Spektrometer entscheidender, wie gut der jeweilige Linsenmodus tatsächlich optimiert worden ist.

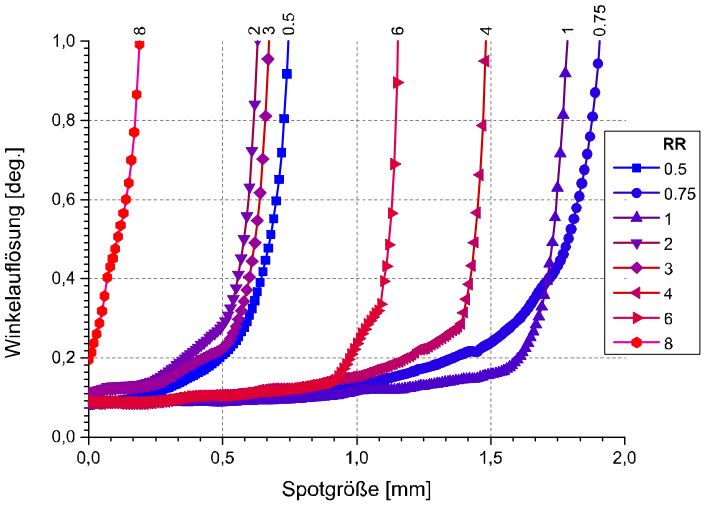


Abbildung 3.28: Die erreichbare Winkelauflösung für verschiedene Abbremsfaktoren, abhängig von einer eindimensionalen Ausdehnung des Startorts der Elektronen (angenommen wurde eine Ortsauflösung von 100 µm).

Generell ist hierbei zu beachten, dass es sich bei den bisher vorgestellten Winkel- und Energieauflösungen ausschließlich um die theoretischen (intrinsischen) Eigenschaften des Spektrometers handelt. Bei reellen Messungen sind weitere parasitäre Einflüsse zu berücksichtigen. Dazu zählen jegliche mechanische Fertigungsungenauigkeiten, zeitabhängige Potentiale (Spannungsstabilität), Magnetfelder (siehe Abschnitt 3.5.3.1 *Magnetische Abschirmung*), Eigenschaften des Startorts sowie chemische Oberflächenpotentiale im Spektrometer (besonders bei niedrigen kinetischen Energien). Die tatsächlich mit dem Spektrometer bzw. dem experimentellen Aufbau erreichte Energie- und Winkelauflösung wird in Abschnitt 5.2.2 *Qualität der Daten* anhand der experimentellen Daten vorgestellt.

Im Anhang in Abschnitt A.2.2 *Themis 1000 mit ±30° Weitwinkelvorsatzlinse (Details)* ab Seite 154 sind weitere wichtige Details zum Spektrometer zusammengefasst.

3.5.3.1 Magnetische Abschirmung

Die Trajektorien der Elektronen können durch Magnetfelder beeinflusst werden ($\overrightarrow{F_B} = e(\vec{v} \times \vec{B})$) bzw. gegenüber den Simulationen, bei welchen keine Magnetfelder berücksichtigt wurden, verfälscht werden. Dadurch verschlechtert sich die Energie- und Winkelauflösung des Spektrometers, welche auf eine hohe Übereinstimmung zwischen Simulation und Messung angewiesen ist (siehe 3. *Konvertieren der Flugzeiten und Auftrefforte in Startwinkel und Startenergie*). Sind keine künstlichen Magnetfelder in der Umgebung des Experiments vorhanden (Magnete, Spulen etc.), verbleibt das Erdmagnetfeld (typisch 20µT in horizontaler und 44µT in vertikaler Richtung)[62], was es abzuschirmen gilt.

Grundsätzlich gibt es zwei Möglichkeiten Magnetfelder abzuschirmen. Die erste Möglichkeit ist eine aktive Kompensation des abzuschirmenden Magnetfelds durch ein entgegengesetztes künstliches Magnetfeld (typischerweise mit einem Helmholtz-Spulen Paar). Dies ist allerdings aufgrund der Größe des abzuschirmenden Spektrometerbereichs (ca. 1.6 m x 0.1 m x 0.1 m) praktisch unmöglich, da es voraussetzen würde, dass das abzuschirmende Magnetfeld in diesem Bereich homogen ist.

Die zweite Möglichkeit ist die passive Abschirmung durch ein sogenanntes Mu-Metall-Schild. Dieses besteht aus einer Nickel-Eisen-Legierung (80 % Nickel, 4.5 % Molybdän und Rest Eisen [MagShield]), welche eine enorm hohe relative Permeabilität besitzt (zwischen 350.000 und 500.000; im Vergleich dazu Eisen mit 300 bis 10.000). Dadurch werden die Magnetfelder praktisch wie in einen Schwamm aufgesogen und durch das Schild geleitet, wie in Abbildung 3.29 mit einer Simulation gezeigt.

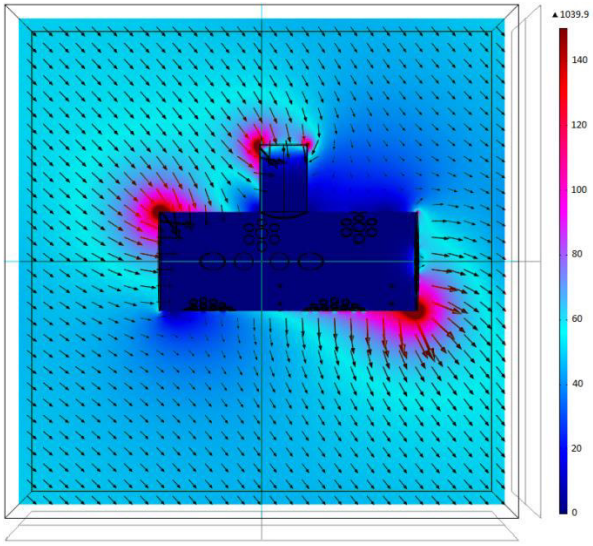


Abbildung 3.29: Simulation der µ-Metall-Abschirmung mit COMSOL 4.2. Angenommen wurde ein homogenes magnetisches Feld (Betrag: 51.9µT) und eine relative Permeabilität μ_r = 400000. Im Inneren konnte das Magnetfeld auf 0,502% reduziert werden.

Die gesamte Experimentierkammer und das Flugzeitspektrometer besitzen eine gemeinsame einlagige[63] Mu-Metall-Abschirmung, welche das Erdmagnetfeld im Inneren auf ca. 0.5% reduziert.

[62] 1 µT entspricht 0.01 G.

[63] Das Themis 1000 verfügt teilweise über eine zweilagige Mu-Metall-Abschirmung, welche jedoch mit der restlichen einlagigen Mu-Metall-Abschirmung kurzgeschlossen ist. Dadurch büßt die zweilagige Mu-Metall-Abschirmung ihre Vorteile weitestgehend ein.

Während einer Strahlzeit (BESSY 2013) wurde die Funktion der Mu-Metall-Abschirmung experimentell getestet. Dazu wurde ein 3m x 1m x 1m großer Helmholtz-artiger Spulenkäfig um die Kammer errichtet, mit dem über die gesamte Kammer ein bis zu 300 µT starkes Magnetfeld angelegt werden konnte (in allen drei Raumrichtungen). Bei laufenden Messungen wurde dann die Flugzeitverteilung beobachtet und das künstliche Magnetfeld hochgefahren, um zu beobachten, ab welcher Magnetfeldstärke erste Änderungen erkennbar sind. Das Resultat war, dass sich in den typischerweise verwendeten Linsenmodi bzw. Energiebereichen (Ekin18/Epass 35, Ekin 41/Epass 40) die Trajektorien auch mit den stärksten angelegten Magnetfeldern nicht beeinflussen ließen. Erst bei extremen Linseneinstellungen (Ekin 3/Epass 1) zeigten sich signifikante Änderungen, abhängig vom angelegten Magnetfeld (ab ca. 100 µT).

3.5.3.2 Austrittsarbeit

Die Austrittsarbeit (Φ_{WF}) die im Abschnitt 2.3 *Photoemission von Oberflächen* als die Energie eingeführt worden ist, welche mindestens aufgebracht werden muss, um ein Elektron aus dem ungeladenen Festkörper ins Vakuum ($E_{vac}(\infty)$) zu befördern, ist in diesem Experiment keine zugängliche Messgröße. Dies liegt daran, dass das Spektrometer bzw. der Detektor selbst über eine Austrittsarbeit verfügen, wie in Abbildung 3.30 dargestellt.

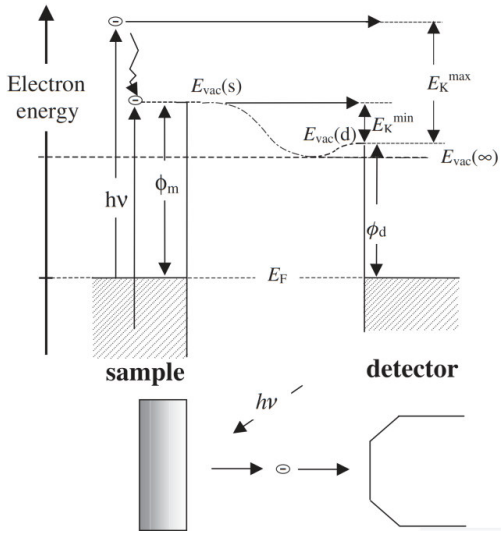


Abbildung 3.30: Energiediagramm für eine metallische Oberfläche und einen Elektronendetektor im Gleichgewicht. Das Fermilevel E_F ist im gesamten System ausgeglichen. Das Vakuumlevel der Metalloberfläche ($E_{vac}(S)$, und des Detektors $E_{vac}(d)$) und ihre Austrittsarbeiten ϕ_m und ϕ_d sind angegeben. Vorlage entnommen aus [CaKa03].

Die kinetische Energie von Elektronen von der Fermikante bei Absorption eines Photons mit der Energie hν ergibt sich direkt oberhalb der Probe ($E_{vac}(s)$) zu $E_{kin,vac} = h\nu - \Phi_{probe}$. Aufgrund der unterschiedlichen Austrittsarbeit zwischen der Probe und dem Detektor werden die Elektronen auf dem Weg zum Detektor nun entweder beschleunigt (höhere kinetische Energie gegen eine geringere potentielle Energie) oder abgebremst (kleinere kinetische Energie gegen höhere potentielle Energie). Die kinetische Energie, mit der die Elektronen auf den Detektor auftreffen bzw. in das Spektrometer einfliegen[64], ist dann gegeben durch $E_{kin,det} = h\nu - \Phi_{probe} + (\Phi_{probe} - \Phi_{detektor}) = h\nu - \Phi_{detektor}$ und somit unabhängig von der Austrittsarbeit der Proben. Bei energiedispersiven Analysatoren (z.B. hemisphärischer Analysator) ist dieser Zusammenhang direkt verständlich, da die Messung der kinetischen Energie erst im Analysator selbst stattfindet.

[64] Die kompletten Innenseiten des verwendeten Flugzeitspektrometers, inklusive des Eingangs- und Abschlussgitters, sind graphiert worden. Dadurch werden Elektronen-Trajektorien ab dem Eingangsgitter nicht mehr durch wechselnde Oberflächenpotentiale gestört.

Bei einem Flugzeitspektrometer geht hingegen auch die Flugzeit bis zum Eintrittsgitter des Spektrometers in die Energieberechnung mit ein. Je nachdem, ob der Austrittsarbeitsunterschied zwischen Probe und Spektrometer ($\Delta\Phi_{WF} = \Phi_{probe} - \Phi_{detektor}$) positiv (Elektron wird abgebremst) oder negativ ist (Elektron wird beschleunigt), sind die Flugzeiten der Elektronen zum Eintrittsgitter entsprechend verkürzt oder verlängert.[65] Der Zusammenhang hierfür ist in Abbildung 3.31 abhängig von der kinetischen Energie der Elektronen dargestellt.

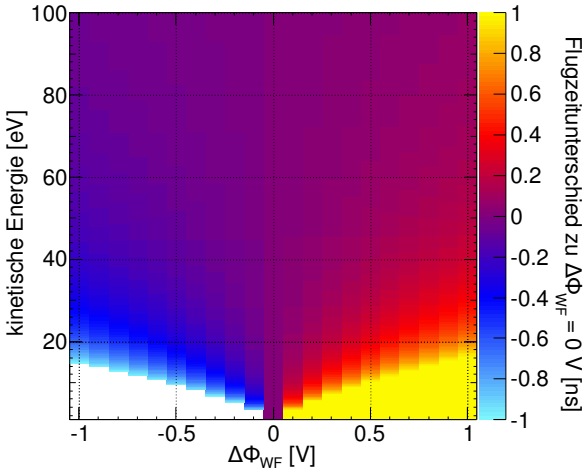


Abbildung 3.31: Flugzeitunterschied zum Eintrittsgitter (48 mm), relativ zu $\Delta\Phi_{WF} = 0$ V für verschiedene kinetische Energien der Elektronen. Negative $\Delta\Phi_{WF}$ bedeuten eine geringere Austrittsarbeit der Probe im Vergleich zum Spektrometer.

Ab dem Eintrittsgitter besitzen die von unterschiedlichen Proben gestarteten Elektronen, wie bei hemisphärischen Analysatoren, wieder die gleiche Energie (unabhängig von der Probenaustrittsarbeit). Die entstehenden Flugzeitunterschiede hängen demnach nur vom Flugzeitunterschied hin bis zum Eintrittsgitter ab. Diese liegen für über 18 eV schnelle Elektronen im Bereich[66] von $\Delta\Phi_{WF} = \pm 0.25$ V und damit deutlich unterhalb der Zeitauflösung des Experiments (300 ps). Entsprechend kann für unterschiedliche Proben, wie in Abbildung 3.32 gezeigt, die Berücksichtigung der unterschiedlichen Austrittsarbeiten vernachlässigt werden.

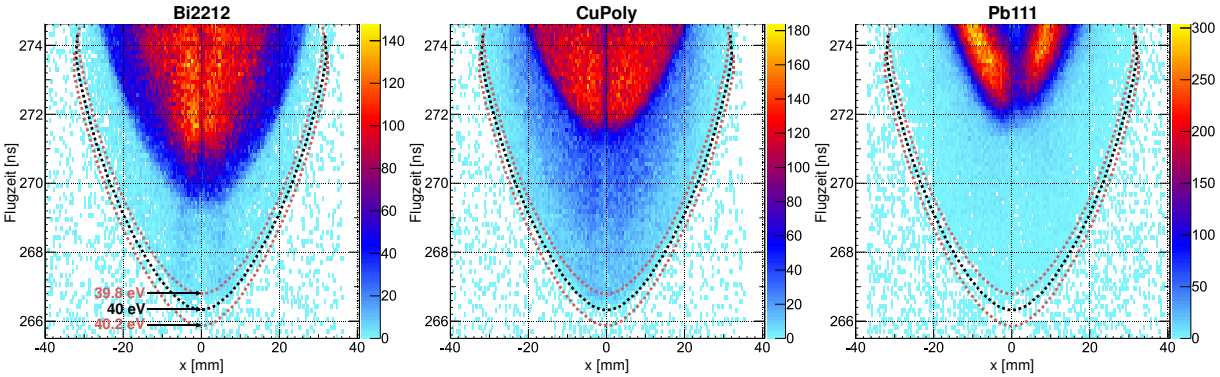


Abbildung 3.32: Ort-Flugzeit-Spektren (|y| < 2mm) für Bi2212, polykristallines Kupfer und einkristallines Blei ([111]-Oberflächenorientierung), welche mit der gleichen Photonenenergie und den gleichen Spektrometer-Einstellungen aufgenommen worden sind.

[65] Beispiel: Angenommen, Elektronen von der Fermikante werden mit hν = 10 eV Photonen ausgelöst und die Austrittsarbeit des Spektrometers beträgt 5 eV. Hat die Probe eine Austrittsarbeit von 4 eV, starten die Elektronen mit 6 eV und werden auf 5 eV zum Spektrometer hin abgebremst. Hat im anderen Fall die Probe eine Austrittsarbeit von 6 eV, starten die Elektronen mit 4 eV und werden auf 5 eV zum Spektrometer beschleunigt. Die Flugzeit im ersten Fall ist dabei kürzer als im zweiten Fall.

[66] Austrittsarbeiten: Bi2212 ≈ 4.8 eV, polykristallines Kupfer 4.65 eV und Blei ([111]-Oberfläche) 4.4 eV.

Es ist allerdings zu beachten, dass die Flugzeitunterschiede aufgrund von Austrittsarbeitsunterschieden bei langsamen Elektronen deutlich an Bedeutung zunehmen und dann beim Vergleich von unterschiedlichen Proben mit berücksichtigt werden müssen bzw. die Spektrometer-Simulationen angepasst werden müssen.

3.6 Detektor und Datenaufnahmesystem

Am Ende des Spektrometers muss der zweidimensionale Auftreffort (auf einer Ebene) und die Flugzeit jedes einzelnen Elektrons detektiert werden. Der dafür komplett neu konstruierte Detektor, basierend auf einer HEX90-Delayline-Anode von *RoentDek* [RoentDek], welcher speziell auf die Anforderungen in dem Experiment abgestimmt wurde, ist in Abbildung 3.33 gezeigt. Der gesamte Detektor ist dabei federnd gelagert und wird beim Einbau bündig in den letzten Linsen-Tubus des Flugzeitspektrometers gepresst (siehe Inlet).

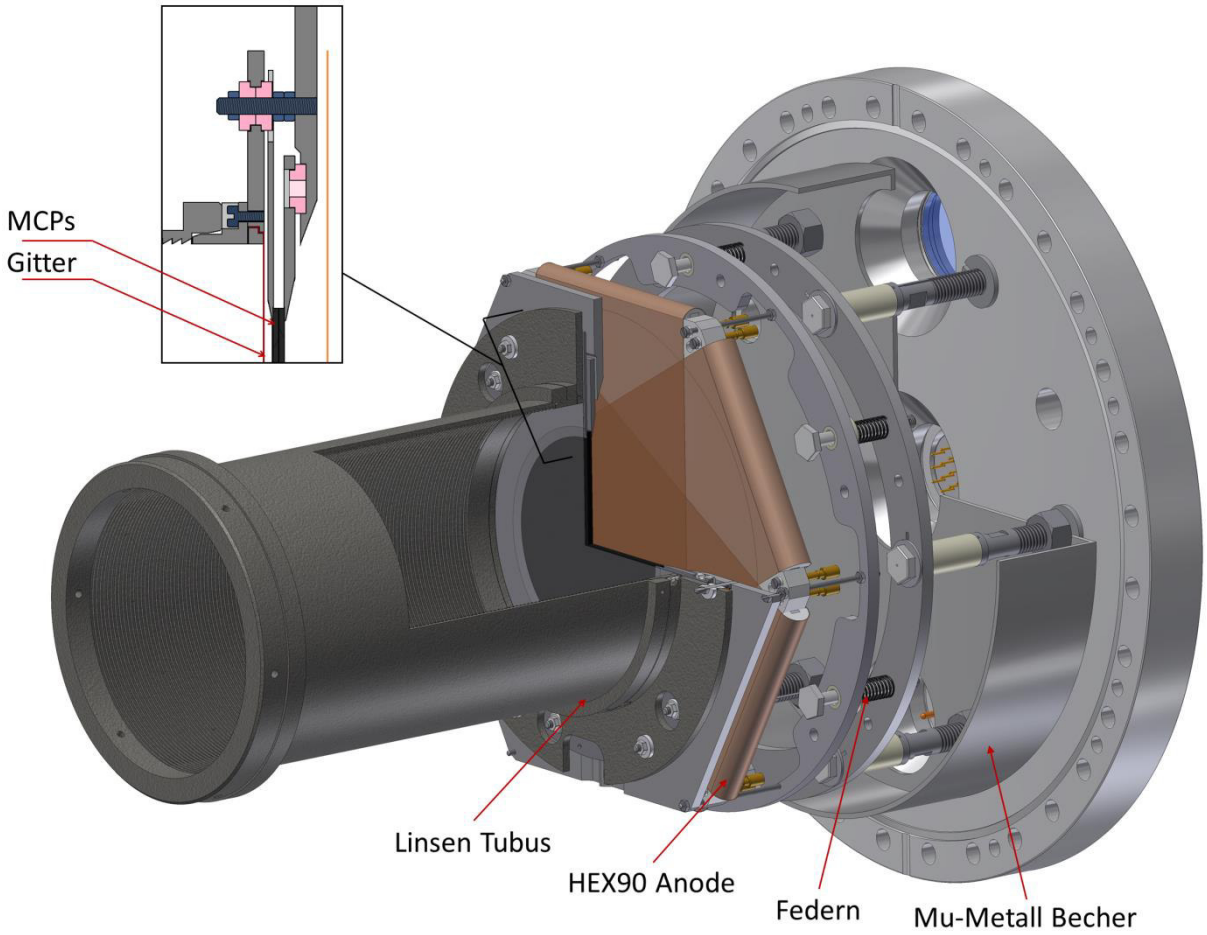


Abbildung 3.33: Bei dem neu konstruierten Elektronendetektor ist der Abschnitt, auf dem die HEX-Anode und die MCPs aufgebaut sind, komplett federnd gelagert und wird beim Einbau mithilfe eines Führungsrings (siehe Inlet) in den letzten Linsen-Tubus des Spektrometers gepresst, wodurch er an seiner genau definierten Position sitzt. Der Abstand des Gitters zu den MCPs kann durch die neue Konstruktionsweise stufenlos eingestellt werden, mit einem Mindestabstand von ca. 1 mm.

In den folgenden beiden Abschnitten sollen die physikalische Funktionsweise des Elektronennachweises sowie die elektronische Signalverarbeitung bis hin zu den digitalisierten Daten auf dem Messrechner beschrieben werden. Anschließend wird kurz die erreichte Orts- und Zeitauflösung des Detektors diskutiert.

3.6.1 Funktionsweise des Elektronennachweises

Der ebene Abschluss des Flugzeitspektrometers wird durch ein gespanntes Gitter gebildet (siehe Inlet Abbildung 3.33), welches gleichzeitig die Detektionsebene definiert (graphitiertes Edelstahl-Gitter mit einer Transmission von ca. 78%; Maschenweite 0,14mm, Drahtdurchmesser 0,02mm). Knapp 3 mm dahinter befindet sich eine Anordnung von zwei bzw. drei[67] Mikrokanalplatten (MCPs – *Multichannel plates*), wie in Abbildung 3.34 gezeigt. Dabei handelt es sich um ca. 1.1/1.5 mm dicke Bleiglasplatten, in welche ca. 25 µm breite Kanäle leicht schräg (ca. 10° zur Oberflächennormalen) eingelassen sind. Das Verhältnis von Kanalöffnungen zur Gesamtoberfläche beträgt ca. 45%/64%. Die Innenseiten der Kanäle sind mit einem hochohmigen Material mit geringer Austrittsarbeit (typisch Inconel oder Nichrome - Nickelbasislegierung) beschichtet (Details siehe [Burl05, Hama12]). Wird eine hohe Spannung zwischen Vorder- und Rückseite der Platten angelegt (typisch 800 V bis 1000 V pro Platte), funktionieren die Kanäle als Sekundarelektronenvervielfacher. Die Nachweiseffizienz kann dabei durch Erhöhung der kinetischen Energie der primär auftreffenden Elektronen gesteigert werden. Dazu wird die Vorderseite des MCP-Stapels relativ zum Gitter auf ein Potential von + 200 V gelegt [GoWi84]. Bei der Verwendung von zwei oder drei MCPs hintereinander wird ein Verstärkungsfaktor von ca. 10^6 bis 10^7 erreicht.

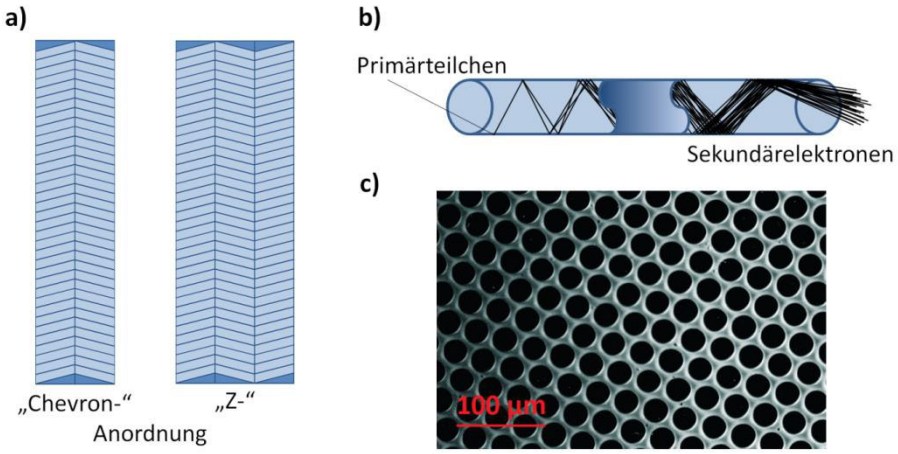


Abbildung 3.34: a) Die beiden verwenden MCP Anordnungen. Dabei sind die Kanäle so ausgerichtet, dass Elektronen das Stack nicht durchfliegen können, ohne auf Wände aufzutreffen. b) Schematische Darstellung der Elektronenvervielfachung. c) Aufnahme der MCP Oberfläche.

Die Elektronenlawinen, die den MCP-Stapel auf der Rückseite verlassen, werden von drei dahinterliegenden Drahtlagen einer HEX-Anode, welche auf einem höheren Potential als die Rückseite der MCPs liegen, aufgesammelt (siehe Abbildung 3.35 (b)). Die drei Drahtlagen bestehen jeweils aus zwei parallel laufenden Drähten (Lecher-Leitung), welche um Keramikhalter gewickelt sind. Die zwei Drähte einer Lage befinden sich dabei auf unterschiedlichem Potential (Signal-Draht ca. 50 V über dem Referenz-Draht), wodurch Elektronen primär auf den Signal-Draht gezogen werden und ein differentielles Signal entsteht (Spiegelladung). Die Signale[68], welche zu den Enden der Drahtlagen propagieren, werden mit Hilfe von Pulstransformatoren ausgekoppelt. Dies entspricht einer

[67] Die Konfigurationen der Strahlzeiten war unterschiedlich: Berlin 1&2 sowie Soleil 1 zwei MCPs, Soleil 2 drei MCPs.

[68] Die Signalform hängt dabei von der Anzahl der Elektronen aufsammelnden Wicklungen, gefaltet mit der Signalverzögerung pro Wicklung, sowie der Zeitstruktur der Elektronenlawine selbst ab.

Differenzbildung aus Signal- und Referenzdraht, wodurch alle Störsignale, welche auf beide Drähte gleich einkoppeln, herausgefiltert werden.

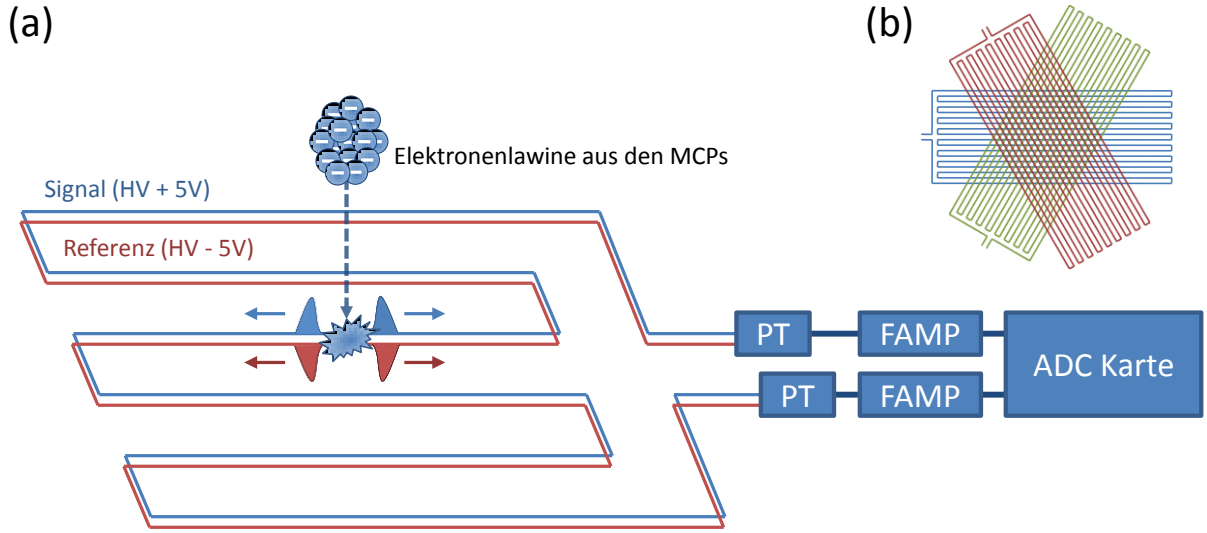


Abbildung 3.35: a) Die Elektronenlawine, die den MCP-Stapel auf der Rückseite verlässt wird von den dahinterliegenden Drahtlagen der Anode aufgesammelt (zur Übersicht ist nur eine der drei Drahtlagen gezeigt.). Dabei verlaufen immer zwei Drähte (sog. Signal-Draht und Referenz-Draht) parallel, welche Spannungspulse nach dem Prinzip der Lecher-Leitung transportieren. Am jedem Paarende wird das differenzielle Signal durch einen Pulstransformator (PT) von der Hochspannung abgekoppelt und anschließend von einem schnellen Vorverstärker (FAMP) verstärkt, bevor es in die ADC Aufnahme-Karten eingespeist wird. b) Anordnung der drei hintereinanderliegenden Drahtlagen (u, v, w) bei der verwendeten HEX90-Delayline-Anode.

Nach den Pulstransformatoren werden die Signale mit schnellen Verstärkern (FAMP – *Fast timing Amplifier*) auf Signalhöhen von ca. 400 mV verstärkt, bevor sie in das ADC-Datenaufnahmesystem gegeben werden.

3.6.2 Datenaufnahmesystem

In diesem Experiment wurden Transientenrekorder zur Datenaufzeichnung verwendet, welche die analogen Signale (Transienten) mit einer hohen Rate abtasten (*sample*) und digitalisieren (ADC - *Analog to Digital Converter*). Konkret wurden dazu zwei miteinander synchronisierte Ndigo5G-10 flash-ADC Karten von *cronologic* [crono] mit jeweils 4 Kanälen eingesetzt, welche sich direkt im Messrechner befinden (PCIe).

Die Abtastrate der ADC-Karten beträgt 1.25 $\frac{GSamples}{s}$ (entspricht einem Datenpunkt alle 800 ps) mit einer 10-bit Auflösung und einer maximalen Signalamplitude von ±0.25 V. Durch eine einstellbare ±0.25 V Grundlinien-Verschiebung ist es möglich, die unipolaren Signale des Detektors so verschieben, so dass diese mit einer möglichst hohen Anzahl an unterschiedlichen Abtastpunkten erfasst werden können (das Signal wird beinahe auf die vollen ±0.25 V verteilt). Zusätzlich verfügen die Karten über eine *onboard* Null-Unterdrückung, welche besonders hohe Aufnahmeraten ermöglicht.

Die Datenaufnahme wird mit dem MCP-Signal[69] ausgelöst (getriggert), um welches herum die ADC-Karten ein einstellbares Zeitfenster öffnen (sowohl in die Vergangenheit als auch in

[69] Der zum Ladungsausgleich (verlassende Elektronenlawinen) nötige Stromfluss erzeugt einen kurzen Spannungsabfall (Spannungspuls), welcher kapazitiv ausgekoppelt wird.

die Zukunft), indem alle darin liegenden Signale (Anoden, MCP, Buchmaker-Signal) aufgezeichnet werden. Bei dem Bunchmaker-Signal handelt es sich um ein von der Synchrotronanlage zur Verfügung gestelltes periodisches Signal, welches mit der Umlaufzeit der Elektronen-Pakete im Speicherring verknüpft ist. Am Soleil bedeutet dies ein NIM-Signal mit einer präzisen Wiederholrate von 6.77 MHz. Um nicht Millionen Bunchmaker-Signale pro Sekunde aufzuzeichnen, verfügen die ADC-Karten über interne Gates, mit denen eingestellt werden konnte, dass pro Trigger-Signal nur insgesamt vier Bunchmaker-Signale mitaufgezeichnet werden.

Wie aus den aufgezeichneten Signalen (Anoden, MCP, Bunchmaker) diskrete Zeitpunkte extrahiert werden und schließlich der zweidimensionale Auftreffort auf dem Detektor sowie die Flugzeit berechnet wird, ist im Abschnitt 4. *Datenanalyse* ausführlich beschrieben. Ebenfalls werden die Vorteile bei der Verwendung einer HEX-Anode in diesem Zusammenhang erklärt.

3.6.3 Orts- und Flugzeitauflösung des Detektorsystems

Die Orts- und Zeitauflösung des Detektorsystems ist später, neben anderen limitierenden Faktoren, mitentscheidend für die erreichbare Energie- und Winkelauflösung des gesamten Experiments. Im Folgenden soll die quantifizierbare Orts- und Zeitauflösung des Detektors diskutiert werden.

Ortsauflösung

Die Untergrenze der Ortsauflösung ist durch die Porengröße bzw. deren Abstand auf dem MCP (ca. 30 µm) limitiert. Im Idealfall sollte dabei das Abschlussgitter des Spektrometers nur eine Art Schatten vom Drahtdurchmesser (20 µm) werfen, allerdings verhindert das Gitter dabei gleichzeitig das Eingreifen der MCP-Frontspannung (+200 V) in das Spektrometer. Felddurchgriffe durch die Maschen des Gitters wirken dabei wie elektrostatische Mikrolinsen, welche die Ortsauflösung verschlechtern. Vor allem für langsame Elektronen sollte aufgrund einer Überfokussierung die Ortsauflösung immer stärker verschlechtert werden, was allerdings ein notwendiger Trade-off ist, um die Detektionswahrscheinlichkeit speziell für Doppelphotoemissions-Messungen zu erhöhen.

Die Ortsauflösung der dahinter liegenden Anode kann, da es sich durch die Verwendung von drei Drahtlagen um redundante Informationen handelt, direkt bestimmt werden. Das Ergebnis ist in Abbildung 3.36 zu sehen und zeigt eine durchschnittliche Ortsauflösung der Anode von 95.9 µm.

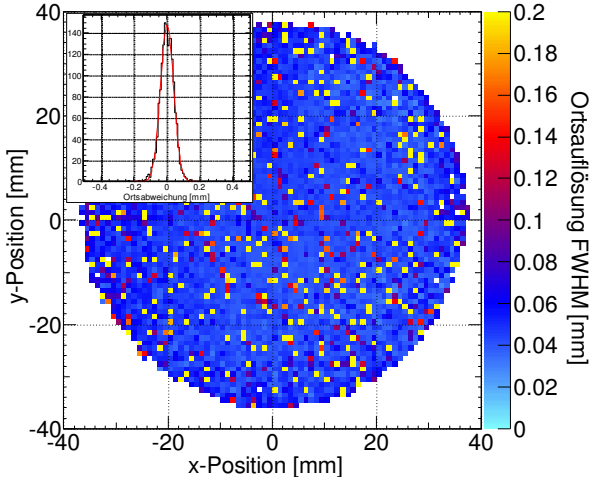


Abbildung 3.36: Die ortsabhängige Ortsauflösung der Anode. Im Inlet ist eine durchschnittliche Ortsauflösung gezeigt (95.9 µm FWHM).

Zeitauflösung

Die Flugzeitauflösung setzt sich wie die Ortsauflösung aus mehreren Faktoren zusammen, von denen die quantifizierbaren Faktoren in Tabelle 3.4 aufgelistet sind.

Breite der Elektronenpakete im Speicherring (Soleil)	70 ps FWHM
ADC-Zeitauflösung für das Bunchmarker Signal (gemessen)	13.05 ps FWHM
Zeitauflösung des Detektors	
- MCP Zeitauflösung (Abschätzung)	30 ps FWHM
- Anodenzeitauflösung (gemessen/berechnet)	180 ps FWHM
- Maximale Gitter Verzögerung (simuliert)	100 ps FWHM

Tabelle 3.4: Auflistung der die Flugzeitauflösung bestimmenden Faktoren. Bei der MCP Zeitauflösung handelt es sich um einen abgeschätzten Wert, der nicht sinnvoll berechnet werden kann.

Mit Gauß'scher Fehlerfortpflanzung ergibt sich für die Flugzeitauflösung ein Wert von ca. 220 ps.

4 Datenanalyse

Bei der Datenanalyse müssen aus den aufgezeichneten ADC-Rohdaten (ADC-Spuren von den Anoden, dem MCP und den Bunchmarkersignalen) die Emissionsrichtungen sowie die Startenergien für jedes einzelne Elektron extrahiert werden. Dazu sind drei aufeinanderfolgende Schritte nötig:

1. Extrahieren der Zeitpunkte der einzelnen Signale aus den ADC-Rohdaten.
2. Berechnen der Flugzeiten und der Auftrefforte der Elektronen.
3. Konvertieren der Flugzeiten und Auftrefforte in Startwinkel und Startenergie.

Nach einer kurzen Beschreibung dieser drei Schritte soll das für diese Arbeit entwickelte Datenanalyseprogramm *Sandbox Analyze* vorgestellt werden, mit welchem die physikalische Analyse der experimentellen Daten (Auswertung) durchgeführt wurde.

4.1 ADC Pulsanalyse

Aus den von den ADC-Karten aufgezeichneten analogen Signalen (der sechs Anodenenden, dem MCP und den Bunchmarkern), welche als ADC-Rohdaten vorliegen (zeitkontinuierliche Signale, siehe Abbildung 4.1 schwarze Punkte), müssen zeitdiskrete Signale bestimmt werden (im Folgenden als Zeitpunkte bezeichnet). Dazu existieren mehrere unterschiedliche Verfahren, wie zum Beispiel der Constant-Fraction-Discrimination- (CFD), der Schwerpunkts- (COM – *center of mass*) oder der Flanken-Fit-Algorithmus. Die in dieser Arbeit verwendeten CFD- und COM-Algorithmen basieren auf der Arbeit von Lutz Foucar, in dessen Doktorarbeit [Fouc08] eine detaillierte Beschreibung zu dem Thema zu finden ist.

4.1.1 Einzelpulserkennung

Für die Erkennung von Einzelpulsen von den Anoden und dem MCP wurde der CFD-Algorithmus eingesetzt. Nur für die Bunchmarker musste aufgrund ihrer nicht genügend geglätteten Signalform[70] ein speziell angepasster Flanken-Fit eingesetzt werden:

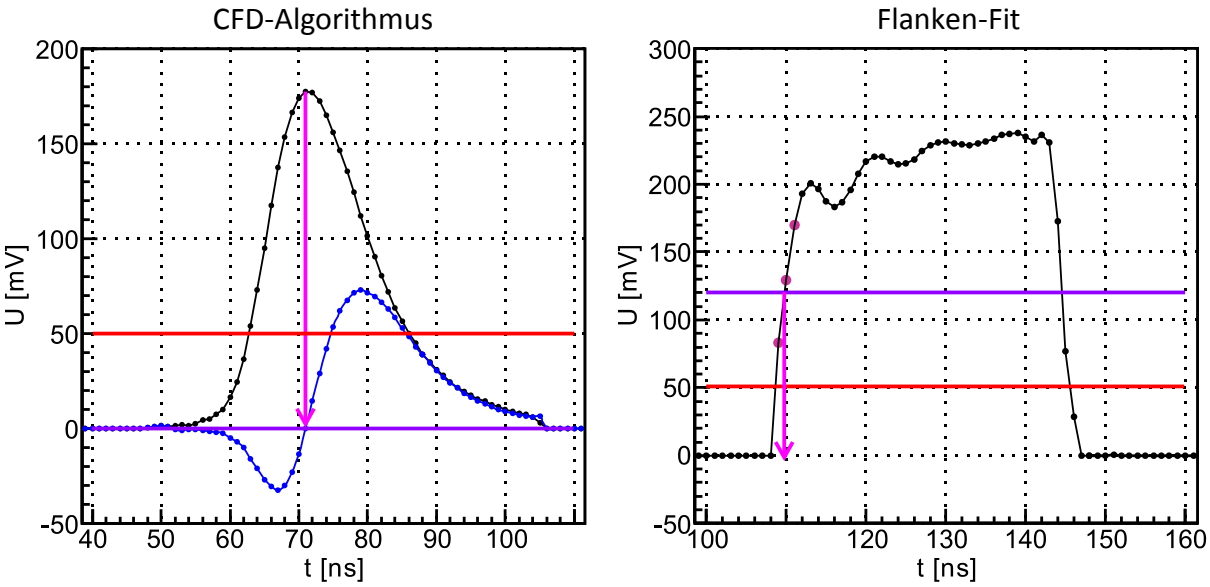


Abbildung 4.1: Die beiden verwendeten Methoden zur Bestimmung des Zeitpunktes von Einzelpulsen (schwarz). Die roten Linien markieren die gesetzten Schwellen (Threshold). Links) Beim CFD Algorithmus ist das berechnete CFD-Signal Blau (Erklärung siehe Text unten) und das eingestellte Walk-level Lila dargestellt. Rechts) Beim Flanken-Fit sind die drei verwendeten Punkte für eine 3-Punkte-Bézierkurve hervorgehoben und die lilafarbene Linie markiert den verwendeten Schnittpunkt. Die pinken Pfeile markieren jeweils den gefundenen diskreten Zeitpunkt für die Signale.

Der CFD-Algorithmus ist dabei dem Hardwaremodul eines Constant-Fraction-Discriminators nachempfunden. Dieser dient dazu, den exakten Zeitpunkt eines breiten symmetrischen Signals schwankender Signalamplitude, aber mit konstanter Anstiegszeit, zu extrahieren. Praktisch wird dazu eine Kopie des Signals mit einem festen Wert (*Fraction Ratio*) multipliziert, invertiert und um einen festen Wert (*Delay*) verzögert, bevor es zum Originalsignal addiert wird. Das resultierende berechnete „CFD-Signal“ (siehe Abbildung 4.1 links; blaue Kurve) hat nun einen Nulldurchgang, dessen Position bzw. Zeitpunkt unabhängig von der Signalhöhe ist. Um den Zeitpunkt des Nulldurchgangs möglichst exakt zu bestimmen,

[70] Bei dem vom SOLEIL zur Verfügung gestellten Bunchmarkersignal handelt es sich um einen rechteckigen NIM-Puls (logische 1: -0.6 V).

wird ein Polynom dritten Grades durch die ersten beiden diskreten Punkte unterhalb und oberhalb des Nulldurchgangs gelegt.

Bei dem Bunchmarker-Signal handelt es sich um ein künstlich erzeugtes Rechteck-Signal, welches von der Synchrotronanlage zur Verfügung gestellt wird. Durch elektrische Abschwächer wurde die Signalform möglichst abgeflacht, um die Flanken mit möglichst vielen Abtastungspunkten erfassen zu können. Dadurch wurde es möglich, einen Flanken-Fit (3-Punkte Bézierkurve) an der ansteigenden Flanke durchzuführen. Die dazu benutzten Punkte (Anzahl und Auswahl) sowie die Schnittpunkthöhe (siehe Abbildung 4.1) konnten dabei soweit optimiert werden, dass eine Zeitauflösung von besser als 13.05 ps (FWHM) erreicht wurde.

Im Prinzip unterscheidet sich die Einzelteilchenmessung mit ADCs nicht von einer Messung mit CFD Hardwaremodulen und einem Time-to-Digital-Converter (TDC). Der Vorteil bei Messungen mit ADCs ist allerdings, dass die CFD-Einstellungen (Fraction Ratio, Delay und Walk-Level) im Nachhinein noch optimiert bzw. Fehler korrigiert werden können. Unvorteilhafte Eigenschaften, die in Kauf genommen werden müssen, sind dabei die geringere maximale Aufnahmerate (ca. 30 kHz[71]) sowie die größere anfallende Datenmenge (ca. Faktor 500[72] in Vergleich zu TDC Messungen).

4.1.2 Doppelpulserkennung

Der entscheidende Vorteil bei der Verwendung von ADCs für dieses Experiment liegt in der Möglichkeit, auch sehr nah beieinanderliege oder sogar sich schon überlappende Signale korrekt voneinander trennen zu können.

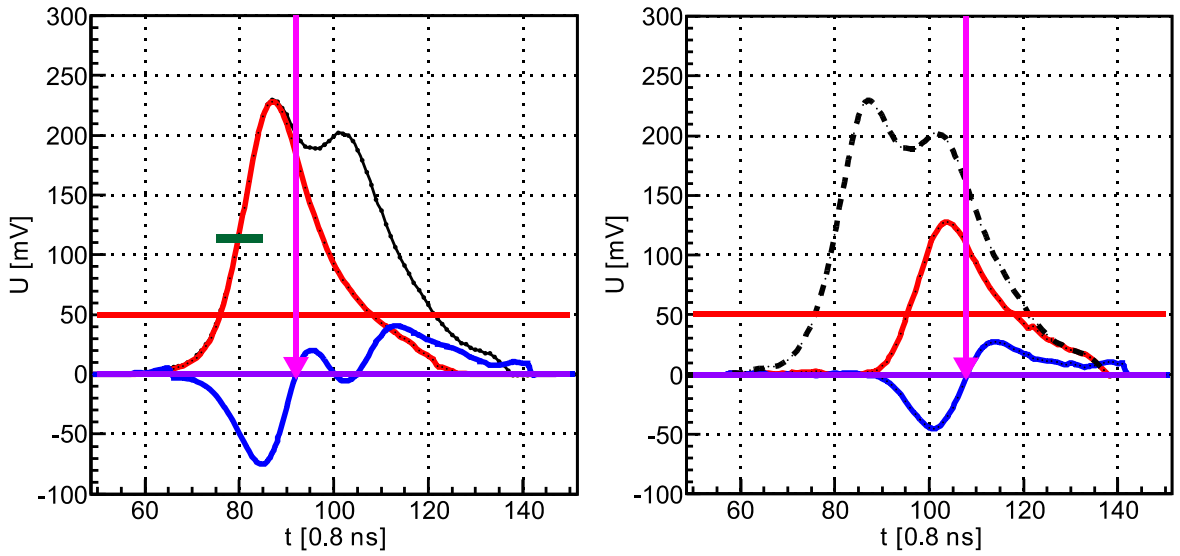


Abbildung 4.2: Links) Schwarz: Aufgezeichnetes Signal; Blau: Berechnetes CFD-Signal; Pinker Pfeil: CFD-Zeitpunkt; Grün: Steigende Flanke für Fit; Rot: Angefitteter Durchschnittspuls. Rechts) Blau: Berechnete CFD-Signal; Pinker Pfeil: CFD-Zeitpunkt; Rot: Differenz aus aufgezeichneten Signal minus ersten angefitteten Durchschnittspuls.

[71] Die Aufnahmerate ist nicht nur durch die ADC-Karten limitiert, sondern hängt auch von der restlichen verwendeten Hardware, wie zum Beispiel den Festplatten, ab. Ebenfalls ist die Anzahl der aufgezeichneten Kanäle entscheidend.

[72] Diese Zahl bezieht sich auf einen HEX-Detektor (6 Anoden-Enden) plus ein MCP und vier Bunchmarker-Signale.

Bei der zusammen mit Robert Wallauer [Wall11, WVFB12] entwickelten Doppelpulsanalyse wird im ersten Schritt (Abbildung 4.2 links) das aufgezeichnete Signal (schwarze Kurve) mit einem CFD-Algorithmus untersucht (blaue Kurve). Wird dabei ein Einzel-Puls erkannt (CFD-Zeitpunkt: pinker Pfeil), wird an die steigende Flanke bei halber Höhe (grüner Strich) ein laufzeitabhängiger Durchschnittspuls angefittet (rote Kurve). Dieser gefittete Durchschnittspuls wird vom aufgezeichneten Signal abgezogen und der Überrest (Abbildung 4.2 rechts; rote Kurve) wieder mit einem CFD-Algorithmus untersucht (blaue Kurve). Wird ein zweiter Einzel-Puls erkannt (pinker Pfeil), wird versucht, zwei laufzeitabhängige Durchschnittspulse an das aufgezeichnete Signal anzufitten (Abbildung 4.3 links; grüne Kurven), indem die Differenz zwischen der Summe der beiden Durchschnittspulse (rote gestrichelte Kurve) und dem aufgezeichneten Signal minimiert wird. Die durch die Position der beiden gefitteten Durchschnittspulse gefundenen neuen Zeitpunkte sind durch die beiden roten Pfeile markiert. Im letzten Schritt (Abbildung 4.3 rechts) werden die Ergebnisse der Doppelpulsanalyse kontrolliert. Die pinke Kurve zeigt den Unterschied zwischen dem aufgezeichneten Signal und der Summe der beiden angefitteten Durchschnittspulse, anhand derer sich potentielle Dreifach-Hits erkennen lassen (prozentuale Differenz > 25% des Signals). Die grüne Kurve zeigt die zweite Ableitung des Signals (zur Darstellung um den Faktor 10 vergrößert), wobei ein positiver Wert zwischen den beiden gefundenen Zeitpunkten, sprich eine Linkskrümmung (Konvexbogen), auf einen echten Doppelpuls hindeutet.

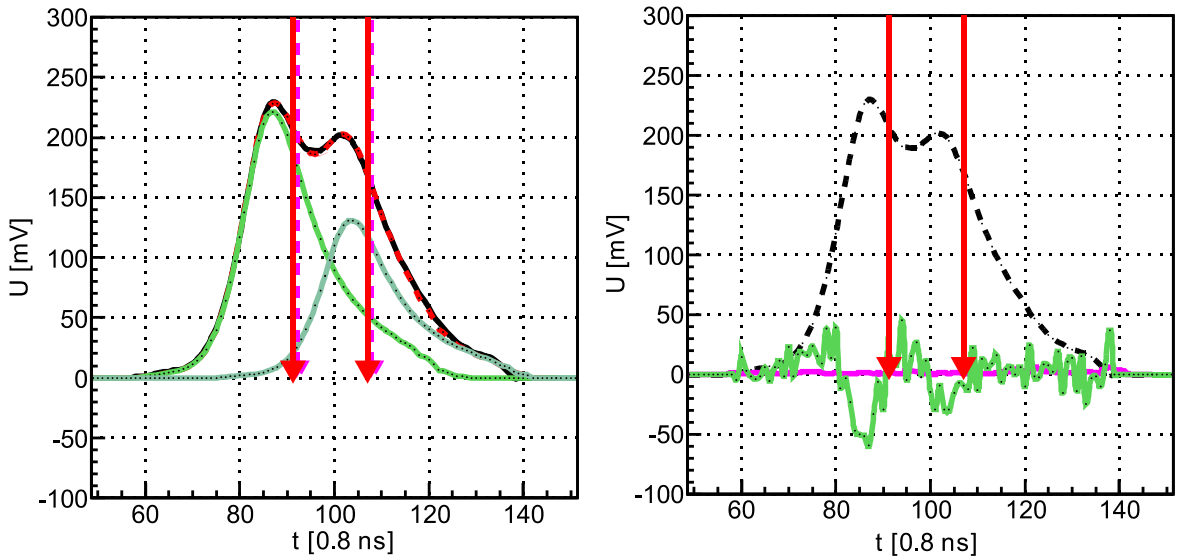


Abbildung 4.3: Links) Schwarz: aufgezeichnetes Signal; Grün: angefittete Durchschnittspulse; Rot gestrichelt: Summe der angefitteten Durchschnittspulse; Rote Pfeile: Zeitpunkte der beiden angefitten Durchschnittspulse. Rechts) Pink: Differenz zwischen den beiden angefitteten Durchschnittspulsen und dem aufgezeichneten Signal; Grün: Zweite Ableitung des aufgezeichneten Signals..

Neben der in Abbildung 4.3 erklärten zweiten Ableitung zur Identifikation von echten Doppelpulsen können noch weitere sogenannte Doppelfilter eingesetzt werden. Eine Auflistung der benutzen Doppelfilter ist in der Tabelle 4.1 angegeben.

Der Grund für die binäre Zählweise der sogenannten Doppelfilter ID ist die Möglichkeit, programmiertechnisch möglichst viele Informationen in einer einzelnen natürlichen Zahl (Integer) unterzubringen. Die Doppelfiltersumme ist in Abbildung 4.4 exemplarisch für eine Messung (4204) gezeigt.

ID	Beschreibung
1	Alle gefundenen Peaks über 80 mV
2	Linkskrümmung vorhanden
4	Anoden Layer-U hat ≥ 2 Punkte Linkskrümmung
8	Anoden Layer-V hat ≥ 2 Punkte Linkskrümmung
16	Anoden Layer-W hat ≥ 2 Punkte Linkskrümmung
32	Min. 2 Punkte Linkskrümmung vorhanden
64	Kein potentieller Dreifach-Hit *Durchschnittliche Abweichung des Doppel-Fits (Integral)kleiner (< 50%) Durchschnittspuls (Integral).*
128	Kein potentieller Dreifach-Hit *Anzahl der Pulse pro Layer-Ende (Kanal) kleiner Drei.*

Tabelle 4.1: Übersicht über die einsetzbaren Doppelfilter.

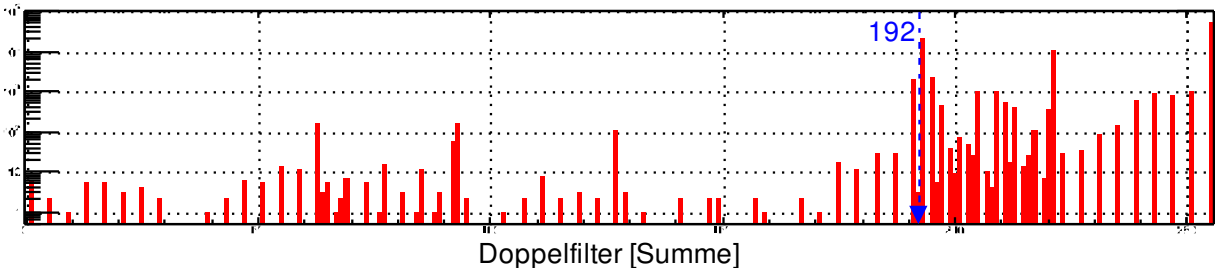


Abbildung 4.4: Doppelfiltersumme bei der Messung 4204. Unterhalb von 192 (≤ 128+64) befinden sich potentielle Dreifach-Hits.

Statt einzelne Doppelfilter nacheinander abzufragen (`DoppelfilterSumme&FilterID`) ist es so auch möglich, mehrere Doppelfilter in einer einzelnen Abfrage zu kombinieren, um die Geschwindigkeit der Analyse zu steigern. Zum Beispiel lässt sich mit einer Bedingung auf die Doppelfiltersumme ≥ 227 (1+2+*4/8/16*+32+64+128) eine sehr strenge Bedingung für einen echten Doppel-Hit formulieren. Das Ergebnis der Doppelpulsanalyse im Vergleich zur Benutzung einfacher CFD-Algorithmen ist in Abbildung 4.5 gezeigt.

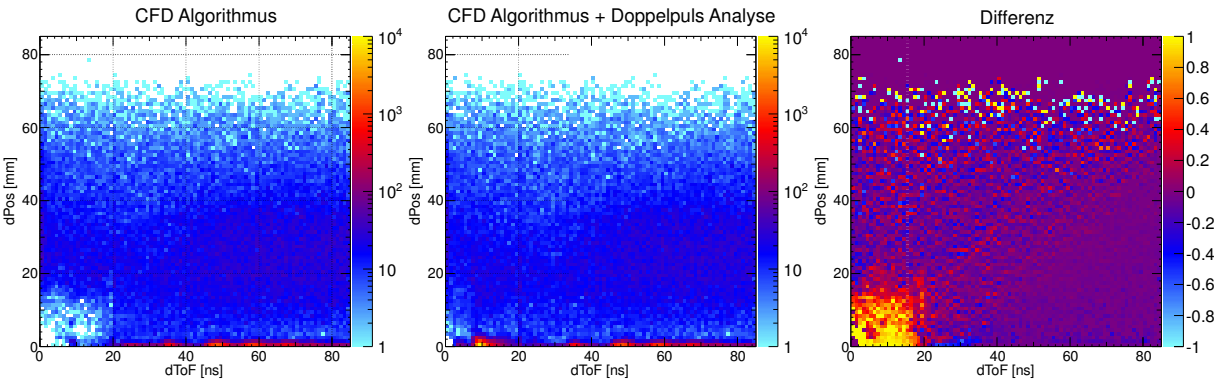


Abbildung 4.5: Gezeigt sind die gefundenen Doppelereignisse (Flugzeitunterschied und Ortsunterschied) mit dem CFD-Algorithmus, allein und mit dem CFD-Algorithmus plus Doppelpulsanalyse, sowie die gewichtete Differenz. Man erkennt deutlich, wie die angeschaltete Doppelpulsanalyse das sogenannte Totzeitloch bei kurzen Flugzeitunterschieden und nah beieinander liegenden Elektronen (dToF < 20ns & dPos < 20mm) auffüllt. Die Oszillationen bei kleinen Ortsunterschieden (dPos < 2 mm) sind das sogenannte Ionenfeedback, welches durch am MCP zurückgestreute Elektronen verursacht wird.

Neben den offensichtlich häufiger rekonstruierten Doppel-Hits bei kleinen Flugzeit- und Ortsunterschieden (dToF < 20 ns; dPos < 20 mm) kann durch eine korrekte Zeitbestimmung aus überlappenden Doppelpulsen mit einer generell verbesserten Rekonstruktion gerechnet werden (Details siehe [RWal10] Seite 68 ff.).

4.2 Berechnung der Flugzeiten und Auftrefforte

Um aus den von der ADC-Pulsanalyse erhaltenen Zeitpunkten (sechs Anodenenden, dem MCP und den Bunchmarkern) die Flugzeiten und die Auftrefforte der einzelnen Elektronen zu erhalten, muss zuerst der Detektor kalibriert werden, bevor anschließend die Berechnungen stattfinden können. Beide Schritte werden dabei von dem von Achim Czasch [ACza] entwickelten Software-Modul „*RESORT64*“ übernommen, deren interne Funktionsweise hier kurz vorgestellt wird.

4.2.1 Kalibration

Bei der Ortsmessung und der Flugzeitmessung handelt es sich um Laufzeitmessungen. Dabei ist es entscheidend, dass die Summe der Laufzeiten (die sogenannten Zeitsummen $\equiv t_{L1} + t_{L2} - 2 \times$ MCP) auf den Drahtlagen (L = {u,v,w}), möglichst konstant sind (also unabhängig vom Auftreffort).

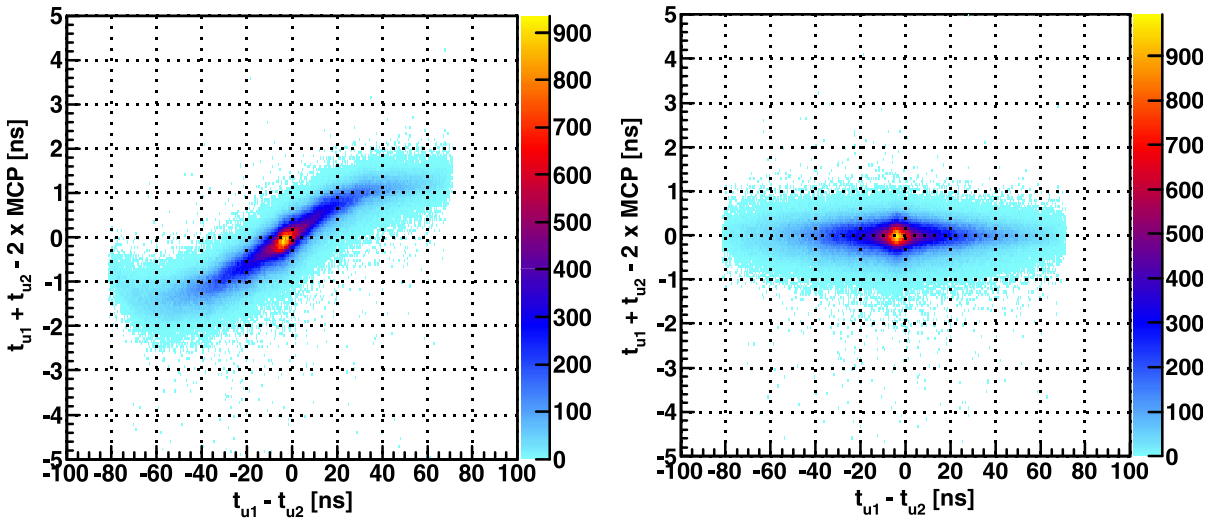


Abbildung 4.6: Links) Die gemessene Zeitsumme abhängig von der Position auf der u-Drahtebene. Rechts) Die korrigierte Zeitsumme mit Zeitsummen und nicht linearer Ortskorrektur.

Dies ist, wie man in Abbildung 4.6 links erkennen kann allerdings nicht der Fall. Die Zeitsumme ist stark abhängig von der Position ($t_{L1} - t_{L2}$) auf der Drahtlage. Um dies zu kompensieren, nutzt die Kalibration zwei Methoden:

- **Zeitsummenkorrektur**
  Bei der Zeitsummenkorrektur wird die Zeitsumme abhängig von der Position auf dem Layer ($t_{L1} - t_{L2}$) per Lookup-Tabelle korrigiert. Man erhält eine Abbildungsfunktion pro Layer:

$$f_L(t_{L1} - t_{L2}) \rightarrow t'_{L1} + t'_{L2}. \tag{4.1}$$

- **Nichtlineare Ortskorrektur**
  Die Position auf einer Drahtlage lässt sich, wie später bei der Ortsberechnung noch genauer erklärt wird, auch jeweils aus den anderen beiden Drahtlagen bestimmen. Es ist also möglich, die gemessene Position ($t_{u1} - t_{u2}$) mit der Position aus zwei anderen Drahtlagen ($t_{v1\&w1} - t_{v2\&w2}$) zu vergleichen. Dabei entsprechen $t_{v1\&w1}$ und $t_{v2\&w2}$ den korrigierten Laufzeiten t'_{u1} und t'_{u2}. Man erhält wieder eine Abbildungsfunktion pro Layer:

$$g_L(t_{L1} - t_{L2}) \rightarrow t'_{L1} - t'_{L2} \tag{4.2}$$

Im Detail wird diese Funktion in einem iterativen Prozess gewonnen. Man nutzt also direkt die gefundene Abbildungsfunktion für einen Layer, d.h. die korrigierten Laufzeiten, für die Berechnung der nächsten Abbildungsfunktion und wiederholt diesen Prozess pro Drahtebene insgesamt dreimal, um eine möglichst scharfe Abbildungsfunktion (ebenfalls wieder eine Lookup-Tabelle) für jeden Layer zu erhalten.

Kombiniert man die Zeitsummenkorrektur mit der nichtlinearen Ortskorrektur, erhält man die beiden einzelnen korrigierten Laufzeiten aus:

$$\begin{aligned} f(t_{L1} - t_{L2}) + g(t_{L1} - t_{L2}) &= 2 \times t'_{L1} \\ f(t_{L1} - t_{L2}) - g(t_{L1} - t_{L2}) &= -2 \times t'_{L2} \end{aligned} \tag{4.3}$$

Eine sich daraus ergebende korrigierte Zeitsumme ist in Abbildung 4.6 rechts gezeigt. Diese ist nun über den gesamten Layer nahezu konstant. Dadurch wird es auch möglich, für Signalsätze, bei denen einzelne Signale verloren gegangen sind (z.B. wenn Signale für die Doppelpulsanalyse zu eng beieinander liegen), fehlende Signale zu rekonstruieren. Die verschiedenen Möglichkeiten (Rekonstruktionsmethoden) sind in Tabelle 4.2 aufgelistet. Ab Rekonstruktionsmethode 15 werden diese als riskant bezeichnet, da für die Ortsbestimmung Signale aus den Zeitsummen erzeugt werden müssen, deren Konsistenz sich in diesen Fällen nicht überprüfen lässt.

Rekonstruktionsmethode	Signale auf den Layern	MCP-Signal
0	2+2+2	Ja
1-3	2+2+0	Ja
4-6	2+2+1	Ja
7	2+2+2	Nein
8-10	2+2+0	Nein
11-13	2+2+1	Nein
14	2+1+1	Ja
15	2+1+0	Ja
16	1+1+1	Ja
17	1+1+1	Ja
18	2+1+0	Nein
19	1+1+1	Nein

Tabelle 4.2: Überblick über die für die Rekonstruktionsmethoden verwendeten Signalsätze.

In Abbildung 4.7 sind die verwendenden Rekonstruktionsmethoden für Doppelereignisse gezeigt. Wird der CFD-Algorithmus verwendet (links), fehlen dem ersten Elektron meist zwei Anoden-Signale bei vorhandenem MCP-Signal (Rekonstruktionsmethode 14). Für das zweite Elektron hingegen fehlt das MCP-Signal fast ausschließlich (Rekonstruktionsmethode 7 - 13). Bei der Verwendung der ADC-Doppelpulsanalyse (rechts) werden für beide Elektronen sämtliche Anoden-Signale rekonstruiert (Mix aus Rekonstruktionsmethoden 0 und 7).

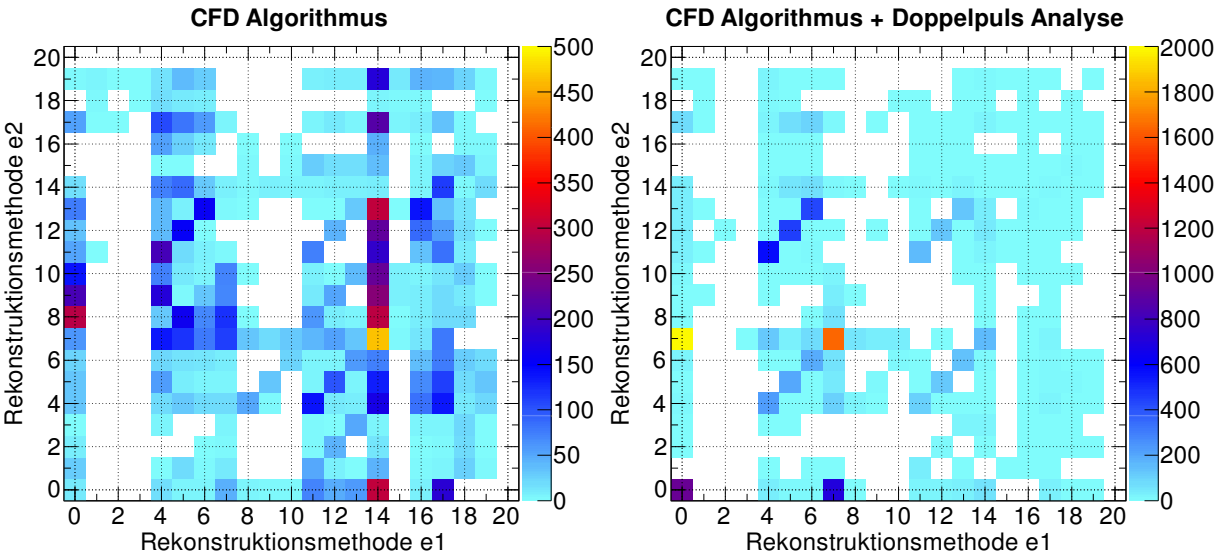


Abbildung 4.7: Die verwendeten Rekonstruktionsmethoden für beide Elektronen eines Doppel-Hits, für den Bereich: dToF < 20ns & dPos > 20mm.

4.2.2 Flugzeit

Das MCP-Signal wird als Ankunftszeit der Elektronen auf dem Detektor interpretiert. Mit Hilfe eines der folgenden Bunchmarker ist es dann möglich, die Flugzeit der Elektronen zu bestimmen, wie in Abbildung 4.8 beschrieben.

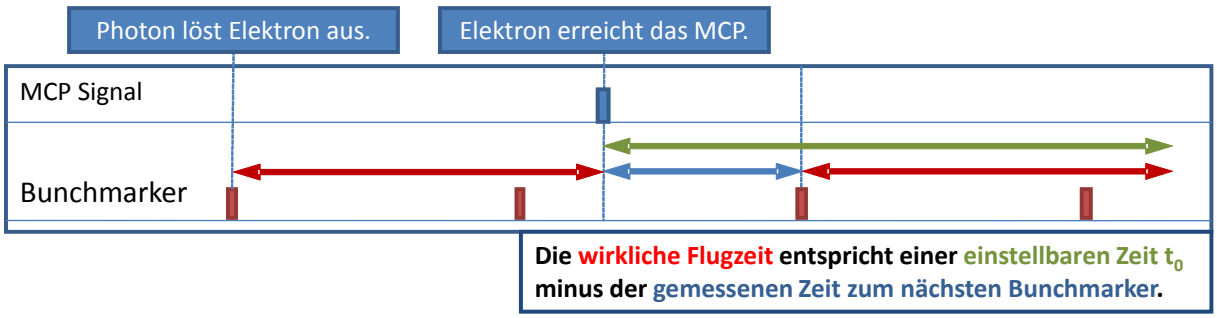


Abbildung 4.8: Prinzip der Flugzeitmessung an einer gepulsten Quelle mit fester Repetitionsrate. Die korrekte Zeit t_0 lässt sich mithilfe von bekannten Flugzeiten, z.B. der Photonen kalibrieren, wie in Abschnitt *5.1.1 Kalibration des Spektrometers* beschrieben.

Ist das MCP-Signal nicht erkannt worden, kann es nach der Kalibration aufgrund der konstanten Laufzeitsumme auf den Layern (SUM_L) aus den einzelnen Laufzeiten (t_{u1}, t_{u2}, t_{v1}, t_{v2}, t_{w1}, t_{w2}) rekonstruiert werden:

$$MCP = \frac{1}{2}\left(t_{L1} + t_{L2} - SUM_L\right) \tag{4.4}$$

Da das MCP-Signal bei einem Großteil der zweiten Elektronen fehlt (siehe Abbildung 4.7), ist es sinnvoll, diese rekonstruierten MCP-Signale für sämtliche Flugzeitberechnungen sowohl für Einzel-Hits als auch für rekonstruierte Doppel-Hits einheitlich zu verwenden. Sind die Signale mehrerer Layer vollständig vorhanden, wird das MCP-Signal über mehrere Layer gemittelt.

Ist bei dieser Flugzeitberechnung die experimentelle Flugzeitverteilung breiter als der Bunchmarkerabstand, ist in den überlappenden Bereichen keine eindeutige Zuordnung der Flugzeit für Einzel-Events mehr möglich, was zu einer begrenzten experimentellen Energieauflösung führt (siehe A.2.2.4 *Repetitionsratenbegrenzung* auf Seite 159).

4.2.3 Auftrefforte

Die eindimensionalen Auftrefforte entlang der einzelnen Drahtlagen (L = {u, v,w}) lassen sich aus den Zeitdifferenzen der Signale an ihren beiden Enden (Laufzeiten: $t_{L1,L2}$) bestimmen:

$$\begin{aligned} u &= f_u(t_{u1} - t_{u2}) \\ v &= f_v(t_{v1} - t_{v2}) \\ w &= f_w(t_{w1} - t_{w2}) + w_{offset} \end{aligned} \tag{4.5}$$

Dabei sind f_u, f_v und f_w die Umrechnungsfaktoren zwischen der Laufzeit in ns und dem Ort in mm für die einzelnen Drahtlagen. Der Parameter w_{offset} sorgt dafür, dass sich für die drei Drahtlagen ein gemeinsamer Mittelpunkt finden lässt.

Da die drei Drahtlagen jeweils 60° gegeneinander gedreht sind (siehe Abbildung 3.35 (b) auf Seite 73), lässt sich der zweidimensionale Auftreffort (x, y) aus jeweils zwei beliebigen Drahtlagenpaaren ((u,v), (u,w) oder (v,w)) berechnen:

$$x = \begin{cases} u \\ u \\ v - w \end{cases}, y = \begin{cases} 1/\sqrt{3}\,(u - 2v) \\ -1/\sqrt{3}\,(u + 2w) \\ -1/\sqrt{3}\,(v - w) \end{cases} \tag{4.6}$$

Die Verwendung einer HEX-Anode bringt dabei, neben der beschriebenen nichtlinearen Ortskorrektur, auch eine wesentlich verbesserte Multi-Hit-Effizienz gegenüber einer herkömmlichen Quad-Anode (zwei 90° gegeneinander gedrehte Drahtlagen) mit sich, wie in Abbildung 4.9 gezeigt.

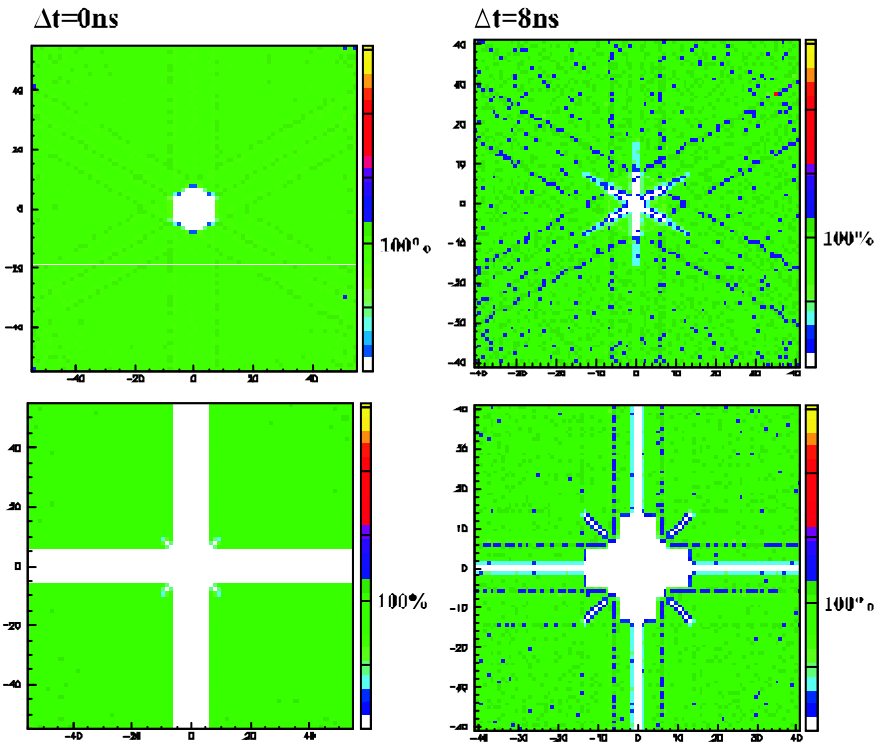


Abbildung 4.9: Vergleich der theoretischen Nachweiseffizienz einer Hex- (oben) und einer Quad-Anode (unten) für ein zweites Elektron, das gleichzeitig (links) oder 8 ns verzögert (rechts) auf den Detektor trifft. Das erste Elektron trifft dabei in der Mitte des Bildes auf. Entnommen aus [ACza].

4.3 Konvertierung in Startwinkel und Energie

Das verwendete Flugzeitspektrometer bzw. die elektrostatische Linse bildet die Elektronen vom Startenergie/Startwinkel-Raum (von nun an als Energie und Theta bezeichnet) in den Flugzeit/Radius-Raum ab (A):

$$A(Energie, Theta) \rightarrow (Flugzeit, Radius) \tag{4.7}$$

Aufgrund der Komplexität der elektrostatischen Felder gibt es jedoch keine analytische Lösung für diese Abbildung und dementsprechend auch keine analytische Umkehrfunktion (U), mit welcher aus den gemessenen Flugzeiten und Auftrefforten (Radius) auf die Energie und Theta zurückgerechnet werden könnte:

$$U(Flugzeit, Radius) \rightarrow (Energie, Theta) \tag{4.8}$$

Statt einer analytischen Berechnung der Flugbahnen sind jedoch numerische Lösungen bzw. Simulationen (S) verfügbar:

$$S(Energie, Theta) \rightarrow (Flugzeit, Radius) \tag{4.9}$$

Für diese Simulation wird das Ionenoptik-Simulationsprogramm SIMION 8.1 (siehe 4.3.1 *SIMION*) verwendet.

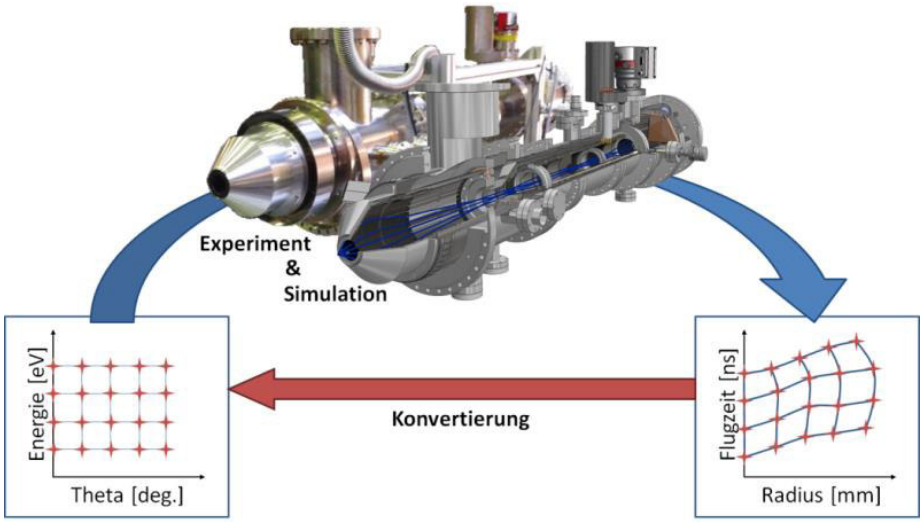


Abbildung 4.10: Die Messungen sind darauf angewiesen, dass das Experiment und die Simulation möglichst gut miteinander übereinstimmen.

Dadurch kann mit Hilfe der Simulation, statt einer wie oben beschriebenen Umkehrfunktion (U), eine numerische Konvertierung (K) erstellt werden:

$$K(Flugzeit, Radius) \rightarrow (Energie, Theta) \tag{4.10}$$

Das Zusammenspiel von Experiment und Simulation ist in Abbildung 4.10 veranschaulicht. Einige der Besonderheiten der für diese Arbeit entwickelten Konvertierung sind der große abgedeckte Bereich sowie die hohe Konvertierungsgeschwindigkeit, welche aufgrund der Datenmenge der eventbasierenden Messmethode auch benötigt wird. Der gesamte Prozess der Simulation, Erstellung der Konvertierung und der Datenanalyse sind in dem für diese Arbeit entwickelten Softwarepacket *Sandbox Analysis* zusammengeführt, welches im Abschnitt 4.4 *Sandbox Analyze* noch ausführlich erklärt wird.

4.3.1 SIMION

Bei SIMION (Version 8.1.0.48) handelt es sich um ein Ionenoptik-Simulationsprogramm, welches heute aufgrund seiner weiten Verbreitung als eine Art Industriestandard gilt (siehe Abbildung 4.11). Dabei werden die elektrischen Felder von Elektrodenkonfigurationen (in dieser Arbeit elektrostatischer Linsen) mit einstellbaren Spannungen berechnet. Wobei das Grenzwertproblem in Form der Laplace-Gleichung mit einer Finite-Differenzen-Methode mit selbstjustierender Über-Relaxion gelöst wird. Dazu kann ausgenutzt werden, dass die Lösung des elektrischen Feldes sich aus der Summe der Einzellösungen der einzelnen Elektroden zusammensetzt.

Zur Berechnung der Trajektorien, also der Simulation der geladenen Teilchen, wird ein numerisches Integrationsverfahren (vierstufiges Runge-Kutta-Verfahren) eingesetzt. Besonderheiten dabei sind der selbstjustierende Zeitschnitt und die damit verbundene effizientere Erkennung von Kanten bzw. Grenzflächen. SIMION ist dahingehend optimiert worden die Genauigkeit zu verbessern, während die Anzahl der Integrationsschritte minimiert wird (Details siehe [SIMION] oder [CPOTS]).

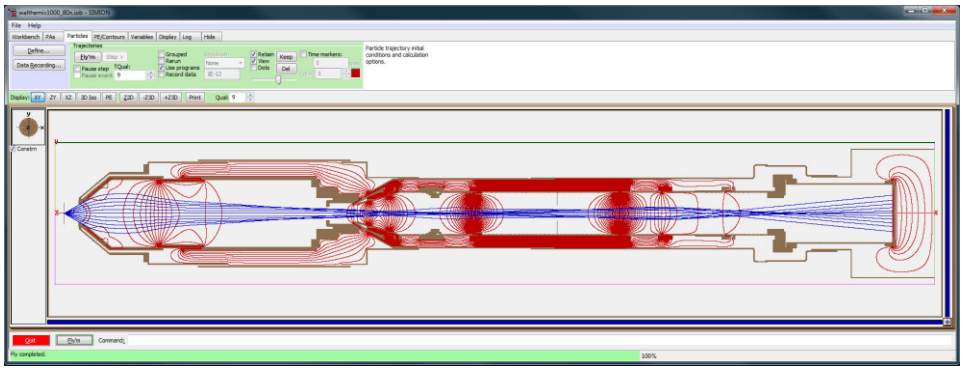


Abbildung 4.11: Grafische Benutzeroberfläche von SIMION 8.1. Gezeigt wird eine Simulation des Spektrometers (Themis und WAL) mit der Linseneinstellung Ekin 100/Epass 100 für 100 eV Elektronen (blaue Trajektorien) mit verschiedenen Startwinkel (30°-23°..-30°) sowie die von SIMION berechneten elektrischen Äquipotentiallinien (Rot).

4.3.2 Konvertierung (Conversion)

Basis einer Konvertierung ist eine möglichst exakte Simulation des Spektrometers. Bei den simulierten Elektronen bzw. Simulationspunkten handelt es sich um ein Gitter im Energie- [eV]/Theta- [deg.] Raum, dessen Maschenweite (Energie- und Theta-Schritte) automatisch so gewählt wurden, dass das resultierende Gitter im Flugzeit- [ns]/Radius- [mm] Raum möglichst homogen ist. Die durch die Simulation S(Energie,Theta)→(Flugzeit,Radius) gelieferte 2D→2D Abbildung (4D) lässt sich als zwei 1D→2D Abbildungen (S(Energie)→(Flugzeit,Radius), S(Theta)→(Flugzeit,Radius)) darstellen:

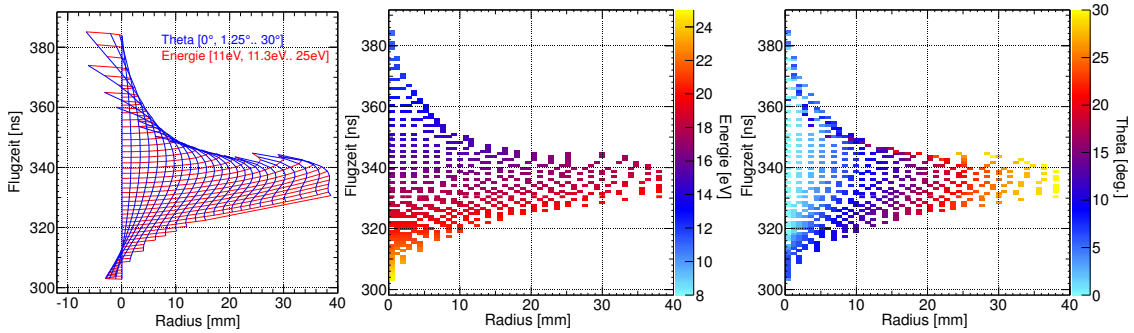


Abbildung 4.12: Links) Für die Erstellung der Lookup Tabellen (Linseneinstellung Ekin 18/Epass 35) berechneten Simulationspunkte. Im der Mitte ist die Energie [eV] und rechts der Startwinkel Theta [deg.] dazu farblich kodiert.

Da die Energie sowie Theta, abgesehen von den Randbereichen, jeweils eine glatte dreidimensionale Funktion bilden, ist es möglich, die unbekannten Energie- und Thetawerte zwischen den Simulationspunkten zu interpolieren. Dazu werden radiale Basisfunktionen (RBFs) eingesetzt, welche den Vorteil besitzen, auch bei ungleichmäßig verteilten Simulationspunkten sehr gute Ergebnisse zu liefern. Konkret wurde die numerische Analyse und Datenverarbeitungs-Bibliothek (in C++) von *ALGLIB* [AlgL] verwendet. Diese erstellt aus den Simulationspunkten zwei dreidimensionale RBF-Modele (Flugzeit|Radius|Energie und Flugzeit|Radius|Theta), mit denen sich jeweils die gewünschten Zwischenpunkte berechnen lassen. In Abbildung 4.13 sind die beiden RBF Modelle dargestellt.

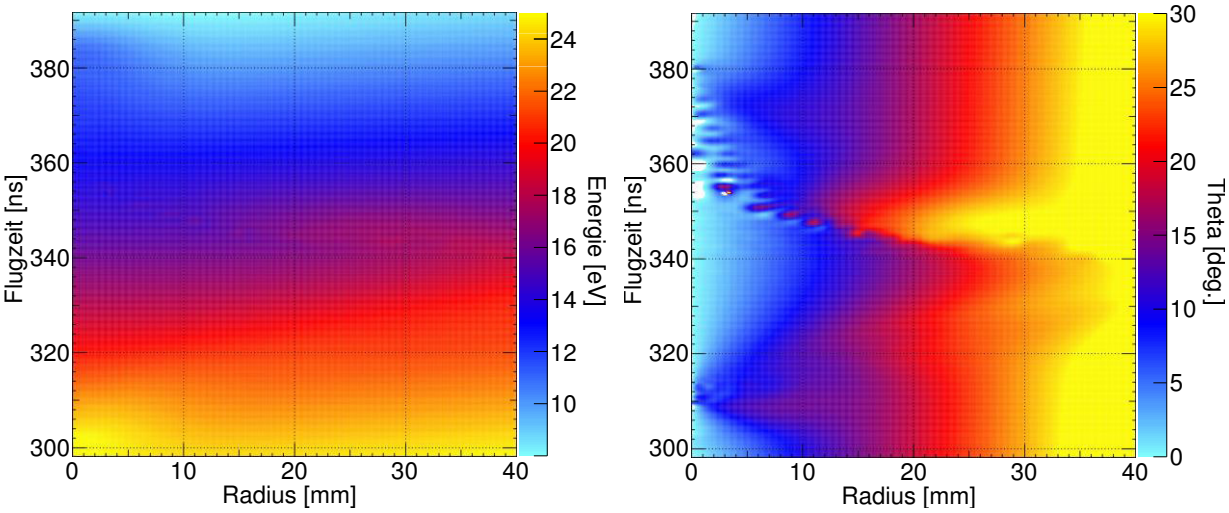


Abbildung 4.13: Die beiden erstellten dreidimensionalen RBF-Modelle für die Startenergie und den Startwinkel, deren Werte jeweils farblich kodiert sind.

Die beiden RBF-Modelle liefern bereits eine einfache funktionierende Konvertierung, mit der zu jedem Messpunkt (Flugzeit|Radius) die dazugehörige Startenergie und der Startwinkel separat berechnet werden können. Allerdings sind die damit erreichten Konvertierungsraten von ca. 500 Hz für die aufgenommen Datenmengen deutlich zu langsam. Zum anderen erkennt man in den Randbereichen extrem inhomogene Strukturen, welche entstehen, wenn die Trajektorien anfangen, miteinander zu überlappen. In diesen Bereichen ist keine Konvertierung mehr möglich, da keine eindeutige Zuordnung von Startenergie und Startwinkel möglich ist. Aus diesem Grund werden in einen weiteren Schritt die Simulationspunkte, welche für die Erstellung der RBF-Modelle genutzt werden, vorher gefiltert:

- Bereiche, in denen Elektronen umklappen, werden ausgeschlossen.
- Überlappende Elektronentrajektorien werden ausgeschlossen.
- Eine sog. Theta-Glättung wird durchgeführt. Bei dieser werden die Abweichungen, welche durch das Nachmodellieren des hemisphärischen Gitters mit einer Finite-Differenzen-Methode entstehen, ausgeglichen. Details siehe Anhang A.2.3 *Konvertierung (Theta Glättung)* auf Seite 160.

Die beiden mit den gefilterten und geglätteten Simulationspunkten erstellten RBF-Modelle, welche in Abbildung 4.14 gezeigt sind, werden dadurch deutlich homogener.

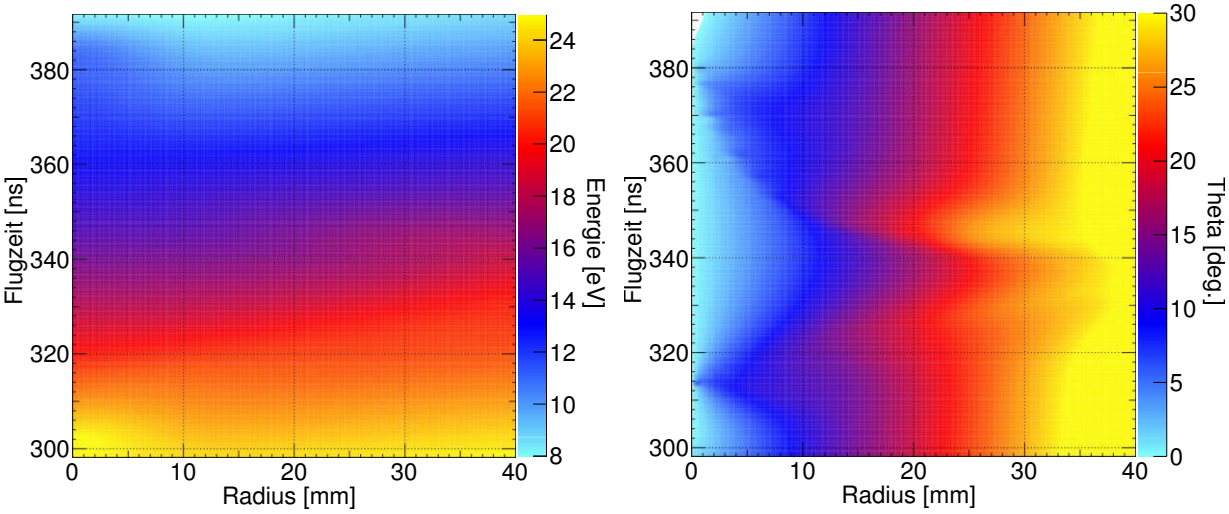


Abbildung 4.14: Die beiden mit den gefilterten und geglätteten Simulationspunkten erstellten dreidimensionalen RBF Modelle für die Startenergie (links) und den Startwinkel (rechts), deren Werte jeweils farblich kodiert sind.

Um die Funktion bzw. die Qualität der Konvertierung zu überprüfen, wird eine zufällige Elektronenverteilung simuliert und für jedes dieser Elektronen die konvertierten Energie- und Theta-Werte mit den tatsächlichen Startwerten verglichen, wobei diese Abweichung von nun an als Energie- und Theta-Fehler bezeichnet wird. Der durchschnittliche Energie- und Theta-Fehler, abhängig von Flugzeit und Radius, ist in Abbildung 4.15 b) und c) gezeigt.

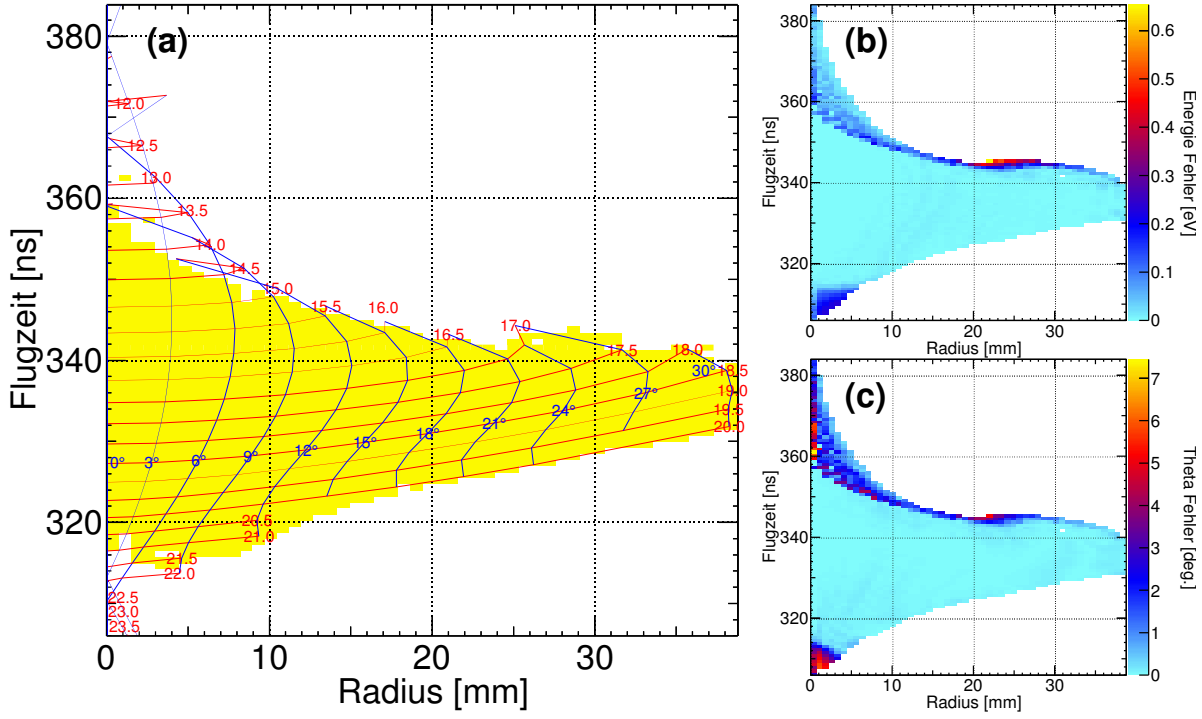


Abbildung 4.15: (a) Der gelb markierte Bereich zeigt den für die Konvertierung nutzbaren Energie- und Winkelbereich für den Linsenmodus Ekin 18/Epass 35 an. Rechts ist der durchschnittliche Energie-Fehler (b) und Theta-Fehler (c) gezeigt.

Mithilfe der berechneten durchschnittlichen Energie- und Theta-Fehler kann der für die Konvertierung genutzte Bereich definiert werden, wie in Abbildung 4.15 a) gezeigt. Typische Grenzwerte für den Energie- und Theta-Fehler sind die ideale physikalische Energie- und Theta-Auflösung (bedingt durch die endliche Zeit- und Ortsauflösung des Detektors) des

jeweiligen Linsenmodus. Der dadurch im Vergleich zu der mitgelieferten Konvertierung von Specs (Specs DLL) zusätzlich abgedeckte Bereich ist in Abbildung 4.16 gezeigt.

Um die Konvertierungsraten zu erhöhen, wird aus den beiden RBF-Modellen eine sehr feinmaschige Lookup-Tabelle (L) erstellt (typische Maschengröße 0.02 mm x 0.02 ns), welche auch jeweils direkt abgespeichert wird:

$$L(Flugzeit,\ Radius) \rightarrow (Energie,\ Energie_Fehler,\ Theta,\ Theta_Fehler) \qquad (4.11)$$

Zur Konvertierung wird die Lookup-Tabelle dann in den Arbeitsspeicher geladen und die darin gespeicherten Werte (Energie|Energie-Fehler|Theta|Theta-Fehler) durch direkte Speicherzugriffe ausgelesen. Dies entspricht, nachdem die Lookup-Tabelle in den Arbeitsspeicher geladen wurde, der schnellst möglichen Umsetzung.

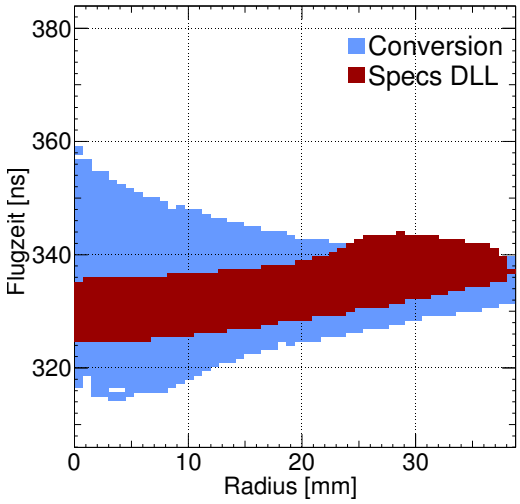


Abbildung 4.16: Die mitgelieferte Konvertierung der Firma Specs (roter Bereich) und die neu entwickelte Konvertierung (blauer Bereich). Die neue Konvertierung deckt einen prozentual doppelt so großen Energie-/Theta-Raum ab wie die ursprüngliche Konvertierung.

Die Konvertierungsraten der unterschiedlichen Konvertierungen sind in Tabelle 4.3 gezeigt. Die in dieser Arbeit entwickelte Konvertierung (Quick Conversion) mit Analyse (vor allem das Füllen von Spektren) läuft mehr als dreimal so schnell wie die der Firma Specs mitgelieferte Konvertierung.

Konvertierung	Geschwindigkeit ohne Analyse[1]	Geschwindigkeit mit Analysis[1]	Abgedeckter Bereich[2] (Ekin 18/Epass 35)
Specs DLL: (SC)	500.000 Hz (100 %) 2µs/Event	8.600 Hz[3] (100 %)	100 %
RBF Conversion: (C)	500 Hz (0.00001 %) 2ms/Event	90 Hz (1 %)	206 %
Quick Conversion: (QC)	10.000.000 Hz (2000 %) 0.1µs/Event	26.300 Hz (306 %)	206%

1: Die Geschwindigkeiten wurden mit einem Intel Core i7 860 @2,8 GHz, 8 GB Arbeitsspeicher gemessen.
2: Der abgedeckte Bereich bezieht sich auf den von der Specs DLL (≔ 100%) abgedeckten Bereich. Zu beachten ist, dass teils nicht mehr der gesamte mögliche Akzeptanzwinkel (30°) erfasst wird.
3: Berechnet mit der Annahme, dass das Verhältnis ‚ohne Analyse' zu ‚mit Analyse' linear ist.

Tabelle 4.3: Geschwindigkeiten der verschiedenen Konvertierungen.

Die Steigerung der Konvertierungsraten führt vor allem bei der eventbasierenden Datenaufnahme (nötig für Koinzidenzmessungen) zu einer zeiteffizienteren Datenanalyse.

4.4 Sandbox Analyze

Die gesamte auf die ADC-Pulsanalyse folgende Datenanalyse bzw. Auswertung findet in der für diese Arbeit eigens entwickelten Datenanalysesoftware *Sandbox Analyse*[73] statt, deren Funktionsübersicht in Abbildung 4.17 gezeigt ist.

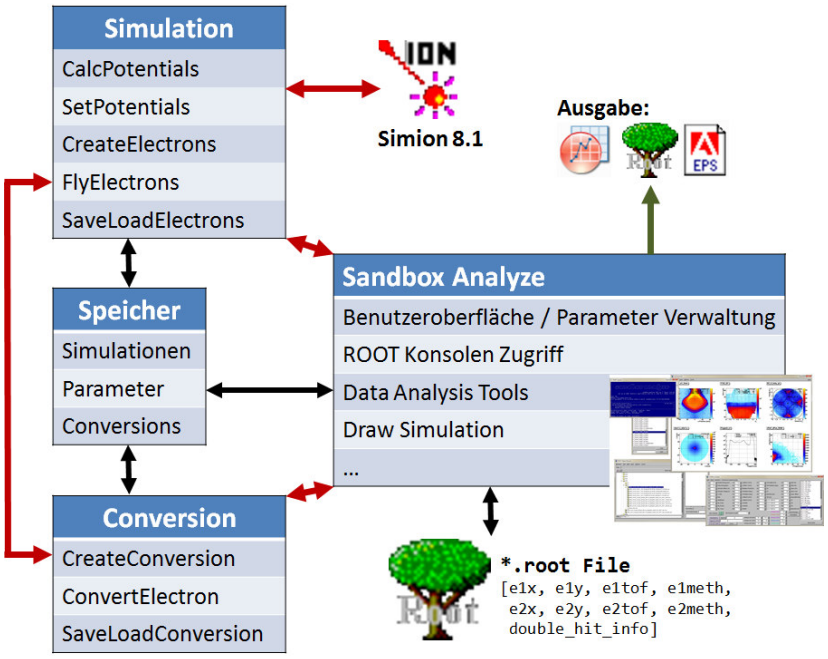


Abbildung 4.17: In *Sandbox Analyze* laufen alle Funktionen für die Auswertung der Messdaten zusammen. Die für die Simulationen (*Sandbox Simulation*) und Konvertierungen (*Sandbox Conversion*) zuständigen Programmteile sind als eigenständige Klassen geschrieben, damit sie auch in anderen Anwendungen einfach verwendet werden können.

Sandbox Analyze ist in objektorientiertem C++ entwickelt und nutzt als eine Art Fundament das vom CERN zur Verfügung gestellte ROOT Data Analysis Framework [ROOT]. Durch den direkten Zugriff auf den vollen Funktionsumfang von ROOT können wichtige Programmabschnitte, wie das Verwalten der Daten (Object Browser) oder die Histogramm-Funktionalität (interaktives Agieren mit den Histogrammen etc.) genutzt werden. Durch das gleichzeitige Starten eines ROOT-Interpreters bzw. einer Konsole kann die Datenauswertung flexibel erweitert werden (Fit-Funktionen, Vergleichen, eigene Makros etc.).[74]

Ein wichtiger Bestandteil von *Sandbox Analyze* ist die grafische Benutzeroberfläche (siehe Abbildung 4.18), von welcher aus sämtliche die Messungen betreffenden Parameter (Spektrometereinstellungen, Kalibrationsparameter, Doppel-Filter, Energieschnitte etc.) eingestellt werden können. Die Parameter lassen sich dabei selbst abspeichern und wieder laden.

Zum Konvertieren der Rohdaten (Flugzeit und Auftreffort) in die Startenergie und Startrichtung wird das eingebaute *Sandbox Conversion* Modul (Details siehe 4.4.2 *Sandbox Conversion*) verwendet.

---

[73] Eine Vorversion der genutzten grafischen Benutzeroberfläche (*Analyze This*) wurde zusammen mit Hendrik Sann entwickelt.

[74] Der ROOT Interpreter kann entsprechend nur interpretierten Code ausführen, wohingegen es sich bei der eigentliche Analyse in *Sandbox Analysis* (Konvertierung, Berechnungen, füllen der Histogramme etc.) um kompilierten Code handelt, um eine deutlich höhere Performance zu erhalten.

Eine Besonderheit von *Sandbox Analyze* ist die enge Anbindung an SIMION 8.1 für die Simulationen über das eigens entwickelte *Sandbox Simulation* Modul (Details siehe 4.4.1 *Sandbox Simulation*). Dadurch ist es möglich, die Messdaten interaktiv mit Simulationen zu vergleichen, was zur Kalibration der Messungen auch erforderlich ist.

Weitere eingebaute Funktionen, die beim Auswerten der Messdaten besonders nützlich sind (Auswahl):

- Überlagern der Daten mit theoretischen Fermiflächen sowie Brillionzonen.
- Interaktiver Vergleich von Histogrammen.
- Interaktives Trimmen der Messdaten (z.B. das Untersetzen von Einzel-Events).
- Interaktives Kopieren von Histogrammen für spätere Vergleiche.
- Automatische Berechnung der Energieauflösung (Fermi-Fit).
- Exportieren der Messdaten als ROOT-File oder für OriginPro kompatible Dateien.

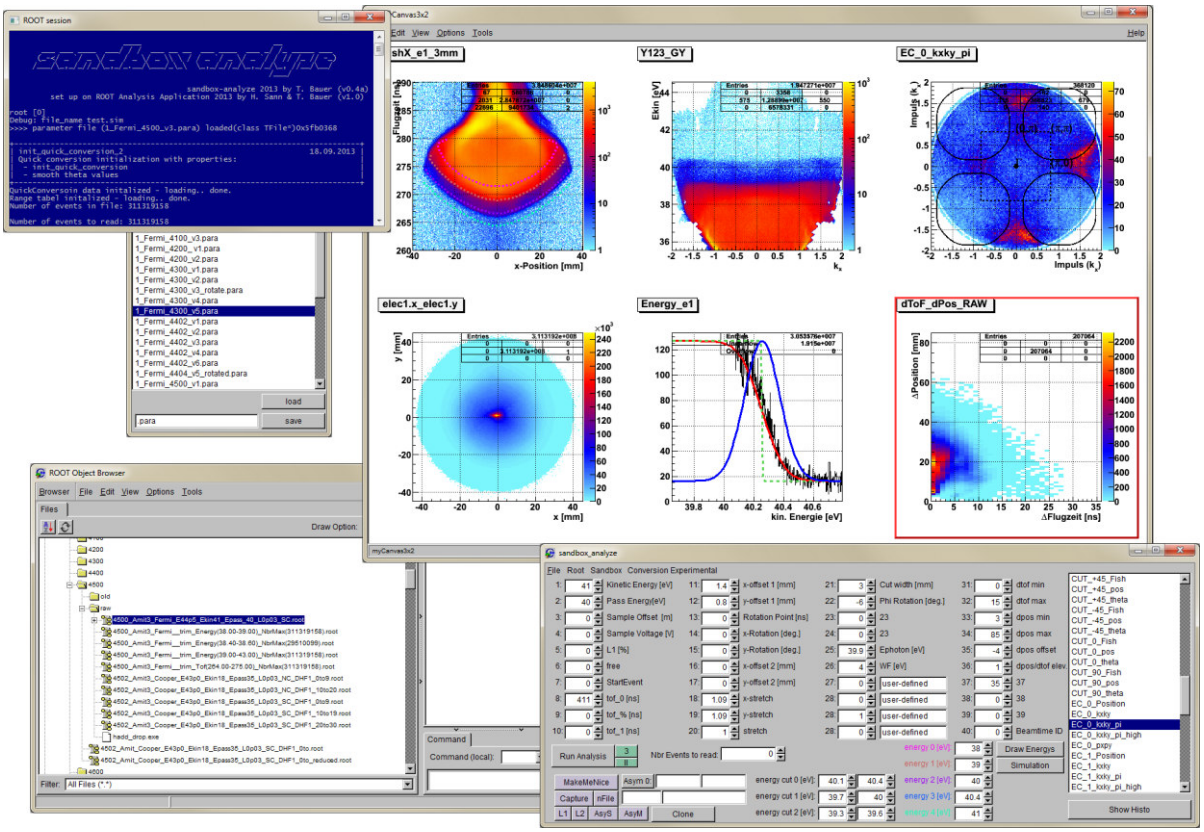


Abbildung 4.18: Übersicht über eine aktive Sitzung: 1. ROOT Konsole. 2. Darstellung der Histogramme. 3. Parameter Verwaltung. 4. ROOT Objekt-Browser zur Auswahl der Messungen. 5. Sandbox Analyse Benutzeroberfläche.

Die Entwicklung von *Sandbox Analyze* war für diese Arbeit von zentraler Bedeutung, da erst dadurch ein effizientes Auswerten der Messdaten möglich wurde.

4.4.1 Sandbox Simulation

Die Messungen sind auf ein enges Zusammenspiel zwischen Experiment und Simulation angewiesen. Um die entsprechenden Simulationen möglichst effizient mit SIMION 8.1 durchführen zu können, wurde mit *Sandbox Simulation* ein C++ Interface geschaffen (in Form einer Klasse), welches es erlaubt, alle für das Experiment nötigen Funktionen komfortabel aus objektorientiertem C++ heraus aufzurufen:

- Setzen bzw. Ändern der Potentiale.
- Erstellen von Elektronen-Startverteilungen.
- Simulieren und Aufzeichnen dieser Elektronen-Startverteilungen.

Alle Simulationen werden automatisch gespeichert und können gegebenenfalls geladen werden, wenn die Parameter mit einer bereits durchgeführten Simulation übereinstimmen, was zu einer enormen Zeitersparnis führt. Sämtliche Spektrometer-Simulationen in dieser Arbeit wurden mit Hilfe von *Sandbox Simulation* durchgeführt.

4.4.2 Sandbox Conversion

Die Konvertierungen, wie in 4.3 *Konvertierung in Startwinkel und Energie* beschrieben, werden vollautomatisch mit *Sandbox Conversion* (C++ Klasse) erstellt und verwaltet. Für jede erstellte Konvertierung wird eine ausführliche Übersicht erstellt, wie in Abbildung 4.19 gezeigt.

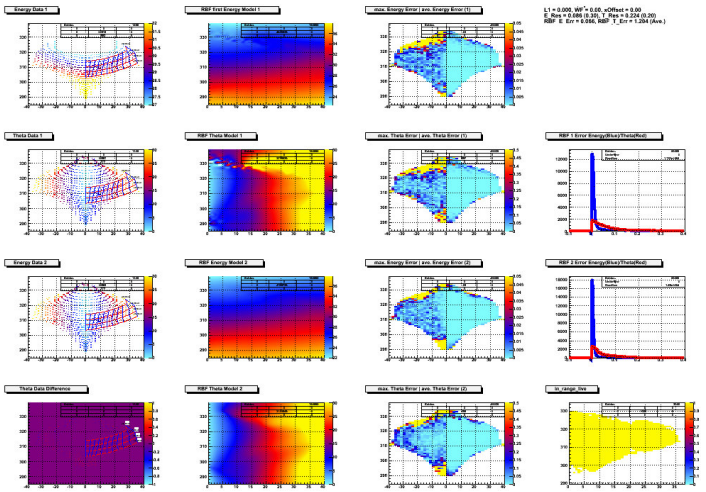


Abbildung 4.19: Neben den eigentlichen Konvertierungen werden automatisch ausführliche Kontrollspektren abgespeichert. Gezeigt werden die verwendeten Simulationspunkte, die RBF-Modelle sowie die flugzeit- und ortsabhängigen Energie- und Theta-Fehler (maximal und durchschnittlich) zu den RBF-Modellen, sowie auch die global gemittelten Fehler.

Ist die Konvertierung aufgrund der Masse an Daten zu langsam (speziell für die Kalibration), kann zur sogenannten *Ultra Quick Conversion* (UQC) gewechselt werden. Dabei werden die eventbasierenden Daten (Flugzeit; Auftreffort X und Y) vollautomatisch in ein dreidimensionales Integer-Array (Flugzeit/Auftreffort X/Auftreffort Y) gefüllt und damit die eventbasierende Datenaufnahme aufgegeben. Die Messdaten können so nahezu in Echtzeit kalibriert (sämtliche Parameter) und die Änderungen in den Spektren verfolgt werden, wie in Abbildung 4.20 gezeigt.[75]

[75] Nachteilig sind sogenannte Moiré-Effekte in den Spektren, da es sich sowohl bei dem Interger-Array als auch bei den Histogrammen um diskrete Raster handelt.

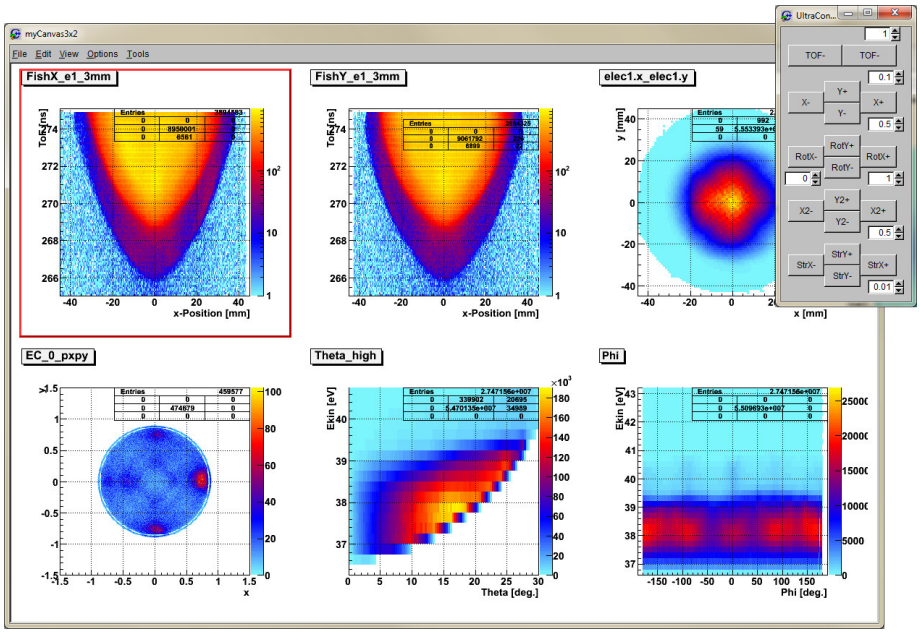


Abbildung 4.20: Standardspektren zur Kalibration der Messungen sowie eine Benutzeroberfläche, mit der die wichtigsten Parameter wie Flugzeit-Offset, Orts-Offset, Rotation sowie Streckungen unmittelbar geändert werden können.

5 Ergebnisse und Diskussion

Das in dieser Arbeit durchgeführte Experiment beinhaltet zahlreiche technische Weiter- und Neuentwicklungen (siehe Abschnitt 3. *Experimenteller Aufbau* und 4. *Datenanalyse*), weshalb zunächst die Qualität der Messdaten selbst untersucht werden soll. Neben technischen Betrachtungen sind dazu Einfachphotoemissions-Messungen (SPE) an Kuprat-Hochtemperatursupraleitern durchgeführt worden, anhand derer neben der Qualität der Messdaten auch die potentiellen Vor- und Nachteile der verwendeten Messmethode für ARPES-Experimente diskutiert wird.

Mit den Erfahrungen aus den Einfachphotoemissions-Messungen kann anschließend das primäre Ziel dieser Arbeit, die Untersuchung der Doppelphotoemission (DPE) von Kuprat-Hochtemperatursupraleitung, angegangen werden. Dazu werden zunächst die speziell bei Doppelphotoemission-Messungen auftretenden Schwierigkeiten beschrieben, bevor anschließend die einzelnen durchgeführten Messungen vorgestellt und diskutiert werden.

5.1 Einführung der Koordinaten

Das in diesem Experiment verwendete Koordinatensystem zur Beschreibung der Einfach- und Doppelphotoemission ist in Abbildung 5.1 erklärt. Die linear polarisierten Photonen treffen im 70°-Winkel zur Oberflächennormalen ($\vec{n}$) auf die Probe.

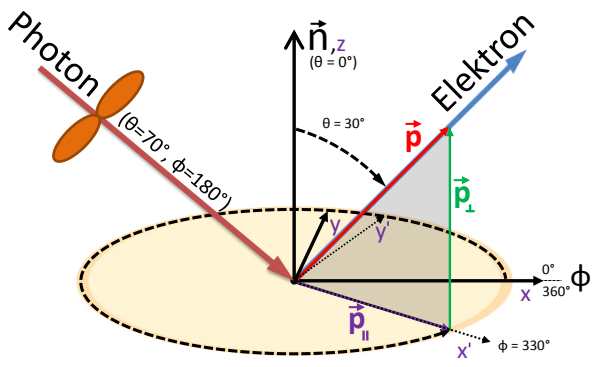


Abbildung 5.1: Die Emissionsrichtung eines Elektrons lässt sich durch den Polarwinkel Theta [0° ≤ θ ≤ 90°] zur Oberflächennormalen ($\vec{n}$ bzw. z-Achse) und den Azimutalwinkel Phi [0° < ϕ < 360°] in der xy-Ebene beschreiben. Alternativ können auch die einzelnen Impulskomponenten p_x, p_y und p_z, welche sich am gleichen xyz-Koordinatensystem orientieren, genutzt werden.

Im Fall der Doppelphotoemission kann es zudem sinnvoll sein, für das zweite Elektron in das x'y'z-Koordinatensystem zu wechseln, welches in der xy-Ebene so gedreht ist, dass die x'-Achse mit der Emissionsrichtung des ersten Elektrons zusammenfällt.

Die Lichteinfallsrichtung relativ zur Probe ist bei der verwendeten Messmethode ein wichtiger Parameter. In Fällen, in denen ein Spektrum relativ zur Lichteinfallsrichtung gedreht wurde (normal aus negativer x-Richtung), ist die Lichteinfallsrichtung mit einem gelben Pfeil in der linken oberen Ecke der Spektren angegeben.

5.2 Einfachphotoemission (SPE)

Die Einfachphotoemission (SPE), oder winkelaufgelösten Photoemissionspektroskopie (ARPES), spielt heute in der Festkörperphysik eine zentrale Rolle, da sie es ermöglicht, die elektronische Struktur von Festkörpern direkt zu messen. Dabei haben sich hemisphärische Analysatoren aufgrund ihrer extrem hohen Auflösung (One-Cubed ARPES Beamline am BESSY: Energieauflösung unter 2 meV, Winkelauflösung 0.23° beschrieben in [BZKE12]) und ihrer relativ einfachen und robusten Handhabung als Messtechnik durchgesetzt. In dieser Arbeit dienen die SPE-Messungen hauptsächlich zur Charakterisierung des Experiments selbst und sind ein Zwischenschritt hin zu den geplanten Doppelphotoemissions-Messungen, die mit herkömmlichen hemisphärischen Analysatoren nicht möglich sind.

5.2.1 Einstellung und Kalibrierung

In diesem Abschnitt sollen die nötigen Schritte beschrieben werden, um mit dem Experiment physikalische Messungen durchführen zu können. Dazu werden zunächst die Ausrichtung der Experimentierkammer sowie die nötigen Einstellungen der einzelnen Messungen dargestellt, bevor anschließend die Kalibrierung des Experiments erklärt wird.

Einstellung

- *Ausrichtung der gesamten Experimentierkammer relativ zur Beamline*
  Wie im Abschnitt 3.5 *Spektrometer* und 4.3 *Konvertierung in Startwinkel und Energie* beschrieben, ist es entscheidend, dass die Startposition der Elektronen möglichst exakt auf der elektro-optischen Spektrometer-Achse und im richtigen Arbeitsabstand zum Spektrometer (kurz Arbeitspunkt) liegt. Um diese Startposition einzustellen, wird

zu Beginn jeder Strahlzeit eine Einkristalline-Kupfer-Probe (8 mm Durchmesser) an die zuvor mit dem Spezialschlitten (siehe Abbildung 3.2 (d)) bestimmte Arbeitsabstandsposition gebracht. Während einer laufenden Messung[76] kann dann durch iteratives Bewegen der gesamten Experimentierkammer relativ zur Beamline versucht werden, eine möglichst symmetrische Abbildung zu erreichen. Die gefundene Kammerposition wird anschließend mechanisch fixiert.

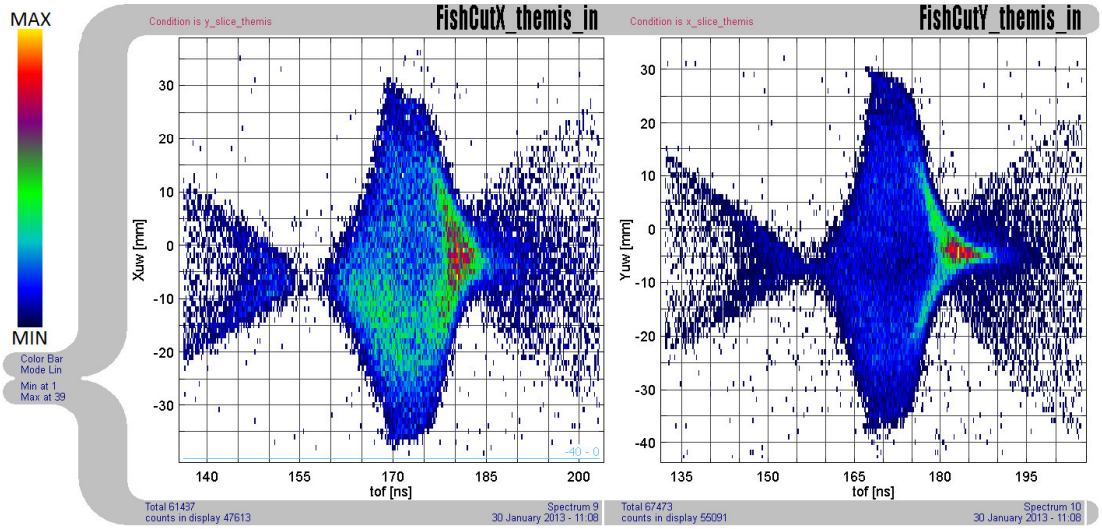


Abbildung 5.2: Bildschirmfoto während einer laufenden Messung (Linseneinstellung Ekin 100/Epass 100). Zu sehen sind die beiden Flugzeit-Ort-Spektren (X und Y, jeweils 3 mm breiter Schnitt) bei ausgeschalteten Deflektoren. Zu erkennen ist eine klare Asymmetrie vor allem im Flugzeit-X-Spektrum, obwohl der eingestellte Linsenmodus aufgrund der hohen kinetischen Energie und ohne Retardierung zu den unempfindlichen Messeinstellungen zählt.

Dabei war die bestmöglich erreichbare Abbildung allerdings unbefriedigend (siehe Abbildung 5.2), was vermutlich an mechanischen Fertigungsungenauigkeiten bzw. der Ausrichtung der beiden Teilspektrometer (WAL und Themis 1000) zueinander liegt (siehe Abbildung 5.3). Für diesen Fall sind Deflektoren in der Weitwinkelvorsatzlinse und im Themis 1000 vorgesehen, mit deren Hilfe versucht werden kann, die Elektronentrajektorien besser durch das Spektrometer zu fädeln.

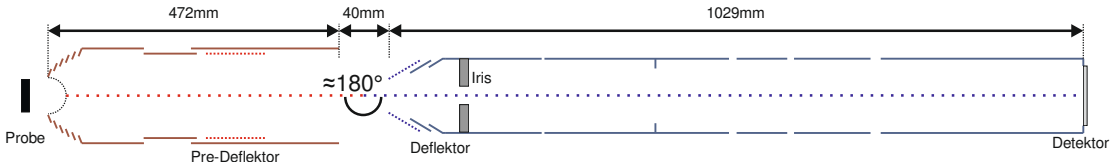


Abbildung 5.3: Schematische Skizze des verwendeten Flugzeitspektrometers, welches sich aus einer Weitwinkelvorsatzlinse (WAL) und dem Themis 1000 zusammensetzt. Die Ausrichtung der beiden Teilspektrometer zueinander ist dabei entscheidend für eine symmetrische Abbildung. Beide Teilspektrometer verfügen jeweils über einen X-Y-Deflektor.

[76] Mit dem zur Datenaufzeichnung verwendeten Programm CoboldPC 2011 R3 können schon während der Messung Spektren erzeugt und betrachtet werden. Misst man mit einer ausreichend hohen Rate (ca. 20 kHz), können so die Auswirkungen von kleinsten Änderungen, z.B. der Startposition, in Echtzeit verfolgt werden.

- *Suchen der Probe und Einstellen des Spektrometers (Deflektoren)*
  Bei jeder einzelnen Probenmessung (Bi2212 oder Y123) musste zunächst die richtige Probenposition gefunden werden. Ausgangspunkt der Suche war stets die bei der letzten Messung verwendete Probenposition, welche bestmöglich erfasst wurde (Webcams, Mikrometerschrauben-Position, Laserdioden). Gesucht wurde die neue Probenposition dann in einer laufenden Messung, bei der eines der beiden Bismuth-Innerschalenzustände mitten im Energiefenster liegt (siehe beispielsweise Abbildung 5.9). Dadurch steigt die Rate beim richtigen[77] Treffen der Probe signifikant von ca. 2000 Hz auf über 25000 Hz an. Durch weiteres iteratives Verschieben der Probe (x,y und z aufgrund der unterschiedlichen Probendicken) wird dann die Position gesucht, bei der die Abbildungen in X- und Y-Richtung möglichst symmetrisch und die Rate gleichzeitig maximal ist.
  Anschließend wird versucht mit den zwei X-Y-Deflektoren im Spektrometer (siehe Abbildung 5.3) die Elektronentrajektorien besser durch das Spektrometer zu fädeln. Ziel dabei ist, eine möglichst symmetrische Abbildung zu erhalten bzw. an die Simulation anzunähern[78]. Elektronenoptisch wird versucht die Coma-Aberrationen zu reduzieren, was allerdings nur bis zu einem gewissen Grad funktioniert, bevor die Abbildungsfehler durch das Umbiegen mit den nicht radialsymmetrischen Deflektoren überwiegen, wie in Abbildung 5.4 demonstriert.[79]

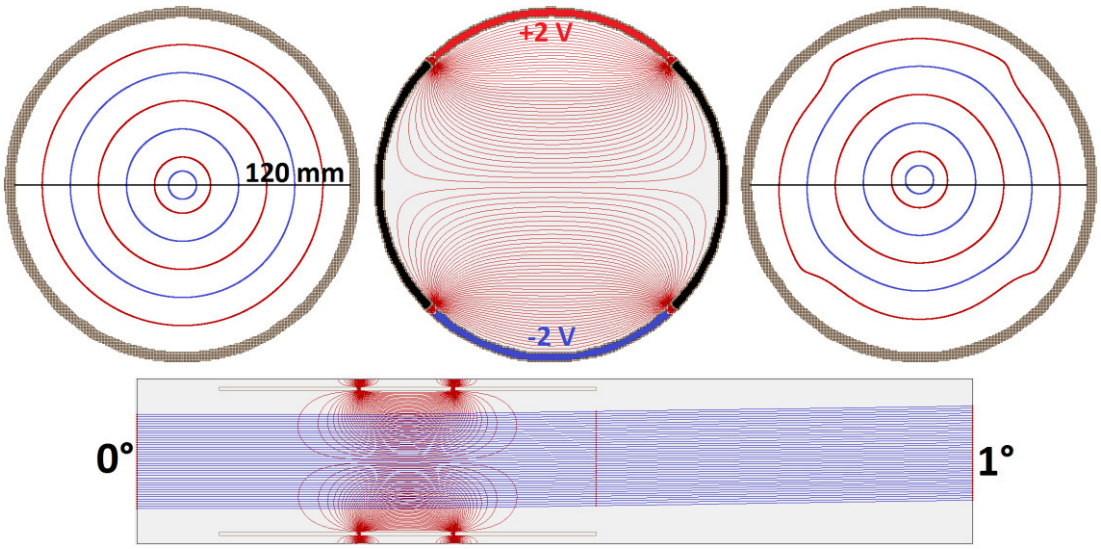


Abbildung 5.4: Dreidimensionale Simulation der X-Y-Deflektoren in der Weitwinkelvorsatzlinse. Simuliert wurden parallel zur optischen Achse startende Elektronen mit 100 eV (links), die nach Durchfliegen der Deflektoren mit ± 2 V (Mitte) um ca. 1° zur optischen Achse gebogen wurden (unten). Durch den Einsatz von nicht radialsymmetrischen Feldern zur Ablenkung entstehen entsprechende nicht-radialsymmetrische Aberrationen (rechts).

[77] Die verwendeten Proben sind zwar gut 2 mm x 2 mm groß, doch ist der tatsächlich für saubere Photoemissions-Messungen nutzbare Oberflächenbereich meist extrem viel kleiner (erfahrungsgemäß circa < 0.1 mm x 0.1 mm) und hängt stark vom Bruch selbst ab.

[78] Dazu können die laufenden Messungen (Flugzeit-Ort-Spektren) mit simulierten Iso-Energielinien überlagert werden.

[79] Ursprünglich sind die Deflektoren für den Einsatz als Vorsatzlinsen für hemisphärische Analysatoren konzipiert, wobei nur ein Ausschnitt auf den Eintrittsschlitz der Hemisphäre fokussiert werden muss. Liegen die Deflektoren senkrecht zum Eintrittsschlitz, sind nur sehr geringe Aberrationen zu beobachten. Beim Einsatz in einem Flugzeitspektrometer hingegen ist dies nicht mehr der Fall.

Die sogenannten Pre-Deflektoren in der Weitwinkelvorsatzlinse hatten den größten Effekt, wohingegen die Deflektoren im Themis 1000 nur eine Ortsverschiebung der gesamten Verteilung auf dem Detektor bewirkt haben. Die Flugzeitverteilung aus Abbildung 5.2 mit eingestellten Pre-Deflektoren ist in Abbildung 5.5 gezeigt.

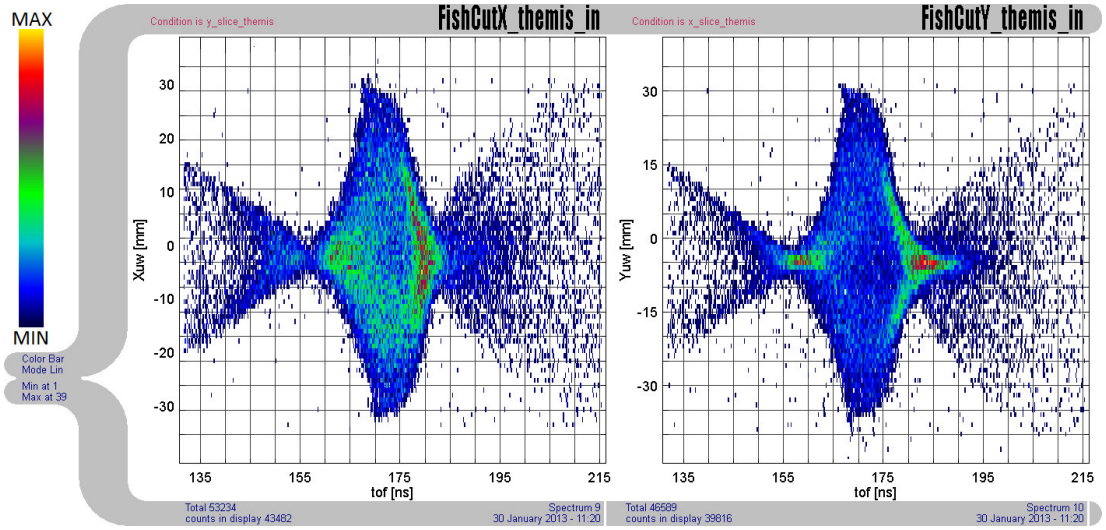


Abbildung 5.5: Gleiche laufende Messung wie in Abbildung 5.2, diesmal mit eingestellten Deflektoren.

- *Überlapp zwischen gemessenen Spektren und der Simulation*

Auch wenn stets versucht wurde, schon die Messungen möglichst gut an die Simulation anzunähern, gibt es im Detail immer noch Abweichungen. Vor der eigentlichen Konvertierung wird daher versucht, entweder die Messdaten selbst (durch Schieben, Strecken, Stauchen und ggf. Scheren) und/oder die verwendete Konvertierung (mit L1[80], Probenpotential, Probenoffset) einander derart anzunähern, dass eine bestmögliche Übereinstimmung für bekannte Strukturen in den Spektren (Isoenergielinien), wie die Fermikante oder der Innerschalenzustände, erreicht wird (Erklärung siehe Abbildung 5.6).

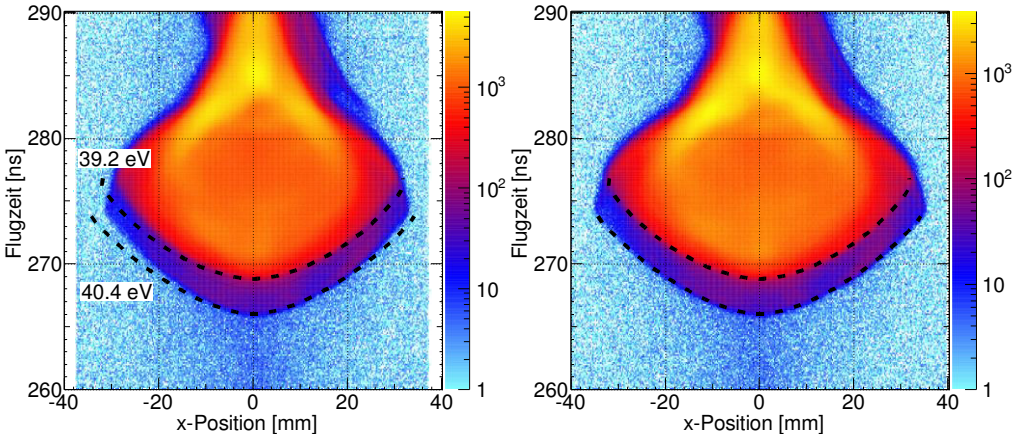


Abbildung 5.6: Links sind die Rohdaten der Messung 4500 (Ekin 41/Epass 40) gezeigt. Dabei entspricht die Krümmung der Fermikante (bei 40.4 eV) oder des CuO_2-Bands (bei 39.2 eV)) nicht der Krümmung in der Simulation (gestrichelte Linien). Rechts wurde der gesamte Detektor gestreckt (9%) und minimal verschoben, so dass die gemessene Verteilung deutlich besser mit der Simulation übereinstimmt.

[80] L1 ist ein Korrekturfaktor, mit dem sämtliche Linsenelementspannungen der Weitwinkelvorsatzlinse (WAL) relativ angehoben oder abgesenkt werden können.

Kalibrierung

Energie - Ausgangspunkt für die Energiekalibrierung ist eine korrekte Flugzeitberechnung (siehe 4.2.2 *Flugzeit*), welche mit dem sogenannten Photonenpeak eingestellt werden kann. Dabei wird das Spektrometer in einem elektronenunterdrückenden Linsenmodus (Ekin ≫ E_{photon}) betrieben, in dem nur von der Probe reflektierte Photonen den Detektor erreichen können. Da die Flugzeit der Photonen über die Spektrometerlänge bekannt ist (1.579 m / c = 5.269 ns), kann die Flugzeitverteilung bzw. der Photonenpeak entsprechend auf diesen Wert geschoben werden, wie es in Abbildung 5.7 gezeigt ist.

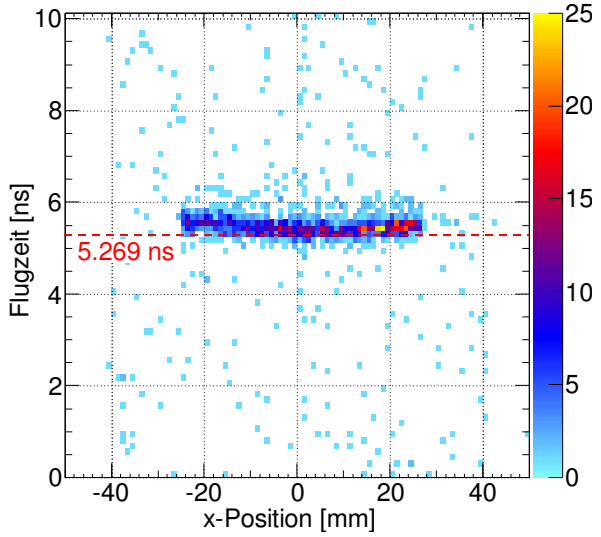


Abbildung 5.7: Der aufgezeichnete Photonenpeak, der auf den berechneten Flugzeitwert (5.269 ns) verschoben wurde.

Anschließend wurde mit dieser Flugzeitberechnung eine Messung der Fermikante gestartet, wobei zuvor die absolute Photonenenergie der Beamline mithilfe eines Absorptionsspektrometers genauestens kalibriert wurde.

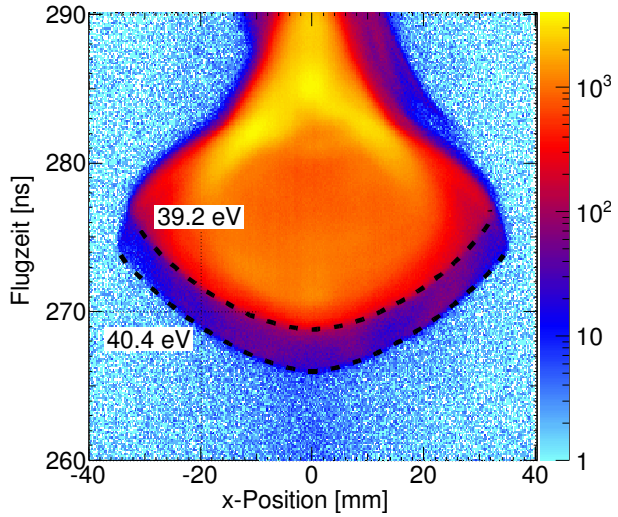


Abbildung 5.8: Flugzeit-Ort-Spektrum (|y| < 3mm) der Messung 4500 (Ekin 41, Epass 40) mit zuvor kalibrierter Photonenenergie (E_{Photon} = 44.404 eV).

Die Daten sind bereits, wie in Abbildung 5.6 beschrieben, in Ortsrichtung gestreckt und verschoben worden.

Mit der eingestellten Photonenenergie von 44.404 eV und der Flugzeitberechnung aus dem Photonenpeak, liegt die gemessene Fermikante bei 40.4 eV (siehe Abbildung 5.8), was eine Austrittsarbeit des Spektrometers (3.5.3.2 *Austrittsarbeit*) von 4 eV bedeuten würde. Dieser Wert wird fortan als Referenz für das Spektrometer definiert.

Dabei ist zu beachten, dass die absoluten Energiewerte nach wie vor den Fehler aus der Photonenpeak-Flugzeitbestimmung und mögliche Ungenauigkeiten des Flugzeitspektrometers (z.B. der Spannungsversorgung) beinhalten. Diese fallen jedoch bei

sämtlichen physikalischen Messungen, bei denen es nur um die Energiedifferenzen untereinander oder zum Fermikante geht, heraus.

Startwinkel (Theta) - Eine direkte Kalibrierung des Startwinkels (Theta), zum Beispiel mit Hilfe einer Lochmaske, wurde in dieser Arbeit nicht durchgeführt. Dafür konnte die Funktion der Startwinkelberechnung direkt anhand der gemessenen Fermiflächen (siehe beispielhaft Abbildung 5.17) demonstriert werden.

5.2.2 Qualität der Daten

Auflösung
Die direkten Messgrößen in diesem Experiment sind die Flugzeit (Auflösung ca. 200 - 300 ps) und der Auftreffort (Auflösung ca. 100 µm) der Elektronen auf dem Detektor, deren jeweilige Auflösung in Abschnitt 3.6.3 *Orts- und Flugzeitauflösung des Detektorsystems* diskutiert wurde. Ebenfalls sind in 3.5.3 *Themis 1000 mit ±30° Weitwinkelvorsatzlinse* bereits die damit theoretisch erreichbaren Energie- und Winkelauflösungen vorgestellt worden.

Bei reellen Messungen müssen jedoch auch noch parasitäre Einflüsse auf die Messung berücksichtigt werden, wie beispielsweise mögliche Einflüsse von äußeren Magnetfeldern, welche bereits im Zusammenhang mit der magnetischen Abschirmung in 3.5.3.1 *Magnetische Abschirmung* diskutiert wurden. An dieser Stelle sollen zudem noch die quantifizierbaren Auswirkungen einer nicht perfekten Startposition sowie mögliche Auswirkungen einer instabilen Spannungsversorgung des Spektrometers untersucht werden.

Startposition
In der Simulation wird die Startposition der Elektronen als punktförmig auf der Probe und im exakt festgelegten Abstand (Arbeitsabstand) zum Spektrometer angenommen. In der Praxis ist dies jedoch nicht zu erreichen, da die minimale Ausdehnung der Startposition durch die Fokusgröße der verwendeten Beamline begrenzt ist (Plèiades: horizontaler Fokus: 180 µm, vertikaler Fokus: 100 µm), wobei sich die horizontale Ausdehnung des Fokus auf der Probenoberfläche durch den flachen Einschusswinkel des Lichts (30° zur Oberfläche) nochmal um den Faktor 1.928 vergrößert (horizontale Startposition: 1.928x180 µm = 350 µm, vertikale Startposition: 100 µm). Die Auswirkungen dieser ungleichförmig ausgedehnten Startposition lassen sich direkt in den Messungen (siehe Abbildung 5.9) oder durch den Schattenwurf des Spektrometer-Eintrittsgitters (siehe A.2.2.3 *Negative Einflüsse (Parasitär)* auf Seite 156) beobachten.

Dabei wird vor allem die Winkelauflösung (Theta) des Spektrometers, auch abhängig vom Phi-Startwinkel, beeinträchtigt (Simulation dazu siehe Abbildung 3.28 auf Seite 67). Die theoretische Verschlechterung der Energieauflösung (< 5 meV) ist hingegen zu vernachlässigen.

Neben einer ausgedehnten Startposition auf der Probe kann auch ein fehlerhafter Abstand der Probe relativ zum Spektrometer, der sogenannte Arbeitsabstand, negative Auswirkungen auf die Messungen haben. In Abbildung 5.11 sind die Auswirkungen eines abweichenden Abstands auf die gesamte Flugzeitverteilung in einem für die SPE-Messungen typischen Linsenmodus (Ekin 41 / Epass 40) gezeigt.

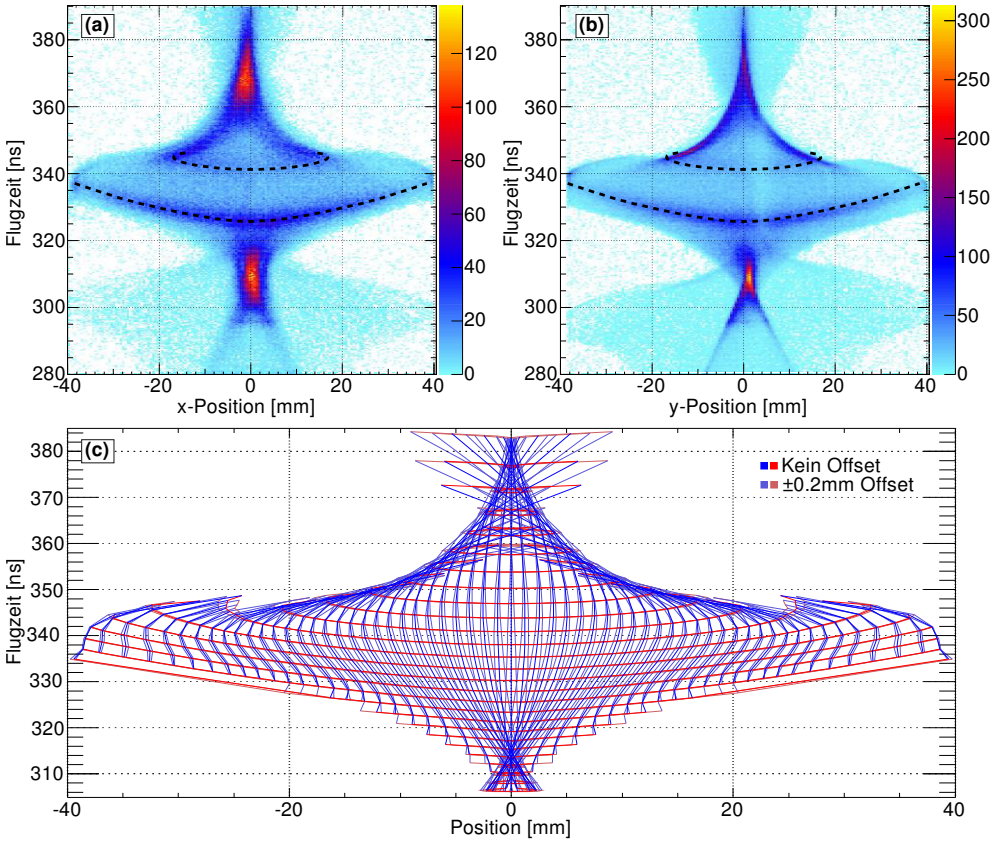


Abbildung 5.9: a) und b) Flugzeit gegen Ort (3 mm Schnitt) in X- und Y-Richtung. Die Strukturen in X-Richtung erscheinen deutlich ausgewaschen, wohingegen die Strukturen in Y-Richtung deutlich schärfer sind. c) Drei Simulationen (Ekin 18 / Epass 35) mit unterschiedlichen Startpositionsoffsets (-0.2mm, 0mm, +0.2mm) übereinandergelegt. Zu erkennen ist, dass die Energieauflösung kaum beeinflusst ist, wohingegen die Startwinkel vor allem im Inneren und an den absoluten Randbereichen verschmieren (Simulations-Startwinkelschrittweite 1°).

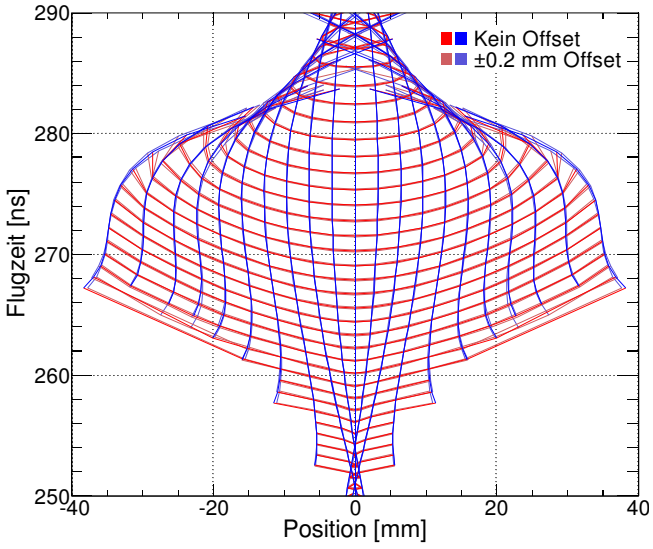


Abbildung 5.10: Drei Simulationen (Ekin 41/Epass 80) mit unterschiedlichen Arbeitsabstands-offsets (-0.2mm, 0mm, +0.2mm) übereinandergelegt.

Wie man erkennt, sind die entstehenden Flugzeitabweichungen kaum vom Startwinkel (Theta) abhängig, weshalb sie in guter Näherung durch eine einfache Flugzeitverschiebung korrigiert werden können.

Schwankt hingegen der Abstand des Probenhalters während des Verlaufs einer Messung, würde dies zu einer effektiven Verschlechterung der Flugzeitauflösung führen. Die absoluten Flugzeitabweichungen, abhängig von der kinetischen Energie und der Schwankung, sind in

Abbildung 5.11 dargestellt. Für realistische Arbeitsabstandsabweichungen (geschätzt auf unter ±0.2 mm) würden die Flugzeitabweichungen mit ±80 ps (für 20 eV Elektronen) unterhalb der Zeitauflösung des Detektors liegen.

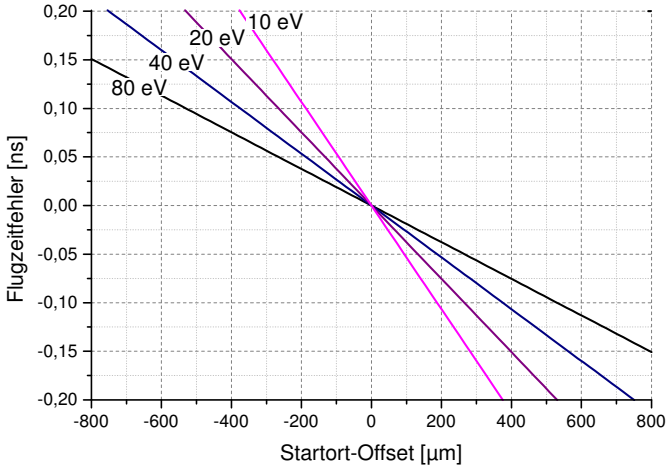


Abbildung 5.11: Flugzeitfehler aufgrund eines Arbeitsabstands-Offset.

Flugzeitspektrometer

Die Qualität der Daten hängt eng mit der Qualität des Spektrometers zusammen. Neben generellen Design-Eigenschaften, wie der theoretischen Energie- und Winkelauflösung (siehe 3.5.3 *Themis 1000 mit ±30° Weitwinkelvorsatzlinse*) sowie konstruktionsbedingter Asymmetrien (siehe 5.2.1 *Einstellung und Kalibrierung*), kann auch die Spannungsversorgung der einzelnen Linsenelemente bzw. die Stabilität der verwendeten Netzteile (zwei HSA3500+ von *Specs*) eine Rolle spielen. In Abbildung 5.12 sind die simulierten Auswirkungen einer nicht stabilen Spannungsversorgung der einzelnen Linsenelemente (± 0.5%) auf die Flugzeit- bzw. die Energieauflösung gezeigt.

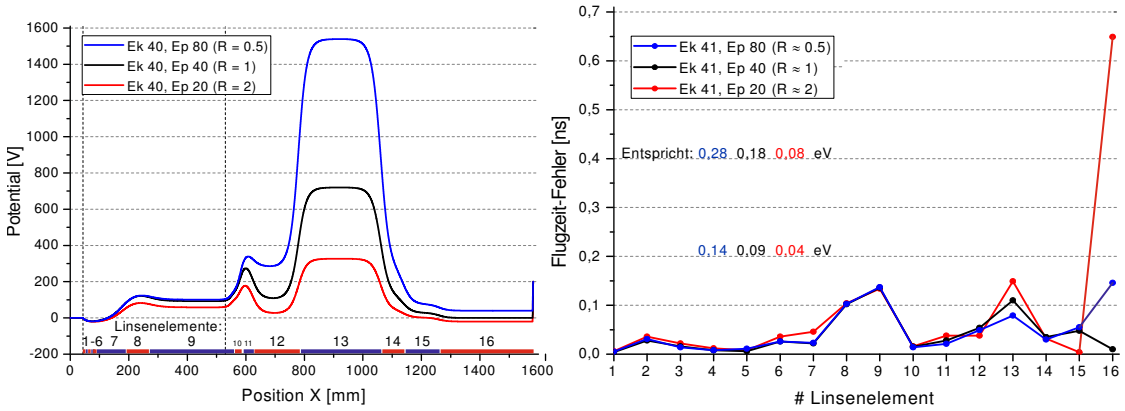


Abbildung 5.12: Links) Die Potentialkurve entlang der Spektrometer-Achse für verschiedene Linsenmodi (R = 0.5, 1, 2). Ebenfalls sind die Lagen der einzelnen Linsenelemente (1-16) angegeben. Rechts) Der durch eine einprozentige Abweichung (±0.5 %) der Spannung auf einem Linsenelement entstehende Flugzeitfehler (gezeigt ist der Flugzeitfehler für Elektronen, die entlang der Achse durch das Spektrometer fliegen (Theta = 0°); der Flugzeitfehler für Elektronen mit größerem Startwinkel (Theta = 20°) weicht allerdings nur unwesentlich (< 5%) davon ab). Das Äquivalent des Flugzeitfehlerfehlers in Energie ist für die verschiedenen Linsenmodi beispielhaft angeben.

Wie alle Netzteile brauchen auch die verwendeten HSA3500+ Netzteile eine gewisse Zeit um sich einzuschwingen. Dies besonders zu Beginn neuer Messungen deutlich zu beobachten. In Abbildung 5.13 sind ca. die ersten zehn Minuten von Messung 4100 (Ekin 41 / Epass 40), unterteilt in zehn Energiespektren (von Rot nach Gelb), gezeigt. Dabei ist ein deutliches Wandern der Fermikante bzw. des CuO_2-Bands hin zu niedrigeren Energien bzw. längeren Flugzeiten zu beobachten. Anzumerken ist, dass sich die zehn Minuten nicht auf den

tatsächlichen Zeitpunkt der Linsenmodus-Einstellung beziehen, sondern dieser typischerweise schon gut zwanzig Minuten vorher zwecks Kalibrierung eingestellt wurde. Für eine möglichst saubere Messung sollte der Linsenmodus daher eine gute halbe Stunde[81] vor Beginn der eigentlichen Messung eingestellt worden sein.

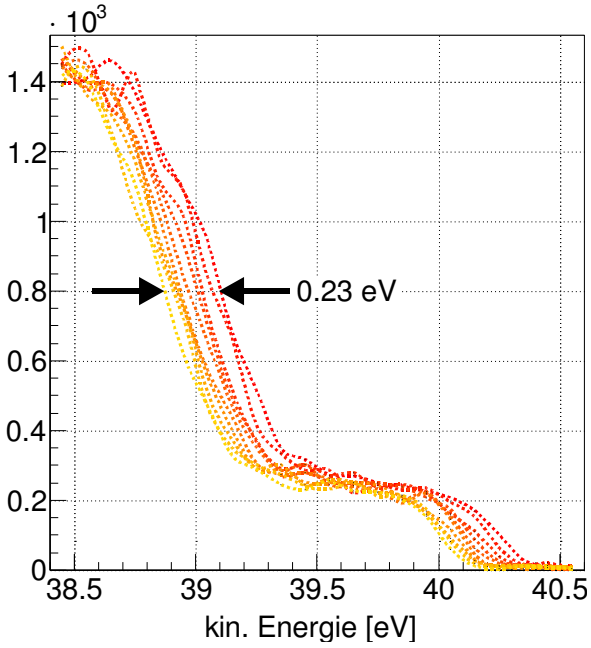


Abbildung 5.13: Energiespektren jeweils in ca. Ein-Minuten-Schritten (von Rot nach Gelb). Die Fermikante bzw. das CuO_2-Band verschiebt sich zu niedrigeren Energien bzw. längeren Flugzeiten (Messung 4300 – Ekin 41, Epass 40).

Insgesamt wandert die Fermikante in den ersten zehn Minuten um ca. 0.23 eV.

Bei längeren Messungen wurde ebenfalls ein Schwanken der Fermikante, wie in Abbildung 5.14 gezeigt, beobachtet.

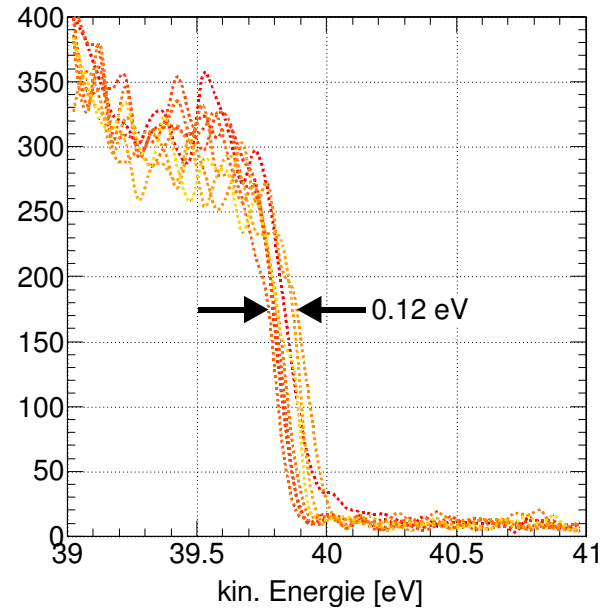


Abbildung 5.14: Energiespektren an der Fermikante in jeweils ca. 1h-Schritten. Es handelt sich um kein gleichmäßiges Wandern der Fermikante (in eine Richtung), sie schwankt vielmehr (Messung 4100 – Ekin 41 / Epass 20).

Das Schwanken der Fermikante führt im gezeigten Fall zu einer Verschlechterung der Energieauflösung um 0.12 eV.

[81] Dieser Wert ist vermutlich von vielen weiteren Faktoren abhängig, wie dem Ausgangszustand (Wechsel von einem ähnlichen Linsenmodus ausgehend oder neu eingeschaltet etc.) sowie dem Linsenmodus selbst. Die genauen Zusammenhänge wurden in dieser Arbeit nicht näher untersucht.

Dabei bedeutet ein Schwanken der Fermikante in einem 0.12 eV großen Fenster über die Messdauer hinweg, bei integrierten Messungen[82], eine Verschlechterung der Energieauflösung in der gleichen Größenordnung[83] (entspricht einer Zeitauflösungsverschlechterung von 568 ps). Mögliche Ursachen für ein derartiges Wandern der Verteilung könnten entweder ein Bewegen des Probenhalters oder ein Schwanken der Spannungsversorgung über die Zeit sein (dies entspräche einem Schwanken des letzten Linsenelements von ca. ± 0.3%). Gezielte nachträgliche Untersuchungen zu den Ursachen wurden im Rahmen dieser Arbeit nicht durchgeführt.

Experimentelle Auflösung

Statt technischer Betrachtungen kann die erreichbare Energieauflösung auch experimentell bestimmt werden. Dazu wird eine energieauflösungsabhängige Fermiverteilungsfunktion bei bekannter Temperatur (Fermiverteilungsfunktion gefaltet mit einer variablen Gaußfunktion) an die gemessenen Daten angefittet (Details siehe Abbildung 5.15):

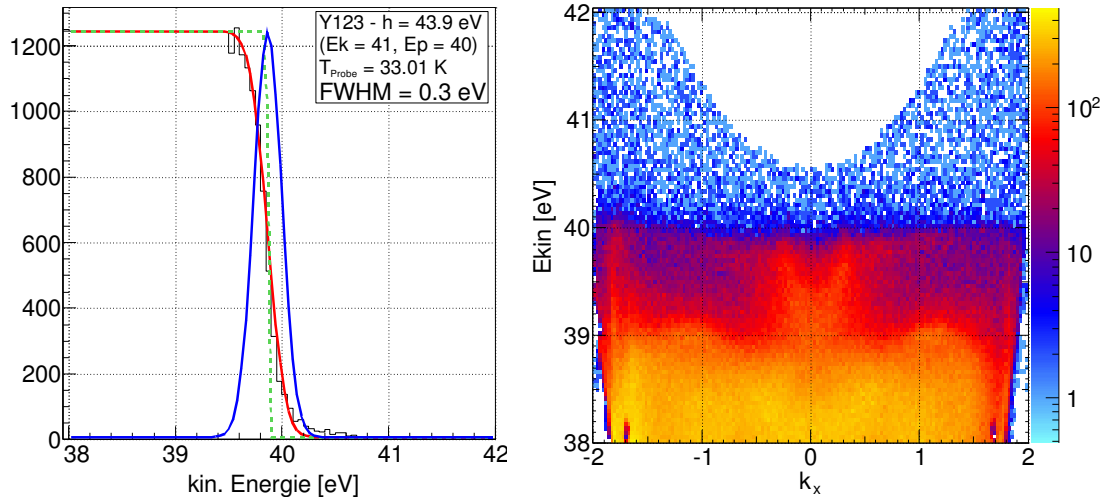


Abbildung 5.15: Bestimmung der lokalen Energieauflösung (Bedingung auf Banddurchgänge in der ersten Brillouin-Zone) aus den aufgenommenen Daten (schwarze Linie). Dazu wurde eine Fermiverteilungsfunktion bei 33.01K (grüne Linie) mit einer Gaußfunktion (blaue Linie) gefaltet und das Ergebnis (rote Linie) durch Variation der Parameter (Lage, Höhe der Fermiverteilungsfunktion und FWHM der Gaußfunktion) mit den Daten in bestmögliche Übereinstimmung gebracht. Das Ergebnis ist eine lokale Energieauflösung von 0.3 eV.

Die gefundene lokale Energieauflösung liegt dabei für eine Messung (4300) im Linsenmodus Ekin 41 / Epass 40 bei 0.3 eV. Dies würde einer Zeitauflösung von 693 ps bei einem perfekten Spektrometer entsprechen. Für eine Messung mit Ekin 41/Epass 20 lag die lokale Energieauflösung bei 0.24 eV, was einer Zeitauflösung von 1212 ps entsprechen würde. Dies deutet auf ein Schwanken der Spannungsversorgung hin, da der Flugzeitfehler einer schwankenden Probenposition vom Linsenmodus unabhängig wäre. Das Verfolgen der Position über die Zeit, siehe A.2.2.3 *Negative Einflüsse (Parasitär)* auf Seite 156, deutet ebenfalls auf ein Schwanken der Spannungsversorgung hin.

[82] Im Grunde bestünde die Möglichkeit, aufgrund der Event-basierenden Datenaufzeichnung, das Wandern zu tracken und entsprechend zu korrigieren. Dies scheitert allerdings in der Praxis an fehlenden scharfen Strukturen.

[83] Eine exakte Aussage über die Energieauflösungsverschlechterung ist nicht ohne weiteres möglich, da das gezeigte Schwanken auch von den Integrationsbereichen abhängt.

Neben der lokalen Energieauflösung gibt es noch die globale Energieauflösung, also die absolute Energieauflösung gemittelt über den gesamten Detektor. Diese ist jedoch aufgrund der komplexen elektronischen Struktur und der geringen Statistik nur schwer zu bestimmen. Zudem schwankt sie zwischen unterschiedlichen Messungen stark, abhängig von den Messeinstellungen und der Kalibration. Wie man in Abbildung 5.15 rechts erkennt, liegt die globale Auflösung allerdings nicht dramatisch (ca. plus 0.2 eV) über der lokalen Energieauflösung.

5.2.3 Fermiflächen

Das Aufzeichnen der Fermifläche von Kuprat-Hochtemperatursupraleitern ist aufgrund der extrem geringen Zustandsdichte nahe der Fermienergie (siehe Abbildung 5.16) für Flugzeitspektrometer eine Herausforderung. Dennoch bietet diese Messmethode gegenüber den üblicherweise verwendeten hemisphärischen Analysatoren, neben den offensichtlichen Nachteilen wie der schlechteren Energie- und Winkelauflösung, auch Vorteile, welche im Anschluss diskutiert werden sollen.

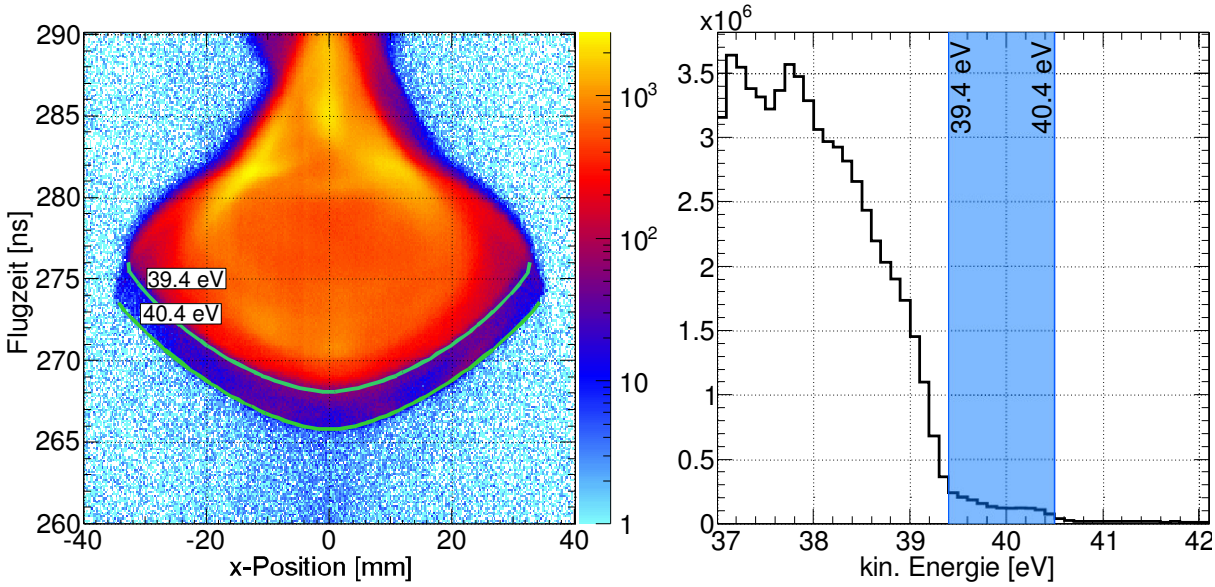


Abbildung 5.16: Der bei Kuprat-Hochtemperatursupraleitern meist interessante Bereich der Bandstruktur liegt knapp unterhalb der Fermienergie (hier ca. 39.4 - 40.4 eV). Dieser Bereich ist einmal links im Flugzeit-Ort-Spektrum (mit der Bedingung |y| < 1.5 mm) und rechts direkt im Energiespektrum markiert. Insgesamt machen die Einträge in diesem Bereich nur knapp 0.75 Prozent der aufgezeichneten Daten aus.

5.2.3.1 Bi2212

Bi2212 gehört zu den am intensivsten durch winkelaufgelöste Photonenemission (ARPES) untersuchten Kuprat-Hochtemperatursupraleitern, was an der guten Verfügbarkeit von hochqualitativen Proben, dem Vorhandensein einer natürlichen Bruchebene zwischen den beiden Bi-O-Ebenen und den damit verbundenen Möglichkeiten, viele interessante physikalische Phänomene zu beobachten, liegt (siehe 2.3.3 *Photoemissionseigenschaften von Kuprat-Hochtemperatursupraleitern*).

In dieser Arbeit ist das qualitative Aufzeichnen der kompletten Fermifläche in der ersten Brillouin-Zone von Bi2212 (sowohl dünner Film als auch Kristalle) bei festem Lichteinfallsvektor sozusagen mit einem Schuss gelungen. In Abbildung 5.17 ist eine solche aufgezeichnete Fermifläche gezeigt (links), daneben eine mit einem hemisphärischen Analysator und nach weiterer Datenanalyse gewonnene Fermifläche von [AOSS94].

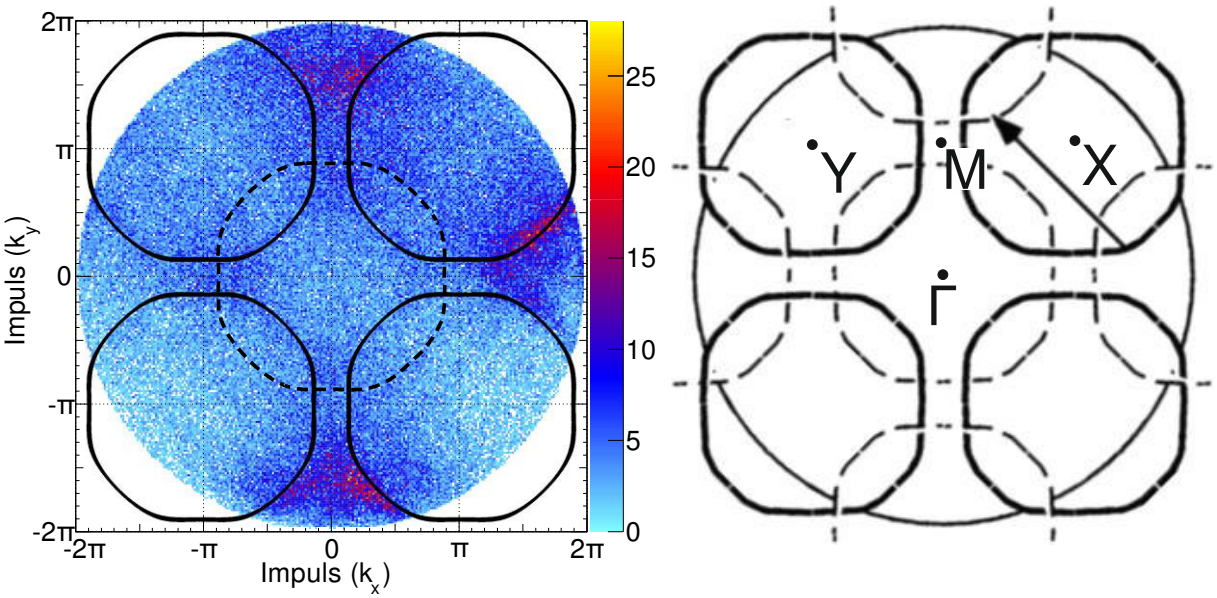


Abbildung 5.17: Links) Eine aufgenommene Fermifläche eines dünnen Bi2212-Films (4500 – Energiefenster 0.2eV). Rechts) Eine theoretische Fermifläche, entnommen aus [AOSS94].

Neben der Hauptfermifläche (schwarze Linien) konnte, wie bei Aebi et al., eine sogenannte Schattenfermifläche (gestrichelte Linie) beobachtet werden (siehe Abbildung 5.18). Dabei handelt es sich um Repliken der Hauptfermifläche, welche um den Wellenvektor Q(π, π) in der 2D-Brillouin-Zone verschoben sind. Eine mögliche Erklärung dazu liefert der Spindichtewellen-Ansatz von [KaSc90] mit einer antiferromagnetischen Nahordnung in den CuO_2-Ebenen. Eine Auflistung zahlreicher weiterer Erklärungsvorschläge, von denen einige auch einen strukturellen Ursprung in Betracht ziehen (zwei ungleiche Cu-Ebenen per CuO_2-Ebene), kann in [Dama03] gefunden werden. Die Schattenfermifläche konnte bisher bei keinem anderen Kuprat-Hochtemperatursupraleiter nachgewiesen werden.

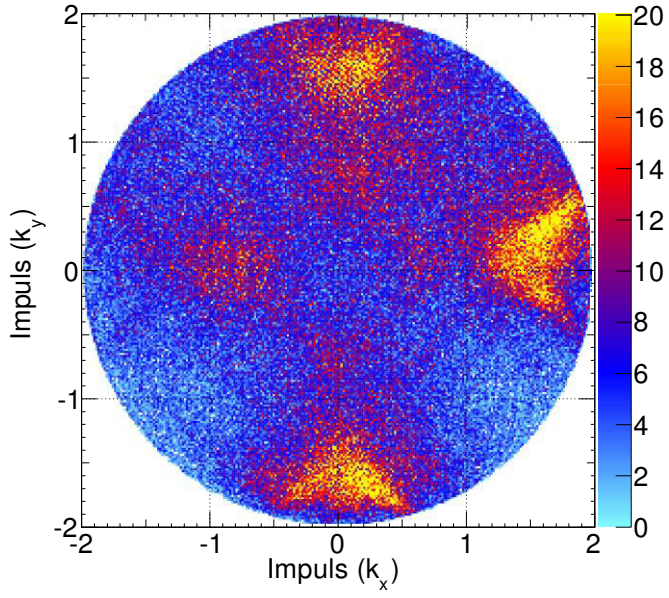


Abbildung 5.18: Die gleiche aufgenommene Fermifläche wie in Abbildung 5.17 (4500), mit modifizierter Farbskala, um die sog. Schatten-Fermifläche deutlicher sichtbar zu machen.

Die bisher gezeigten experimentellen Daten entsprechen einer Parallelimpuls-Messung bei festgehaltener Energie bzw. einer Art Impuls-Verteilungs-Kurven (momentum distribution curves – MDC), wie sie auch mit hemisphärischen Analysatoren aufwendig gemessen werden können. Ein Unterschied zu der hier verwendeten Messmethode besteht darin, dass die Proben in diesem Experiment dazu nicht bewegt werden mussten. Die Lichteinfallsrichtung ist somit ebenfalls fixiert, was es theoretisch ermöglicht, direkt Informationen über das

Matrixelement (*2.16*) zu extrahieren. In den gezeigten Daten fällt das Licht aus negativer X-Richtung auf die Probe (Erklärung siehe Abbildung 5.27), was zu der beobachtbaren Asymmetrie in der Intensität (wie in Abbildung 5.17) entlang der X-Richtung führt.

Neben der Fermifläche kann durch Schnitte zwischen den Hochsymmetriepunkten des Kristalls auch direkt die bekanntere 1D-Bandstruktur-Darstellung aus den Daten extrahiert werden. Eine solche ist in Abbildung 5.19 neben einer theoretischen Bandstrukturrechnung (LDA Modell) gezeigt. Das CuO_2-Band ist deutlich zu erkennen und im Rahmen der Messungenauigkeit ergibt sich eine qualitative Übereinstimmung.

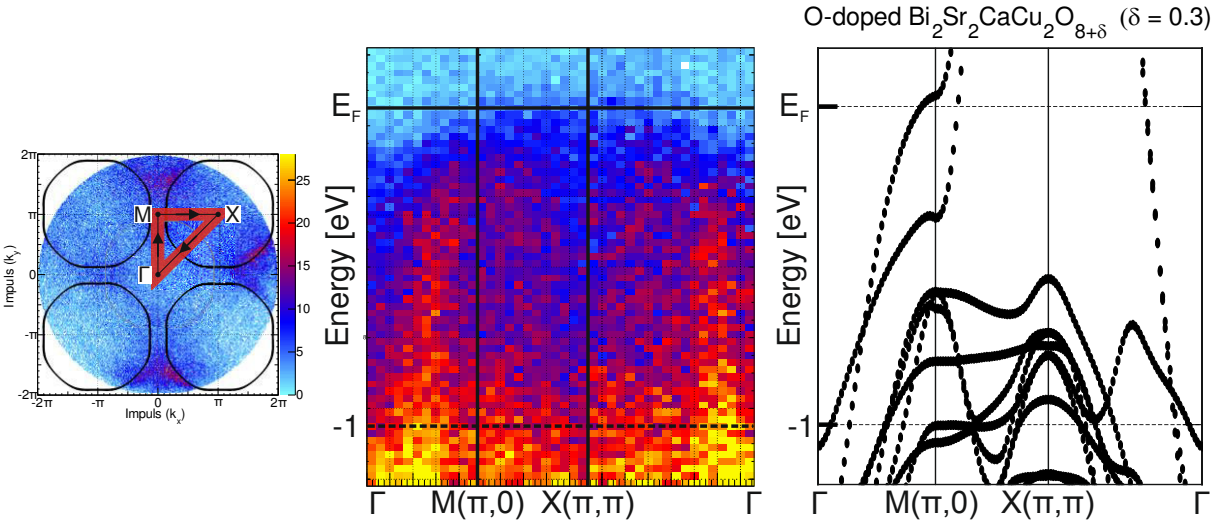


Abbildung 5.19: Mit Schnitten im Impulsraum (links) lässt sich aus den experimentellen Daten direkt eine typische Bandstruktur extrahieren (Mitte). Die experimentelle Bandstruktur ist quantitativ mit einer theoretischen LDA-Bandstrukturrechnung (rechts) vergleichbar (entnommen aus [LSMB08]).

Statt einzelne 1D-Bandstrukturen aus den Daten zu extrahieren ist es mit den Daten auch möglich, wie in Abbildung 5.20 gezeigt, eine Art 3D-Bandstruktur darzustellen (MDCs). Darin sind Strukturen bis 3.2 eV unter E_F (limitiert durch das Energiefenster) deutlich zu erkennen.

Daneben ist in Abbildung 5.21 eine theoretische Bandstrukturrechnung gezeigt, für die sich wieder eine qualitative Übereinstimmung mit der Messung zeigt.

Das Messen von Phänomenen wie der Energielücke (Größenordnung: 30 meV) oder dem Supraleitungspeak (100 meV) ist mit dem experimentellen Aufbau nicht gelungen. Dies lag vor allem an der vergleichsweise geringen Energieauflösung (Lokal ca. 300 meV) und der erreichbaren Statistik. Gleichzeitig wäre das dazu nötige Vergleichen von unterschiedlichen Messungen (Referenz Proben) mit dem verwendeten Flugzeitspektrometer nur extrem schwer und aufwendig durchführbar.[84]

[84] Bei Messungen mit hemisphärischen Analysatoren werden die Energielücke oder der Pseudo-Gap relativ zu einer Referenz-Probe (üblicherweise Fermikante von Gold) gemessen. Dies ist für das hier durchgeführte Experiment extrem schwierig, da beim Probenwechsel die 3D-Startposition relativ zum Spektrometer unverändert bleiben müsste. Gleichzeitig sind auf diesem Level die Auswirkungen von unterschiedlichen Austrittsarbeiten, wie in 3.5.3.2 *Austrittsarbeit* beschrieben, bei Flugzeitspektrometern nicht mehr zu vernachlässigen.

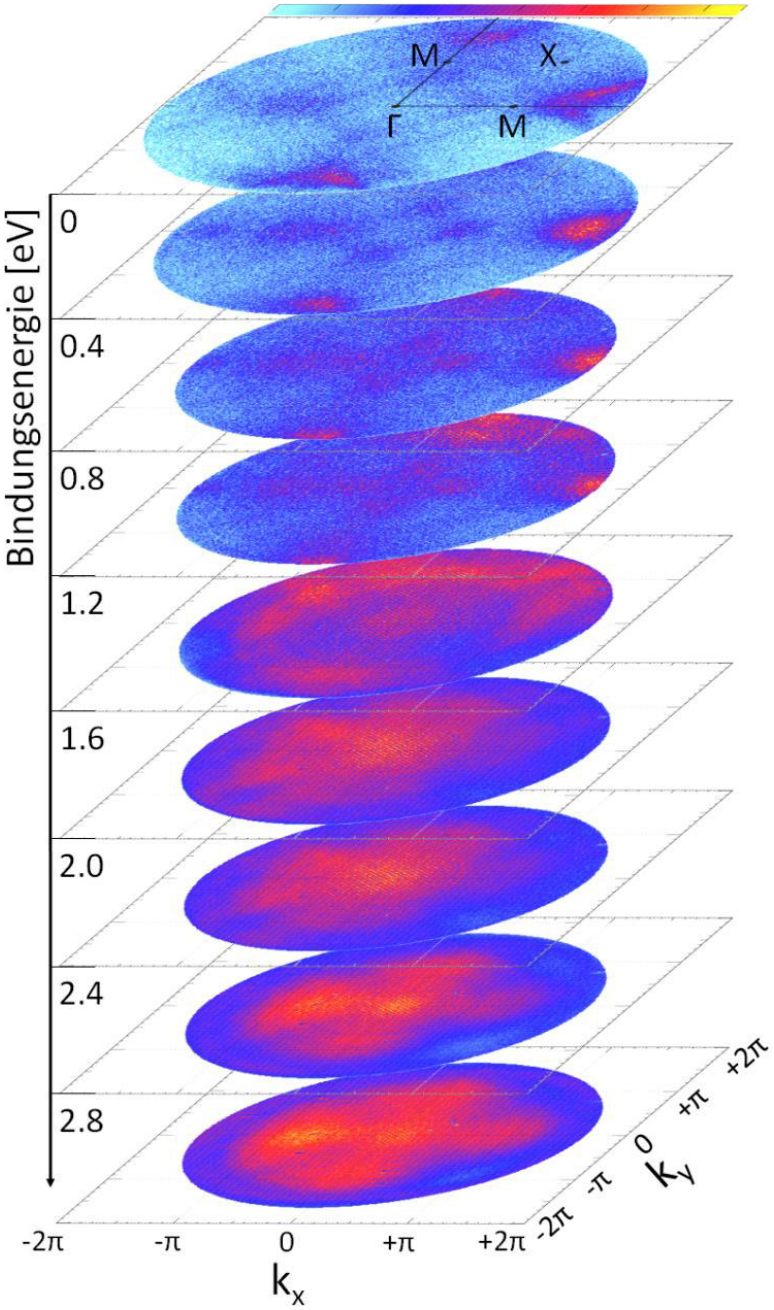


Abbildung 5.20: Aufgenommene Fermifläche und darunterliegende MDCs einer Bi2212 Probe (4500 - Dünner Film). Integrationsfenster jeweils 300 meV.

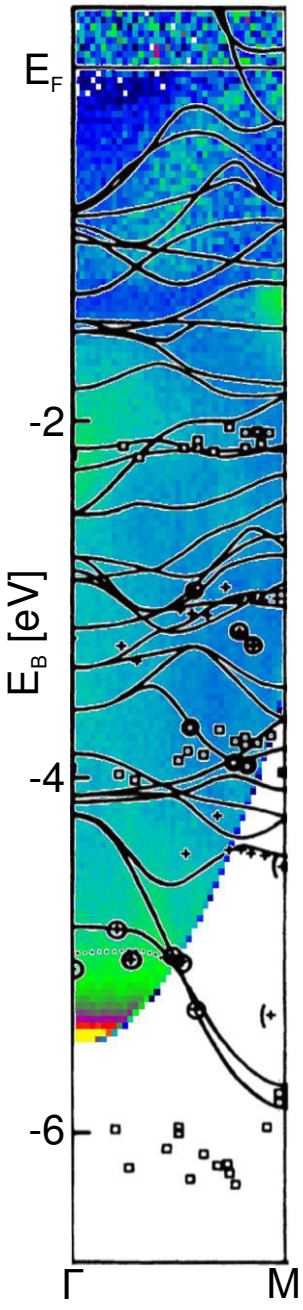


Abbildung 5.21: Theoretische Bandstrukturrechnung (Linien) plus Messung (Punkte), entnommen aus [BSDG90, MaYF88], welche über die Messdaten gelegt wurden.

5.2.3.1.1 Schatten-Fermifläche (Superlattice)

Bei Messungen von kristallinen Bi2212 Proben konnte die sogenannte Superstruktur-Fermifläche beobachtet werden. Deren Ursprung war lange ein Rätsel bei der Untersuchung von kristallinen Bi2212 Proben und konnte nach der ersten experimentellen Beobachtung 1994 von P. Aebi [AOSS95] erst 2006 von M. S. Golden [MSHS00] sicher auf einen strukturellen Ursprung zurückgeführt werden. Dabei handelt es sich um Verschiebungen der Bismutatome in den Bi-O-Ebenen, welche sich direkt auf die Zustände in den CuO_2-Ebenen auswirken. Da Bi2212 eine orthorhombische Kristallstruktur besitzt ($a \neq b \neq c$), ist die

Superstruktur nicht in der X-Y-Ebene symmetrisch, sondern zeigt sich nur als Verschiebung entlang der Γ-Y-Richtung (±Q(0.21π ,0.21π)).

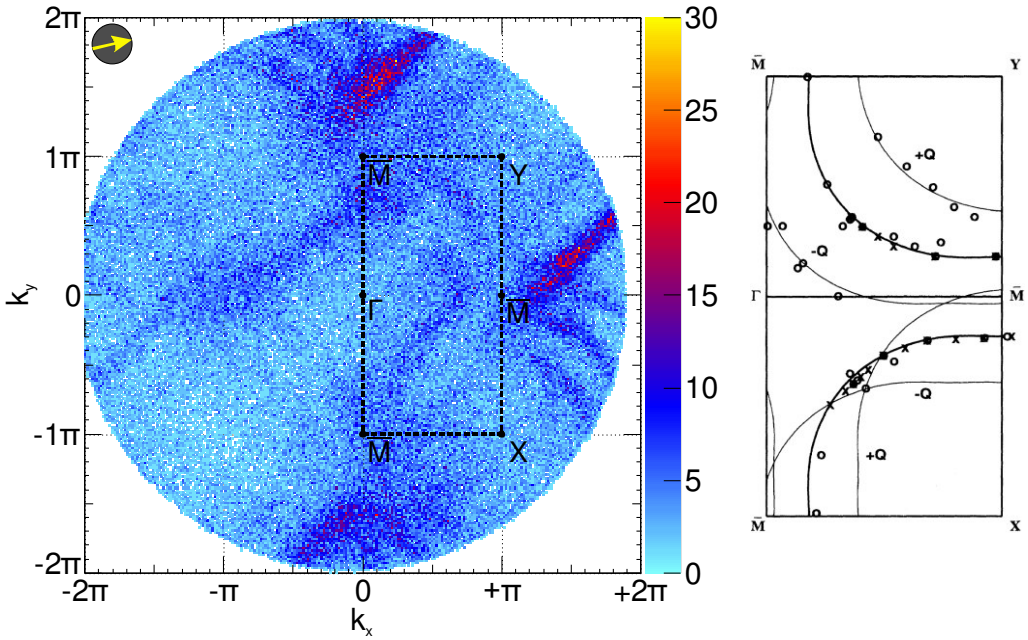


Abbildung 5.22: Links) Eine in diesem Experiment gemessene Fermifläche von kristallinen Bi2212 (4402 – E_{photon} = 44.4 eV, Ekin 41 / Epass 40, Energieschnitt: 40.3 – 40.5 eV), markiert sind die erste Brillouin-Zone (halb) sowie oben links die Lichteinfallrichtung. Rechts) Eine Messung mit Hemisphärischen-Analysatoren (Punkte) zusammen mit einem tight-binding Fit (Linien). Entnommen aus [NRDC95].

Innerhalb der ersten Brillouin-Zone ist die Superstruktur-Fermifläche allerdings nur schwer zu erahnen. Erst in den benachbarten Brillouin-Zonen sind die entsprechenden Strukturen deutlich zu erkennen.

5.2.3.2 Y123

Neben den hauptsächlich untersuchten Bi2212 Proben wurde auch eine Y123 Kristall-Probe untersucht. Die Fermifläche zeigt ein für Y123 typisches überdotiertes Verhalten [Dama03] und ist in guter qualitativer Übereinstimmung zu anderen Experimenten, wie in Abbildung 5.23 zu erkennen.

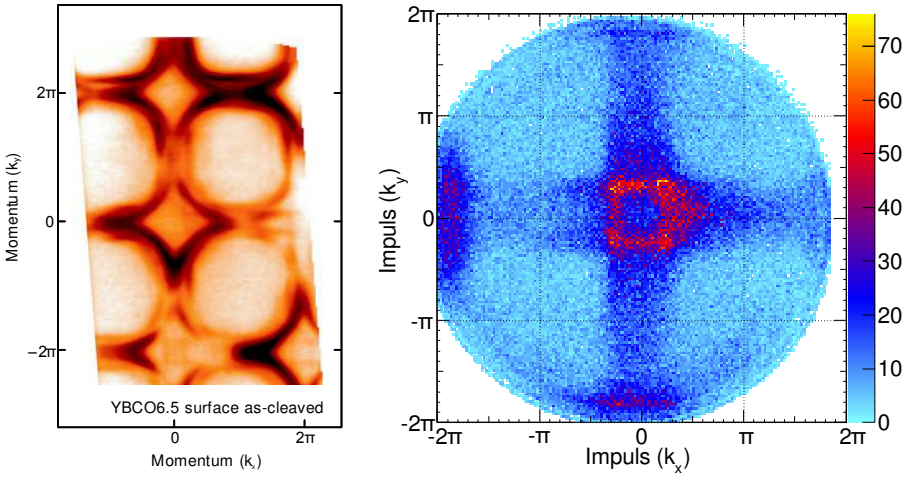
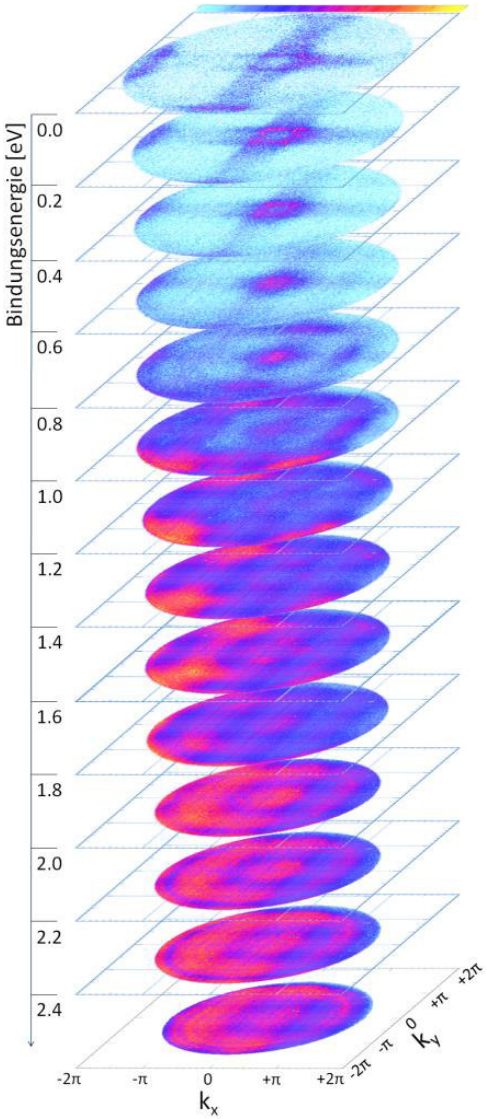


Abbildung 5.23: Links) Mit einem hemisphärischen Analysator aufgenommene Fermifläche von Y123 (Doping = 0.28), entnommen aus [Dama03]. Rechts) Eine in diesem Experiment aufgezeichnete Fermifläche (Energiefenster 39.6 – 40 eV) von einer Y123 Kristall Probe (Doping unbekannt, T_C = 92K). Ursache für die höhere Intensität im linken Bereich ist, dass die Probenoberfläche nicht senkrecht zum Spektrometer stand.



Wie bei Bi2212 sind auch bei Y123 deutliche Strukturen über das gesamte beobachtbare Energiefenster (2.6 eV unterhalb von E_F) deutlich zu erkennen.

Abbildung 5.24 (Links): Aufgenommene Fermifläche und darunterliegende MDCs der Y123-Probe (4300 - Dünner Film). Integrationsfenster pro Schnitt jeweils 200 meV.

5.2.4 Diskussion der Einfachphotoemission

Das Aufzeichnen der Fermifläche sowie der Bandstruktur von Bi2212 und Y123 ist in diesem Experiment qualitativ gelungen. Dabei kann das Experiment zwar bisher nicht mit der Auflösung von modernen ARPES-Experimenten (hemisphärische Analysatoren) mithalten, jedoch bietet das deutlich größere abgedeckte Energiefenster und der größere Raumwinkel (höhere Transmission) interessante Möglichkeiten für reine SPE-Messungen.

Ein fundamentales Problem bei Messungen mit hemisphärischen Analysatoren sind die üblicherweise sehr hohen benötigten Photonenflüsse, um die Messungen in angemessener Zeit durchführen zu können. Dabei kann es zu Raumladungseffekten der emittierten Photoelektronen-Wolke kommen, die zu Energieverschiebungen sowie Verschmierungen führen können [ZWYB05]. Besonders wenn die Ausdehnung des Startorts aufgrund kleiner Proben (im Nanometerbereich – sog. Nano-PES) immer kleiner werden muss, treten diese Effekte immer stärker in den Vordergrund. Die höhere Transmission von Flugzeitspektrometern kann dabei helfen, indem mit einem um mehrere Größenordnungen reduzierten Photonenfluss gemessen werden kann.

Ein stark reduzierter Photonenfluss kann auch bei besonders fragilen Systemen (anfällig für durch Strahlung verursachte Kristallschäden), wie beispielsweise organischen Kristallen (Halbleiter-Photovoltaikzellen oder Supraleitern), von Vorteil sein (sogenannte *Low dose*

photoelectron spectroscopy – LD-PES). Bei bisherigen Messmethoden musste dazu entweder die Messdauer extrem verlängert werden ([MNDX10] ca. 24h), oder ein im Vakuum kontinuierlich gezüchteter Probenfilm vor dem Analysator durchgefahren werden. Die eventbasierende Datenaufzeichnung bei Flugzeitspektrometern liefert dabei gleichzeitig ein direktes Werkzeug, um die Probenqualität bzw. den möglichen Probenzerfall während der Messung zu überwachen.

Die Beobachtung der zeitlichen Entwicklung einer Probe kann dabei auch für sich genommen als physikalischer Prozess interessant sein. In Abbildung 5.25 ist dazu die zeitliche Entwicklung der Rashba-Aufspaltung, verursacht durch die Bedeckung der Oberfläche mit Adsorbarten aus dem Restgas, gezeigt.

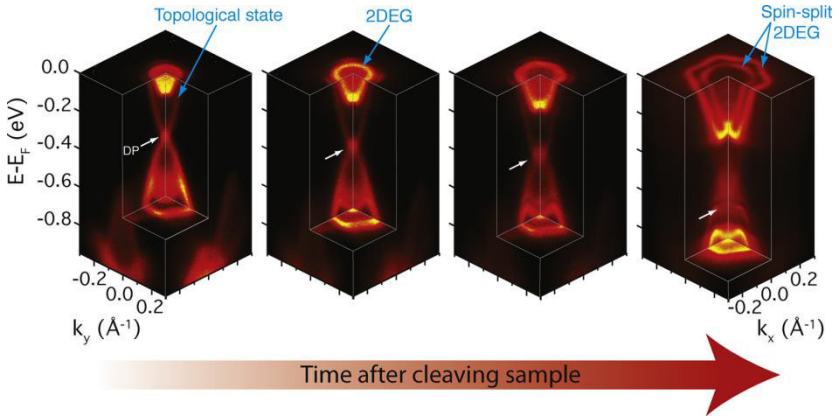


Abbildung 5.25: Zeitliche Entwicklung der Rashba-Aufspaltung nach dem Bruch eines Bi_2Se_3-Kristalls, verursacht durch die Bedeckung der Oberfläche mit Adsorbarten aus dem Restgas. Entnommen aus [OKLL13].

Ein zweiter genereller Vorteil von Flugzeitspektrometern ist, dass die Proben während der Messung allgemein nicht bewegt werden müssen, um verschiede Impulsrichtungen messen zu können. Die Gefahr, beim Bewegen der Probe auch den Lichtspot auf der Probe zu bewegen (speziell bei einem kleinen Lichtspot), besteht daher erst gar nicht. Ebenfalls ist durch die feste Lichteinfallsrichtung das Matrixelement direkt in den Spektren sichtbar (siehe z.B. Abbildung 5.17). Prinzipiell könnte somit auch das Matrixelement direkt weiter untersucht werden, z.B. durch Ändern der Lichtpolarisation.

Eine Beschreibung zu einigen Einsatzmöglichkeiten von Flugzeitspektrometern für SPE-Messungen an Festkörperproben kann in dem Artikel von R. Ovsyannikov et. al. [OKLL13] für ein ARToF-Flugzeitspektrometer (vergleichbar mit Themis 1000 ohne WAL) gefunden werden.

5.3 Doppelphotoemission (DPE)

Eines der Hauptziele dieser Arbeit war die Untersuchung der theoretisch vorhergesagten direkten Emission von Cooper-Paaren (2.4.1 *Direkte Emission von Cooper-Paaren*), wobei die zwei emittierten Elektronen kinematisch vollständig und in Koinzidenz gemessen werden sollen. Im Unterschied zu früheren Experimenten [Hatt04, Voss11, Wall11] wurde dazu erstmalig ein komplexes elektrostatisches Flugzeitspektrometer eingesetzt (siehe 3.5 *Spektrometer*), welches eine ausreichend hohe Energieauflösung bietet, um damit die für die direkte Emission von Cooper-Paaren besonders interessanten zwei-dimensionalen Kuprat-Hochtemperatursupraleiter (Bi2212 und Y123) untersuchen zu können.

Aufgrund ihrer physikalischen Eigenschaften sind diese 2D-Materialien in besonderer Weise für dieses Experiment geeignet, da die Impulse der Cooper-Paar-Elektronen theoretisch ausschließlich in der CuO_2-Ebene (parallel zur Oberfläche) liegen. Dadurch sollten die kinetischen Energien der beiden emittierten Elektronen identisch sein. Der elektro-optisch notwendige Trade-off des Spektrometers, bei dem zu Gunsten einer höheren Energieauflösung ein kleinerer beobachtbarer Energieausschnitt und Raumwinkel in Kauf genommen wird, ist daher sogar von Vorteil, da er höhere maximale Aufnahmeraten ermöglicht. Die allgemeine Untersuchung der Doppelphotoemission, bei der auch die freie Energieaufteilung zwischen zwei Elektronen von Interesse ist, ist hingegen in diesem Experiment nur eingeschränkt möglich.

In diesem Abschnitt werden zunächst die gewählten Messeinstellungen und möglichen experimentellen Nachweismethoden vorgestellt sowie die damit verbundene Qualität der aufgezeichneten Daten diskutiert. Anschließend werden die durchgeführten Messreihen beschrieben und die jeweils aussagekräftigsten Messungen dazu vorgestellt und diskutiert. Eine Übersicht der durchgeführten Messungen am SOLEIL kann im A.5 *Aufgenommene Messungen* ab Seite 165 gefunden werden.

5.3.1 Messeinstellungen (Spektrometereinstellungen)

Mit dem verwendeten Spektrometer (siehe Abschnitt: 3.5.3 *Themis 1000 mit ±30° Weitwinkelvorsatzlinse*) kann nicht der gesamte Impulsraum wehrend einer Messung gleichzeitig abgedeckt werden. Vor der Messung muss dieser durch die Wahl einer kinetischen Energie (Ekin) der zu messenden Elektronen festgelegt werden, um welche herum die Linse ein Energiefenster öffnet.

Die energetische Lage der beiden Cooper-Paar-Elektronen (an der Fermikante) sowie deren relative Startwinkel zueinander, sind nach der Theorie vorhergesagt. Mit der Einstellung der Photonenenergie (E_{photon}) bei bekannter Austrittsarbeit (Φ_{WF} = 4 eV, siehe Abschnitt: 3.5.3.2 *Austrittsarbeit*) und gleichmäßiger Energieaufteilung lässt sich die kinetische Energie der Cooper-Paar-Elektronen frei wählen:

$$E_{kin,cooper} = \frac{E_{photon} - 2 \cdot \Phi_{WF}}{2} \tag{5.1}$$

Diese Energie sollte aufgrund der energieabhängigen Auflösung des Spektrometers möglichst niedrig sein. Gleichzeitig definiert diese kinetische Energie in Verbindung mit dem Akzeptanzwinkel des Spektrometers (±30°) jedoch auch den beobachtbaren Bereich im reziproken Kristallraum. Mit einer Photonenenergie um 44 eV, was einer kinetischen Energie

(Ekin) der Cooper-Paar-Elektronen im Bereich von 18 eV ($E_{kin,cooper}=(E_{photon} - 2 \times \Phi_{WF})/2$) entspricht, wurde eine Einstellung gewählt, mit der die erste Brillouin-Zone komplett[85] abgedeckt wird. Als zweiter Parameter des Spektrometers wurde die Pass-Energie (Epass) gleich 35 eV gewählt, was einer Abwägung zwischen niedrigerer lokaler und höherer globaler Auflösung (siehe 5.3.4 *Qualität der Daten*: Radialsymmetrie) sowie weniger Untergrund aus überlappenden Elektronenverteilungen aus aufeinanderfolgenden Photonen-Bunchen entspricht (siehe 5.3.4 *Qualität der Daten:* Unkorrelierter Untergrund). Gleichzeitig ist der damit selektierte Energiebereich der Einfachphotoemission möglichst flach gewählt worden (siehe Abbildung 5.26), womit auch der erwartete unkorrelierte Untergrund (2γ→2e) in den DPE-Spektren möglichst flach bzw. homogen ist.

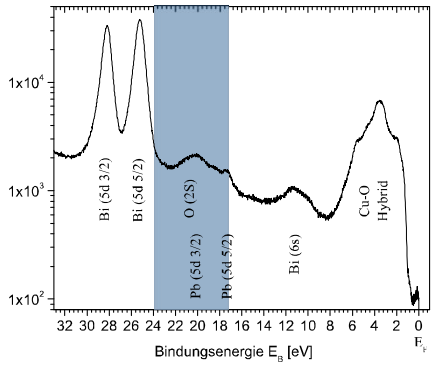


Abbildung 5.26: Gezeigt ist der Energieausschnitt, welcher bei DPE-Messungen mit ca. 45 eV und der Spektrometer-Einstellung Ekin 18, Epass 35 den unkorrelierten Beitrag aus der Einzel-Photoemission liefert.

Um statistisch aussagekräftige und gut vergleichbare Datensätze zu erhalten, wurde ein Großteil der Proben mit den gleichen Einstellungen (E_{photon}≈44 eV, Ekin=18 eV, Epass=35 eV) gemessen. Darüber hinaus wurden weitere Messeinstellungen ausprobiert, um verschiedene experimentelle Parameter abzudecken, diese werden im Abschnitt 5.3.5 *Messungen (Cooper-Paare)* einzeln motiviert und beschrieben.

5.3.2 Nachweismethoden

Es gibt mehrere experimentelle Ansätze bzw. Methoden, die dazu genutzt werden können, um gezielt nach der direkten Emission von Cooper-Paaren zu suchen:

1. **Direkter Nachweis der Cooper-Paar-Signatur (Theorie)**
   Bei den hier vorgestellten kinematisch vollständigen Messungen[86] von zwei Elektronen (Impulsmessungen) ist es möglich, eine Vielzahl von Spektren frei zu definieren. Um darunter diejenigen Spektren zu finden, bei denen sich die direkte Emission von Cooper-Paaren möglichst deutlich zeigt bzw. vom erwarteten unkorrelierten Untergrund besonders abhebt, sind einige Vorüberlegungen sinnvoll.
   Durch die Theorie (2.4.1 *Direkte Emission von Cooper-Paaren*) wird das Energieniveau bzw. die Lage der Cooper-Paar-Elektronen knapp unterhalb der Fermienergie vorhergesagt.

[85] Für Bi2212 (Gitterkonstante a = 3.82 Å) gilt $k_{||,max} = \frac{\pi}{3.82Å} = 0.82\ \frac{1}{Å}$, was nach dem Drei-Stufen-Modell zu $p_{||,max} = 0.43\ a.u.$ führt. Bei einer kinetische Energie der Elektronen von 18 eV beträgt der Impuls $p_{gesamt} = \sqrt{18\ eV/13{,}6} = 1.15\ a.u.$, wodurch sich der maximale Emissionswinkel zu $\theta_{max} = \sin^{-1}(0.43/1.15) = 21.96°$ ergibt.

[86] Gültig im gewählten Energie- und Akzeptanzwinkelfenster.

Mit der Energieerhaltung kann somit auch die kinetische Energie des vorhergesagten Prozesses betrachtet werden:

$$E_{kin,e1} + E_{kin,e2} = E_{photon} - 2 \cdot \Phi_{WF} \qquad (5.2)$$

Dieser Zusammenhang lässt sich direkt im E1-gegen-E2-Spektrum darstellen, in welchem sich eine Diagonale an der DPE-Fermikante ($E_{DF} = E_{photon} - 2 \times \Phi_{WF}$) ergibt. Alternativ kann auch die Summenenergie $Esum = E_{kin,e1} + E_{kin,e2}$ zur Darstellung genutzt werden, was besonders bei einer geringen Statistik oder zur Kombination mit anderen Messgrößen sinnvoll ist.
Neben den Energieniveaus der beiden Cooper-Paar-Elektronen sind auch die relativen Impulse der beiden Elektronen zueinander vorhergesagt. Diese sind gerade entgegengesetzt und weisen den gleichen Betrag auf. Die sich daraus ergebenden Zusammenhänge für die Doppelphotoemission sind in Abbildung 5.27 veranschaulicht:

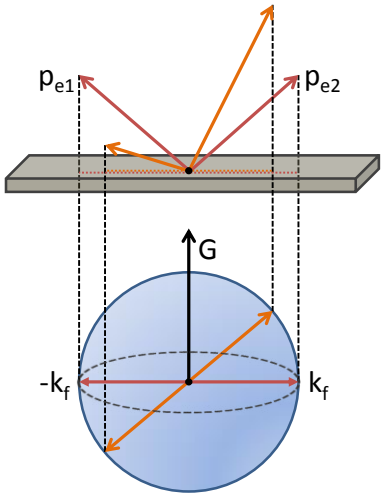


Abbildung 5.27: Geometrische Betrachtung der direkten Cooper-Paar-Emission. Die beiden einzelnen Elektronen eines Cooper-Paars liegen mit entgegengesetztem Impuls auf der Fermioberfläche. Zur Emission ins Vakuum muss der Impuls aus dem Kristall (**G**: Gittervektor) aufgenommen werden. Aufgrund der Parallelimpulserhaltung beim Durchgang durch die Oberfläche ist der Parallelsummenimpuls im Vakuum gleich dem im Kristall, nämlich Null (vorausgesetzt **G**‖**n**). Sollten die Elektronen die Energie gleichmäßig aufteilen, so wären damit der senkrechte Impuls und somit auch der Gesamtimpuls festgelegt. Die gemessenen Cooper-Paare könnten also nur auf dem Äquator der Impulskugel liegen.

In quasi-zweidimensionalen Kuprat-Hochtemperatursupraleitern (Bi2212 oder Y123) können Cooper-Paar-Elektronen nur auf dem Äquator der in Abbildung 5.27 gezeigten Impulskugel liegen. Demnach können die beiden Elektronen ihre kinetische Energie nicht mehr frei untereinander aufteilen.
Aber auch unabhängig von dieser Annahme würde in beiden Fällen gelten, dass der Summenparallelimpuls $Psum_{parallel} = \sqrt{(p_{x1} + p_{x2})^2 + (p_{y1} + p_{y2})^2}$ gleich Null ist. Vorausgesetzt, der aufgenommene Gittervektor (**G**) ist parallel zur Oberflächennormalen (**n**).

Diese beiden theoretischen Annahmen lassen sich im Esum-gegen-$Psum_{parallel}$[87]-Spektrum kombinieren, in welchem Cooper-Paar-Elektronen bei $E_{sum} \approx E_{photon} - 2 \times \Phi_{WF}$ und parallelem Summenimpuls gleich Null erwartet werden ($Psum_{parallel} \approx 0$). Geht man von gleichmäßiger kinetischer Energieaufteilung aus, können die Spektren zusätzlich mit einer Bedingung auf die Energiedifferenz $dE = |E_{kin,e1} - E_{kin,e2}|$ versehen werden.

[87] Summenimpuls (Parallel zur Oberfläche) gegen die Summenenergie

2. Eventmixing

Der im Abschnitt 5.3.4 *Qualität der Daten* beschriebene unkorrelierte Untergrund (2γ→2e) in den Doppel-Elektronen-Spektren kann mit dem sogenannten Eventmixing simuliert werden. Dabei wird, wie in Abbildung 5.28 gezeigt, aus zwei Einzelereignissen (ADC-Traces) ein künstliches Doppelereignis generiert und anschließend wie ein echtes aufgezeichnetes Doppelereignis durch die Doppelpulserkennungs-Algorithmen geschickt. Dies hat den Vorteil, dass sämtliche Detektor- und Spektrometer-Eigenschaften wie zum Beispiel die lokale Detektoreffizienz, die Detektortotzeit sowie der energie- und richtungsabhängige Akzeptanzwinkel mit eingeschlossen sind.

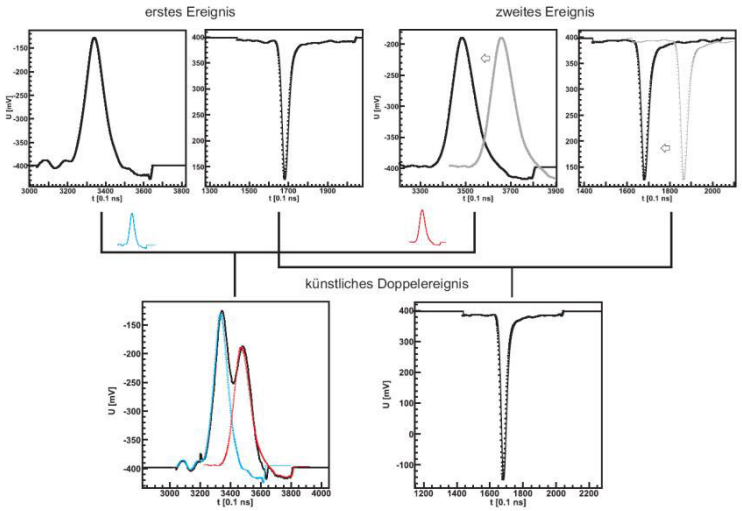


Abbildung 5.28: Schematische Darstellung des Eventmixing [Wall11]. Aus zwei Signalformen von Einzelereignissen wird ein künstliches Doppelereignis erzeugt, welches anschließend dieselben Doppelpulserkennungs-Algorithmen (siehe Abschnitt: *Datenanalyse*) durchläuft wie ein echtes Doppelereignis.

Durch den Vergleich von aufgezeichneten mit eventgemixten Daten wird es möglich, die Artefakte[88] des unkorrelierten Untergrunds zu identifizieren bzw. diesen bis zu einem gewissen Grad zu filtern. Dies erlaubt es theoretisch, mit einem beliebig großen unkorrelierten Untergrundanteil zu messen.

3. Vergleich zwischen normal- und supraleitenden Messungen

Cooper-Paare existieren im jeweiligen Probenmaterial nur, wenn dieses sich auch in der supraleitenden Phase befindet ($T < T_c$). Dadurch wird es möglich, die theoretische direkte Emission von Cooper-Paaren mit der Probentemperatur sozusagen an- und auszuschalten.

Vergleicht man Messungen unter- und oberhalb der Sprungtemperatur miteinander, können Abweichungen in den Doppelereignis-Spektren auf einen Effekt der Supraleitung, möglicherweise die direkte Emission von Cooper-Paaren, zurückgeführt werden. Voraussetzung dafür ist, dass die Einfachphotoemission bzw. der unkorrelierte Untergrund (2γ→2e) in den DPE-Spektren, zwischen den beiden Messungen konstant bleibt.

[88] Artefakte bezeichnen in diesem Zusammenhang Strukturen in den DPE-Spektren, deren Ursprung in der Einfachphotoemission (2γ→2e-Untergrund) liegt (Art-Selbstfaltung).

4. Änderung der Photonenenergie

Ändert sich die Photonenenergie um eine Energie Δ, verschieben sich die aufgenommenen Strukturen in den SPE-Spektren entsprechend um diese Energie. Die Strukturen der Einfachphotonenemission (2γ→2e) in den DPE-Spektren (z.B. der Summenenergie) verschieben sich somit um den doppelten Betrag (2xΔ), wohingegen sich echte Strukturen (z.B. die DPE-Fermikante) nur um den einfachen Betrag (Δ) verschieben. Dies kann stets als Gegenprobe eingesetzt werden, um echte Doppelphotoemissons-Ereignisse vom unkorrelierten Untergrund zu unterscheiden.

Die in dieser Arbeit verwendete Methode, um Unterschiede zwischen aufgezeichneten und eventgemixten Daten oder Änderungen zwischen normal- und supraleitenden Messungen darzustellen, ist die der gewichteten Differenzen. Dabei wird ein Spektrum erzeugt, in dem sich jeder einzelne Kanal (*Bin*) aus den dazugehörigen Kanälen der zu vergleichenden Spektren A und B wie folgt berechnet:

$$D = \frac{A - B}{A + B} \tag{5.3}$$

Diese Methode hat gegenüber einfachen Differenzen den Vorteil, dass die relativen Abweichungen unabhängig von der Anzahl der Einträge um die Null gewichtet werden.

5.3.3 Kalibrierung

Kalibrierung und Spektrometer-Einstellung

Bei Doppelphotoemissions-Messungen liegen bewusst keine deutlichen Strukturen[89] in den SPE-Spektren, die für die Kalibrierung des Spektrometers (identisch zu 5.2.1 *Einstellung und Kalibrierung* von Einfachphotoemissions-Messungen) genutzt werden könnten. Um dennoch die Messungen kalibrieren zu können, werden durch Änderung der Photonenenergie solche Strukturen in das verwendete Energiefenster geschoben.

Aus technischen Gründen[90] war es nicht möglich die Fermikante (mit E_{Photon} = 22 eV) wie bei SPE-Messungen in das Energiefenster um 18 eV zu legen. Stattdessen musste einer der beiden Bismuth-Innerschalenzustände (E_{Photon} ca. 48 eV) genutzt werden. Dabei ist die natürliche Linienbreite der Innerschalenzustände zwar deutlich breiter, allerdings geht die Aufzeichnung durch die sehr hohe Intensität entsprechend schneller als mit der Fermikante (siehe Abbildung 5.29). Bei dieser Kalibrierung mit einem Bismuth-Innerschalenzustand, handelt es sich ausschließlich um eine Energiekalibration, der Startwinkel lässt sich damit nicht kalibrieren. Dies wäre unter extrem großem Aufwand nur mit der Fermifläche möglich gewesen.

Diese Art der Kalibrierung (siehe Abbildung 5.29) wurde mehrmals während der verschiedenen Strahlzeiten durchgeführt, um das gesamte Experiment auf Kontinuität hinsichtlich der Photonenenergie, den Spektrometer-Einstellungen und des Zeitnullpunkts (Flugzeitberechnung) zu überprüfen.

---

[89] Grund dafür ist, einen möglichst flachen unkorrelierten Untergrund aus 2γ→2e-Prozessen in den DPE-Spektren zu erhalten (siehe Abbildung 5.26).

[90] Bei einer Photonenenergie kleiner als E_{Photon} = 36.3 eV werden die höheren Harmonischen des Monochromators (44 $eVE_{1,harmonisch}$ = E_{Photon} × 2) nicht mehr von der Aluminium-Folie mit ihrem Cut-off bei 72.6 eV gefiltert (siehe Abbildung 3.12 auf Seite 52). Zusammen mit der extrem niedrigen Zustandsdichte an der Fermikante ist ein Aufzeichnen dieser damit nicht mehr möglich.

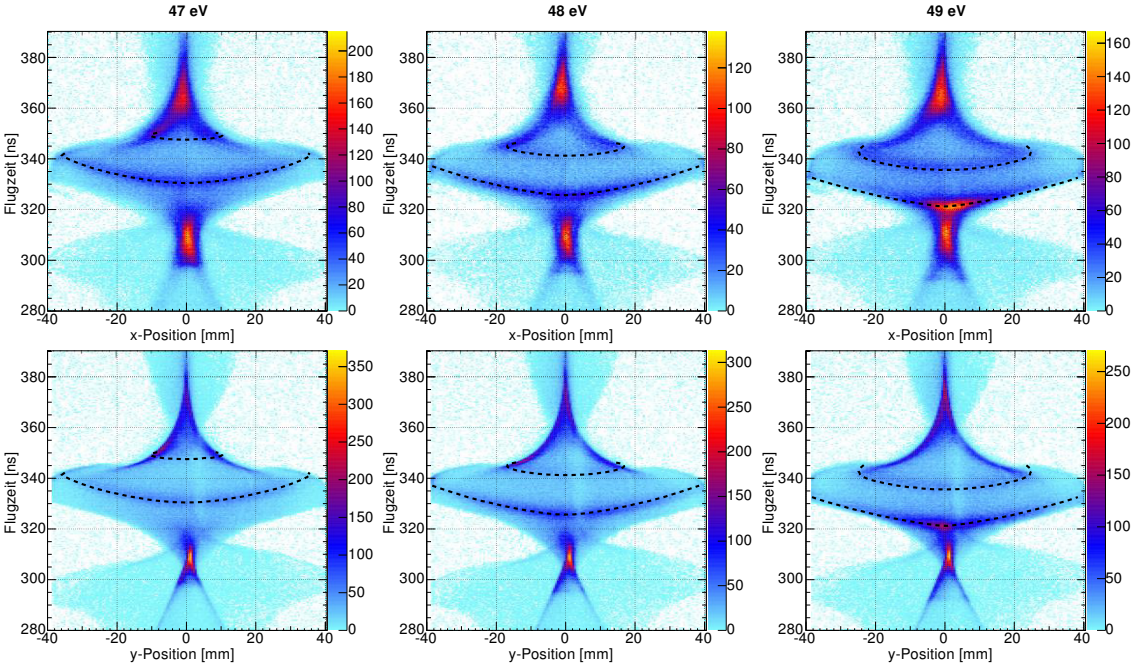


Abbildung 5.29: Kalibrierungs-Messung (3100), bei der die beiden Bi-Innerschalenzustände durch das Energiefenster (Ekin 18/Epass 35) geschoben wurden.

Wie schon bei Einfachphotoemissions-Messungen, ist die Symmetrie der gesamten Abbildung für die Auflösung des Experiments entscheidend. Dazu war ursprünglich geplant, das Spektrometer zuerst in einem anderen Energiefenster voreinzustellen und anschließend in das eigentliche Energiefester zurück zu wechseln. Dabei musste allerdings festgestellt werden, dass die gefundene Symmetrie der Abbildung bei der Umstellung verloren geht, was an einer sehr sensiblen Abhängigkeit der Deflektoren von der kinetischen Energie der Elektronen liegt[91].

Softwareseitige Kalibrierung

Die softwareseitige Kalibrierung verläuft im Prinzip identisch zu derjenigen bei Einfachphotoemissions-Messungen, nur dass in den Messungen kaum geeignete Strukturen zur besseren Orientierung im Energiefenster liegen.

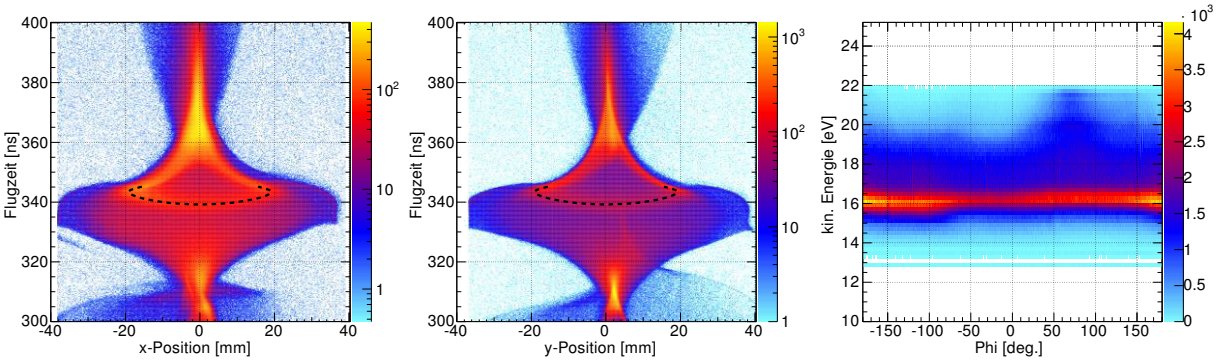


Abbildung 5.30: Eine Cooper-Paar-Messung (4205) mit 44.5eV, bei der ein Bi-Innerschalenzustand (16.2 eV) direkt zum Kalibrieren der Energie genutzt werden kann. Links) Die beiden Flugzeit-Ort-Spektren, in denen die Lage des Bi-Innerschalenzustands markiert ist. Rechts) Das Phi-Energie-Spektrum.

[91] Versuche, die Deflektor-Ablenkung von der kinetischen Energie unabhängig zu machen, indem die Spannungen an die aktuelle kinetische Energie im Deflektor-Bereich angepasst wurden, waren nicht erfolgreich.

In Abbildung 5.30 ist eine DPE-Messung gezeigt, bei der ein Bismuth-Innerschalenzustand mit am Rand des Energiefester lag und zur softwareseitigen Kalibrierung genutzt werden konnte. Bei Messungen, bei denen solche Strukturen im Energiefenster fehlen, können zusätzliche Kalibrierungs-Messungen durchgeführt werden, bei denen ein Bismuth-Innerschalenzustand in das Energiefenster geschoben wurde.

5.3.4 Qualität der Daten

Für die Qualität der Doppelphotoemissions-Daten gilt grundsätzlich dasselbe wie für die Einfachphotoemission (siehe Abschnitt 5.2.2 *Qualität der Daten* auf Seite 101). Erschwerend kommen jedoch die Detektor-Totzeit, der unkorrelierte Untergrund sowie eine stärkere Abhängigkeit von der Radialsymmetrie und den Spektrometer-Eigenschaften hinzu:

Auflösung

Wie schon bei den Einfachphotoemissions-Messungen diskutiert (5.2.2 *Qualität der Daten*), kann die Spannungs-Stabilität der Netzteile eine Rolle für die Auflösung spielen. In Abbildung 5.31 sind die Potentialkurven entlang der Spektrometer-Achse für die verwendeten Linseneinstellungen gezeigt. Dabei entsprechen die absoluten Potentiale des typisch für DPE-Messungen verwendeten Linsenmodus Ekin 20/Epass 40 ungefähr denen des Linsenmodus Ekin 40 / Epass 40 bei SPE-Messungen (siehe Abbildung 5.12 auf Seite 103). Zusätzlich sind simulierte Spannungsschwankungen bzw. die dadurch verursachten Flugzeit- und Energie-Fehler gezeigt:

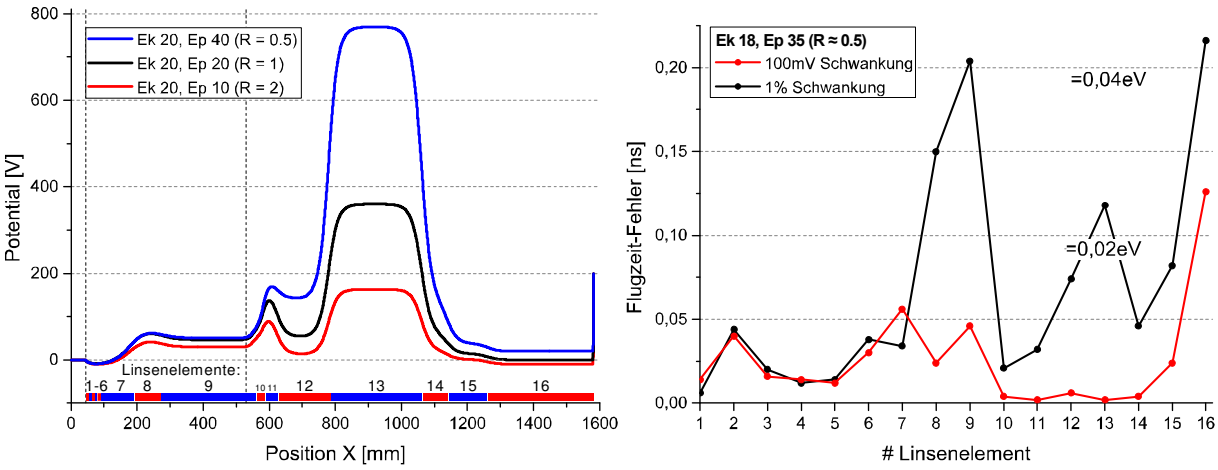


Abbildung 5.31: Links) Die Potentialkurve entlang der Spektrometer-Achse, für verschiedene Linsenmodi (R = 0.5, 1, 2). Rechts) Die Auswirkungen einer absoluten Spannungsschwankung von 100 mV und einer relativen Spannungsschwankung von 1 % (±0.5 %) der einzelnen Linsenelementen auf die Flugzeit sowie exemplarisch auf die Energie.

Ein mit Spannungsschwankungen in Verbindung gebrachtes Schwanken der Flugzeitverteilung, wie schon bei den SPE-Messungen, konnte beobachtet werden, wie in Abbildung 5.32 zu erkennen. Dabei entspricht das Wandern in einem 0.19 ns großen Bereich einer Verschlechterung der Energieauflösung um ca. 0.04 eV.

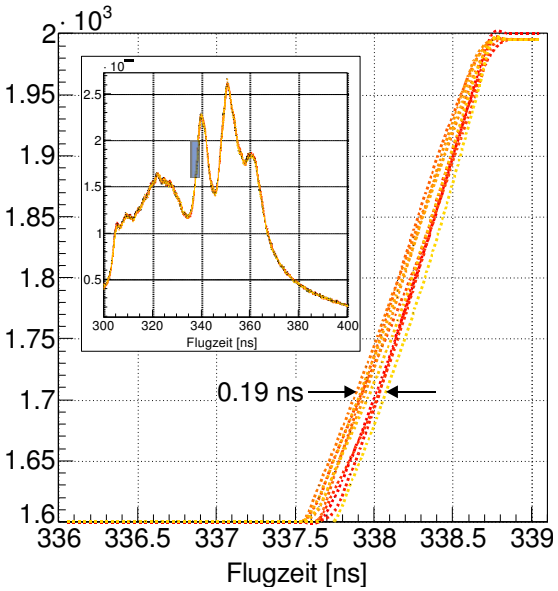


Abbildung 5.32: Langzeitstabilität (5 Stunden) einer Doppelphotoemissions-Messung (4205 – Ekin 18, Epass 35). Gezeigt ist die Flugzeit-Kante des Bismuth-Innerschalenzustands.

Die einzelnen Flugzeitspektren (von Rot nach Gelb) wandern dabei über einen Bereich von 0.19 ns, was einer Verschlechterung der Energieauflösung von 0.04 eV entspricht.

Zusammen mit einer konservativen Detektorzeitauflösung von 300 ps ergibt sich mit diesem Wandern (190 ps) eine effektive Zeitauflösung von circa 500 ps. Die sich damit ergebende Energie- und Winkelauflösung ist in Abbildung 5.33 gezeigt.

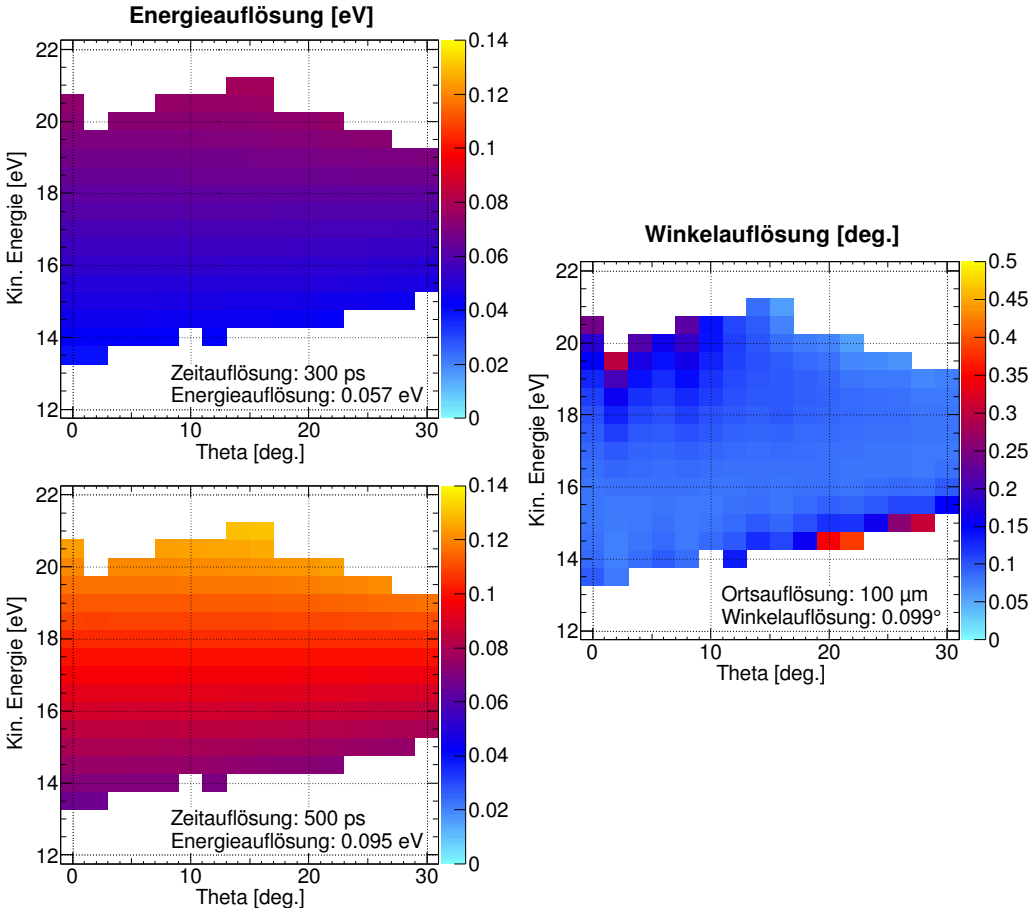


Abbildung 5.33: Die theoretische Energie- und Winkelauflösung für eine angenommene Zeitauflösung von 300 ps und 500 ps sowie einer Ortsauflösung von 100 µm.

Die durchschnittliche Energieauflösung verschlechtert sich dadurch also von 0.057 eV auf 0.095 eV. Aus technischen Gründen (siehe 5.3.3 *Kalibrierung*) war ein Aufzeichnen der Fermikante, in dem für DPE-Messungen benutzten Linsenmodus nicht möglich, womit die experimentelle Energieauflösung hätte direkt bestimmt werden können,.

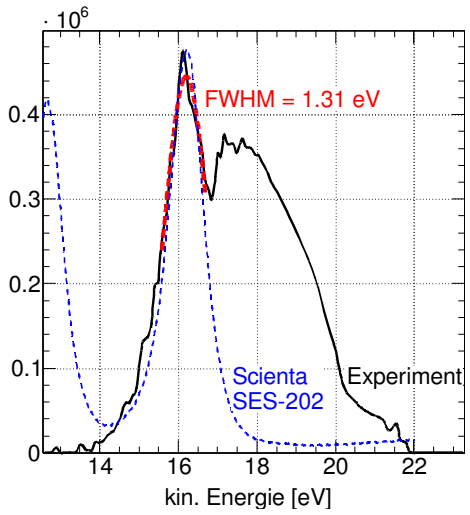


Abbildung 5.34: Energiespektrum (schwarz) im Linsenmodus Ekin 18/Epass 35 mit E_{photon} = 45.5 eV. Aufgrund der natürlichen Linienbreite des Innerschalenzustands (Scienta SES-202 Messung aus [Voss11], blau gestrichelt) eignet sich die Messung nur bedingt zur Bestimmung der Energieauflösung.

Statt einer Messung der Fermikante kann alternativ ein Bismuth-Innerschalenzustand in das Energiefenster geschoben werden, wie in Abbildung 5.34 gezeigt. Aufgrund der natürlichen Linienbreite des Innerschalenzustands eignet sich diese Methode jedoch nicht zur Bestimmung der Energieauflösung, sondern gibt lediglich eine grobe Orientierung.

Detektor-Totzeit

Eine allgemeine Detektor-Eigenschaft, die bei Koinzidenzmessungen mit einem einzelnen Detektor berücksichtigt werden muss, ist die sogenannte Detektor-Totzeit. Dies bedeutet, dass der Detektor nach der Detektion eines ersten Elektrons für eine gewisse Zeit (auch ortsabhängig) blind ist für ein zweites Elektron bzw. die Auflösung für eng nacheinander und/oder beieinander auftreffende Elektronen verschlechtert wird. Durch die Verwendung von ADCs statt TDCs zur Datenaufnahme (siehe 3.6 *Detektor und Datenaufnahmesystem*) und den entwickelten Doppelpuls-Erkennungs-Algorithmen (siehe 4. *Datenanalyse*) konnte die durch die Datenaufnahme verursachte Detektor-Totzeit wesentlich verringert werden (Resultat siehe Abbildung 5.35). Bei dieser verringerten Detektor-Totzeit geht man allerdings davon aus, dass die gesamte hardwareseitige Aufnahmeelektronik (MCP, Anode usw.) ein gleichförmiges Verhalten für zwei Elektronen zeigt, wenn diese dicht beieinander auftreffen (Zeit und Ort). Inwieweit diese Annahme gerechtfertigt ist, konnte für dieses Experiment technisch nicht ermittelt werden, weshalb die hier betrachtete Detektor-Totzeit nur als eine Art Untergrenze betrachtet werden sollte.

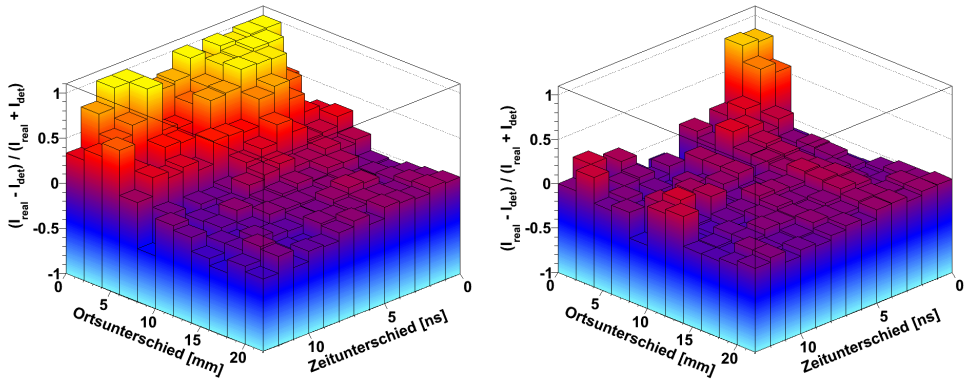


Abbildung 5.35: Die orts- und zeitunterschiedsabhängige Detektor-Totzeit für den CFD- (links) und den Doppel-Puls-Algorithmus (rechts). Dabei wurden als Referenz eventgemixte Daten genutzt. Abbildung entnommen aus [Wall11].

Unkorrelierter Untergrund

Elektronenpaaren oder allgemein Doppelereignissen (zwei Einzelereignisse in einem definierten Zeit- oder Energiefenster) auf dem Detektor kann nicht angesehen werden, ob deren Ursprung ein einzelnes Photon (Doppelphotoemission: γ→2e) oder zwei unkorrelierte Photonen (2γ→2e) bzw. zufällige Ereignisse[92] waren. Letztere bilden bei der Messung den sogenannten unkorrelierten Untergrund, welcher drei Ursprünge haben kann, welche im Folgenden einzeln diskutiert werden sollen:

1. Rauschen des Detektors
   (kurz: *Dunkelrate*)
   Ein Elektron fällt zufällig mit einem sogenannten Dunkelhit (alle Ereignisse, die nicht durch ein Photoelektron ausgelöst wurden) zusammen.
2. Zwei Einfachphotoemissions-Prozesse aus unterschiedlichen Photonen-Bunches
   (kurz: *2Bunch*)
   Ein langsames Elektron aus einem Photonen-Bunch trifft zusammen mit einem schnellen Elektron aus dem nachfolgenden Photonen-Bunch auf dem Detektor auf.
3. Zwei Einfachphotoemissions-Prozesse aus demselben Photonen-Bunch
   (kurz: *1Bunch*)
   Zwei Photonen im selben Photonen-Bunch erzeugen zwei unabhängige Elektronen, die zusammen auf den Detektor auftreffen (2γ→2e).

Die folgenden Untersuchungen beziehen sich auf Messungen während der zweiten Strahlzeit am SOLEIL 2013, welche mit E_{photon} = 44.5 eV und den typisch verwendeten Linseneinstellungen für DPE-Messungen (Ekin 18/Epass 35) aufgenommen wurden (Probe: normalleitender Bi2212-Film). Als Doppelereignisse sind Ereignisse definiert, welche in einem Energiefenster 16.5 -19.5 eV zusammenfallen, was einem Bereich entspricht, in dem der Akzeptanzwinkel kaum energieabhängig ist (siehe Abbildung 5.36).

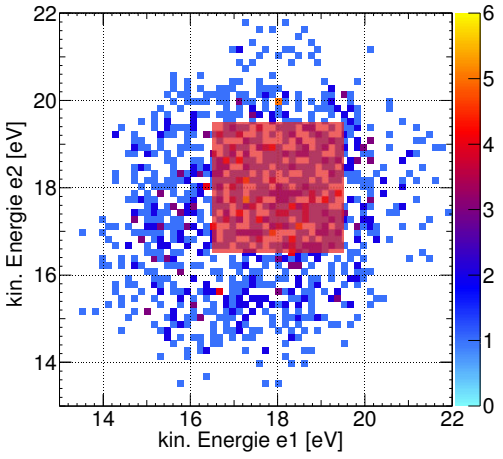


Abbildung 5.36: Das für die Untersuchung berücksichtige Energiefester (rotes Quadrat). In diesem Bereich ist der Akzeptanzwinkel kaum energieabhängig.
Die erwartete DPE-Fermikante liegt in der Mitte des Energiefensters.

[92] Ereignisse bezeichnen sowohl durch Elektronen als auch durch jegliche andere Störquellen (z.B. elektronisches Rauschen) erkannte Signale vom Detektor.

Rauschen des Detektors (*Dunkelrate*)

Der in diesem Experiment verwendete Elektronendetektor (MCP-Stack mit dahinterliegender Delayline-Anode, siehe 3.6 *Detektor und Datenaufnahmesystem*) zeigt bei geblocktem Photonenstahl immer noch eine Rate von ca. 50 Hz. Ursprung dieser sogenannten Dunkelrate oder einzelner Dunkelhits ist beispielsweise das Auslösen der MCP-Lawine durch kosmische Strahlung oder vagabundierende Elektronen oder Ionen in der Streukammer.

Zu einem falschen Doppelereignis kommt es nun, wenn ein Dunkelhit zeitnah (innerhalb von ca. 20 ns[93]) mit einem Einfachphotoemissions-Ereignis zusammenfällt. Die Wahrscheinlichkeit hierfür lässt sich abhängig von der Rate im Energiefenster leicht ausrechnen:

$$\sigma_{Doppel,Dunkelrate} = R_{Energiefenster}[Hz] \times \Delta_{Fenster}[s]$$

$\Delta_{Fenster}$: Größe des Gültigen Zeitfensters
= 20 ns

R_{Einzel}: Einzel-Elektronen Rate im gültigen Energiefenster
(Rate Energiefenster [Hz])

Die resultierende Doppelereignisrate (= $\sigma_{Doppel,Dunkelrate}$ x $R_{Energiefenster}$) für verschiedene angenommene Dunkelraten (20 Hz, 50 Hz und 100 Hz) vom Detektor ist in Abbildung 5.37 gezeigt.

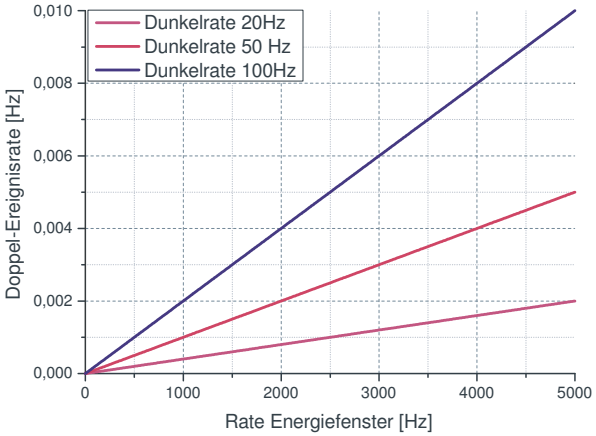


Abbildung 5.37: Rate der falschen Doppelereignisse, resultierend aus verschiedenen Dunkelraten des Detektors, abhängig von der Aufnahmerate im Energiefenster.

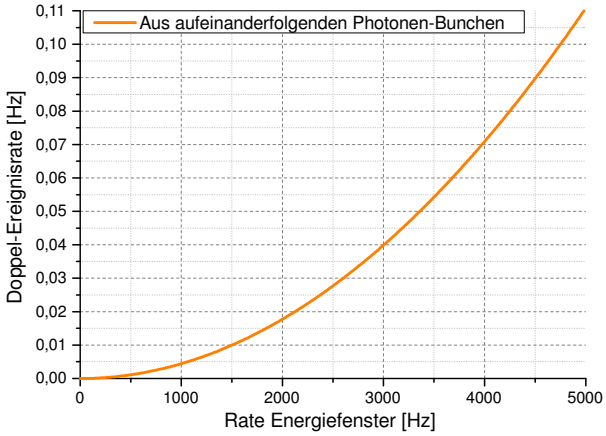


Abbildung 5.38: Rate der falschen Doppel-Ereignisse, resultierend aus zwei aufeinander folgenden Photonen-Bunches gegen die Aufnahmerate im Energiefenster.

[93] Gilt für den typisch verwendeten Linsenmodus Ekin = 18 eV / Epass = 35 eV.

Einfach-Photoemissions-Prozesse aus unterschiedlichen Photonen-Bunches (*2Bunch*)

Wie in Abbildung 5.39 zu erkennen, liegen die langsamsten Elektronen eines Photonen-Bunches ununterscheidbar bei den schnellsten Elektronen des darauffolgenden Photonen-Bunches. Dadurch kann es passieren, dass zwei aus unterschiedlichen Photonen-Bunches stammende Elektronen als Doppelereignis erkannt werden.

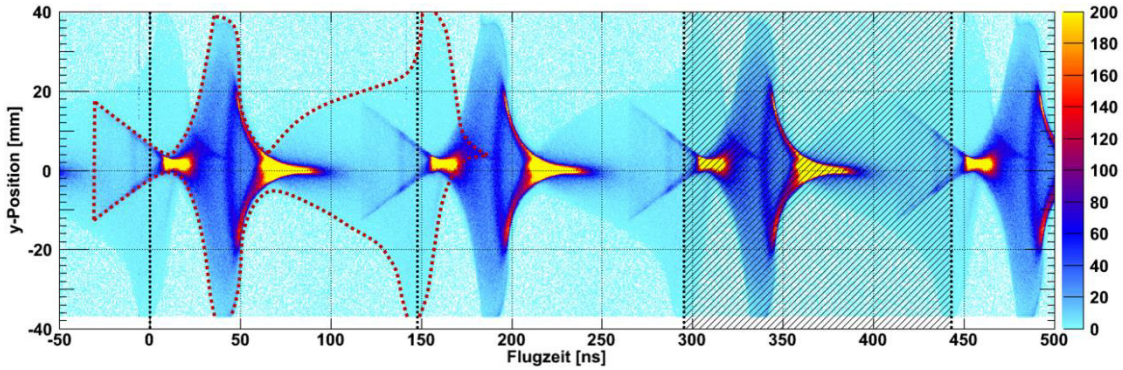


Abbildung 5.39: Flugzeit-Ort-Spektrum (|x| < 3 mm). Die schwarzen gestrichelten Linien markieren die einzelnen Bunchmarker (alle 147.64 ns). Der schraffierte Bereich ist die Flugzeitverteilung, die dem Bunchmarker bei 0 ns zugeordnet ist. Da die durch ein Photon verursachte Flugzeitverteilung (rot umrandet) breiter als 147.64 ns ist, kommt es zu einer Überlappung der Verteilungen.

Die Wahrscheinlichkeit dafür lässt sich abschätzen, indem man die Wahrscheinlichkeit für zwei aufeinanderfolgende Photonen-Bunches mit dem experimentell abgeschätzten Anteil[94] der Elektronen aus einem vorherigen Photonen-Bunch im Einzelelektronenspektrum multipliziert:

$$\sigma_{Doppel,2Bunch} = (R_{Einzel}/R_{Bunchmarker})^2 \times \rho$$

ρ: Experimentell abgeschätzter Anteil aus vorherigen Bunch = 2.79%

$R_{Bunchmarler}$: Repetitionsrate Synchrotron Soleil im 8-Bunch Mode = 6,77 MHz

Die sich daraus ergebende Doppelereignisrate ist in Abbildung 5.40 dargestellt.

Betrachtet man die beiden abgeschätzten Doppelereignisraten gegenüber der experimentell beobachteten Doppelereignisrate (siehe Abbildung 5.40), erkennt man, dass die durch die Dunkelrate oder zwei aufeinanderfolgende Photonen-Bunches (2Bunch) erzeugte Doppelereignisrate keinen wesentlichen Beitrag[95] zu der gemessenen Doppelereignisrate liefert. Für die weitere Betrachtung werden diese beiden Beiträge daher vernachlässigt.

[94] Der Schwanz der langsamen Elektronen führt zu einer Häufung der Events von circa 50% im betroffenen Bereich. Schätzt man diesen Bereich geometrisch großzügig durch einen 10mm Durchmesser großen Zylinder über das gesamte Flugzeitfenster ab, liegt deren Anteil bei ca. 3% ($= \frac{0{,}5\times(5mm^2\times\pi\times 20ns)}{(40mm^2\times\pi\times 20ns)}$).

[95] Unterhalb von 2000 Hz sind die Raten, die aus der Dunkelrate und 2 Photonen-Bunches im Energiefenster entstehen, eine Größenordnungen kleiner als die experimentell beobachteten Raten.

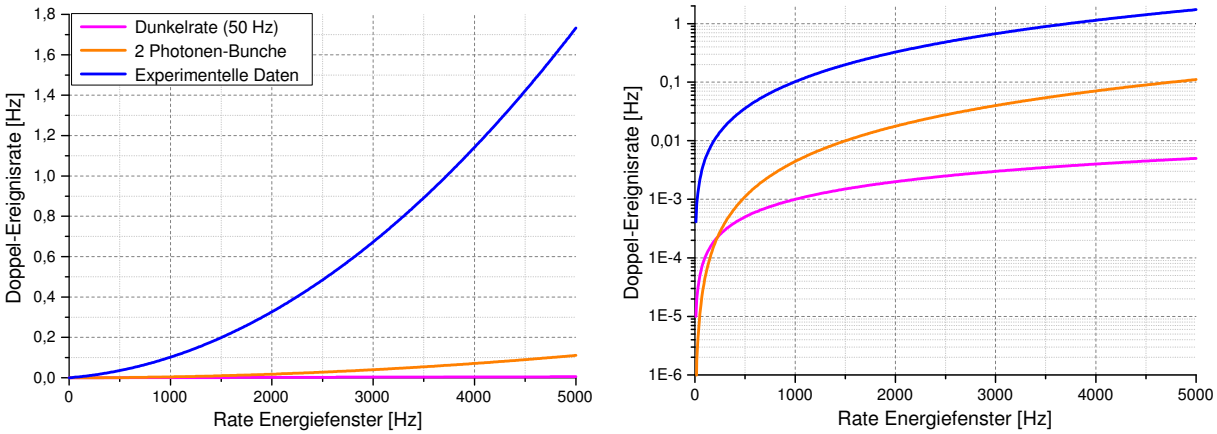


Abbildung 5.40: Abgeschätzter unkorrelierter Untergrund aus Dunkelrate (angenommen 50Hz- Magenta) und aus zwei aufeinanderfolgenden Photonen-Bunches (Orange) zusammen mit der experimentell beobachteten Doppel-Ereignisrate (Blau), welche mit einem sogenannten Ratenscan siehe Abbildung 5.41 ermittelt wurde.

Zwei Einfach-Photoemissions-Prozesse aus demselben Photonen-Bunch (2γ→2e)

Um einen exponentiellen Anstieg der Doppelereignisrate zu erklären, bleibt der unkorrelierte Untergrund aus zwei Einfachphotoemissions-Prozessen aus demselben Photonen-Bunch (*1Bunch*). Dazu kann man sich überlegen, dass die Doppelereignisrate der echten Elektronenpaare R_{wahr} linear mit der Intensität pro Photonen-Bunch I_{photo} anwachsen muss:

$$R_{wahr} \propto \sigma_{++} \times \Omega \times \Omega \times \Delta_{12} \times I_{photon}$$

σ_{++}	Wirkungsquerschnitt Doppelphotoemission
Ω	Detektionswahrscheinlichkeit für einzelnes Elektron (Akzeptanzwinkel, Energiefenster, Detektoreffizienz usw.)
Δ_{12}	Detektionswahrscheinlichkeit für zwei Elektronen mit einem Detektor (Detektortotzeit usw.)
I_{photon}	Photonen Intensität

Die Doppel-Ereignisrate der falschen Elektronenpaare R_{falsch} wächst hingegen quadratisch mit der Intensität, da es sich dabei um zwei unabhängige Prozesse handelt:

$$R_{falsch} \propto (\sigma_+ \times \Omega \times I_{photon}) \times (\sigma_+ \times \Omega \times I_{photon}) \times \Delta_{12}$$

$$= {\sigma_+}^2 \times \Omega^2 \times \Delta_{12} \times {I_{photon}}^2$$

σ_+	Wirkungsquerschnitt Einfach-Photoemission

Trägt man das Verhältnis von Doppel- zu Einzel-Ereignissen gegen die Einfach-Elektronenrate im Energiefenster $R_{Einzel} \propto \sigma_+ \times \Omega \times I_{photon}$ auf, bekommt man einen konstanten Beitrag von den echten Elektronenpaaren und einen linearen Beitrag von den falschen Elektronenpaaren:

$$\frac{R_{wahr}}{R_{Einzel}} \propto \frac{\sigma_{++} \times \Omega \times \Omega \times \Delta_{12} \times I_{photon}}{\sigma_+ \times \Omega \times I_{photon}} = \frac{\sigma_{++} \times \Omega \times \Delta_{12}}{\sigma_+} = konstant$$

$$\frac{R_{falsch}}{R_{Einzel}} \propto \frac{\sigma_+ \times \Omega \times I_{photon} \times \sigma_+ \times \Omega \times I_{photon} \times \Delta_{12}}{\sigma_+ \times \Omega \times I_{photon}}$$

$$= \sigma_+ \times \Omega \times I_{photon} \times \Delta_{12} = \Delta_{12} \times R_{Einzel}$$

Das Verhältnis von Doppel- zu Einzel-Ereignissen abhängig von der Einfach-Elektronenrate im Energiefenster ist in Abbildung 5.41 gezeigt. Der Schnittpunkt zwischen einer Geraden (Fit) durch die experimentellen Messpunkte und der Y-Achse gibt den Anteil der potentiell echten Doppelphotoemission prozentual zu den aufgezeichneten Elektronen im Energiefenster an (0,00235 %)[96] an. Der unkorrelierte Untergrund macht demnach bereits bei einer Rate im Energiefenster von 100 Hz (entspricht einer Aufnahmerate von ca. 400 Hz der Einzel-Elektronen) einen Anteil von 50% der Doppel-Ereignisse aus.

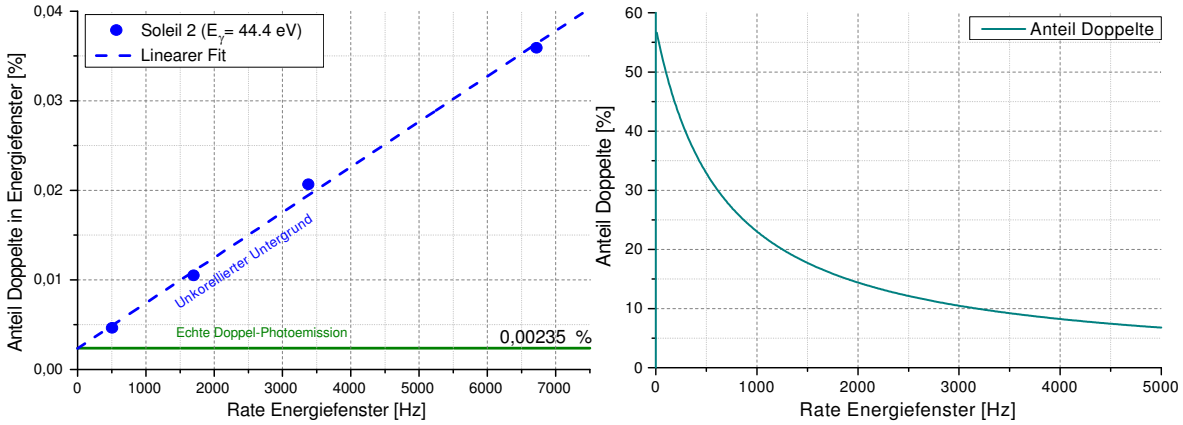


Abbildung 5.41: Links) Im Ratenscan (hier für SOLEIL 2 gezeigt) wird das Verhältnis der Doppelereignis-Rate zur Einzel-Rate im selben Energiefester (16.5 – 19.5 eV), abhängig von der Einzel-Rate aufgetragen. Der Anteil der echten Doppelereignisse liegt demnach bei nur 0.00235 % der Einzelereignisse. Rechts) Das Verhältnis der echten Doppelphotoemission (Grün) zum unkorrelierten Untergrund (Blau gestrichelt) aus dem Ratenscan links.

Zusammengefasst lassen sich die einzelnen Komponenten der Doppelereignisse abhängig von der Einzel-Elektronenrate im Energiefenster auftragen (siehe Abbildung 5.42). Gezeigt ist auch der theoretisch maximale Untergrund aus zwei Photonen im selben Bunch bei angenommener Null-Detektortotzeit[97].

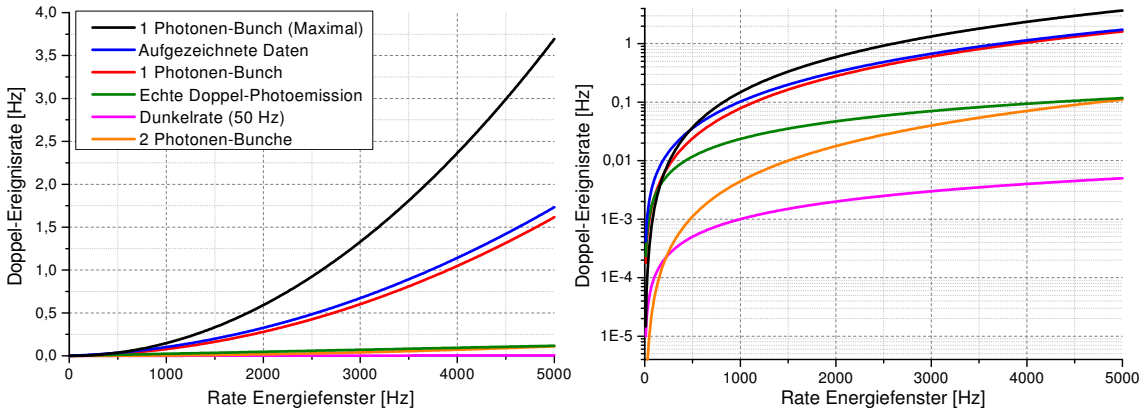


Abbildung 5.42: Alle unterscheidbaren Beiträge zur Doppelereignisrate, abhängig von der Aufnahmerate im Energiefenster.

[96] Anschaulich sind, wenn die Rate im Energiefenster gegen Null geht, keine unkorrelierten Doppel-Ereignisse mehr möglich. Der übrigbleibende Anteil kann also korrelierten Doppel-Ereignissen, die durch ein einzelnes Photon erzeugt wurden, zugeschrieben werden.

[97] Die Wahrscheinlichkeit, dass zwei Photonen im selben Bunch ein Elektron auslösen, ist das Quadrat des Einzelwirkungsquerschnitts ($R_{Einzel}/R_{Bunchmarker}$): $\sigma_{2Bunch} = (R_{Einzel}/R_{Bunchmarker})^2$. Die erwartete Doppel-Ereignisrate ergibt sich damit zu $\sigma_{2Bunch} * R_{Bunchmarker}$.

Zu beachten ist, dass die hier vorgestellte Untersuchung des unkorrelierten Untergrunds und der echten Doppelphotoemission nur beschränkt gültig ist und nur als grobe Abschätzung für die eigentlichen Messungen dienen kann. Dies liegt daran, dass der Anteil der echten Doppelphotoemission stark von dessen Lage im gewählten Energiefester abhängt. Erhöht man die Photonenenergie bei festem Energiefenster, wird der Anteil aufgrund der Doppelphotoemissions-Verteilung (siehe Abbildung 5.49) exponentiell erhöht. Zudem wurden bei diesem Experiment verschiedene Proben und Probenarten untersucht (Kristalle und dünne Filme), deren Doppelphotoemissions-Eigenschaften sich möglicherweise stark voneinander unterscheiden können.

Eine weitere mögliche Fehlerquelle bei der Untersuchung des unkorrelierten Untergrunds sind systematische Fehler in der ADC-Doppelpuls-Analyse. Durch den Einsatz der in *4.1.2 Doppelpulserkennung* beschriebenen Doppelfilter konnte die Anzahl der fälschlich rekonstruierten Elektronen allerdings soweit reduziert werden, dass sie keine Rolle mehr spielen sollten. Die Funktion der Doppelfilter wurde dabei mit den eventgemixten Daten kontrolliert.

Radialsymmetrie

Für DPE-Messungen ist nur die in 5.2.2 *Qualität der Daten* beschriebene globale Energieauflösung relevant. Diese ist allerdings, da bei den meisten DPE-Messungen scharfe Strukturen (Fermikante oder Bismuth-Innerschalenzustände) in den Spektren fehlen, nur schwer nachträglich einzustellen. Eine Fehleinstellung, wie in Abbildung 5.43 demonstriert, kann so nicht mehr unmittelbar erkannt werden. Man ist deshalb stark auf eine von vornherein symmetrische Abbildung des Spektrometers, wie in 5.2.1 *Einstellung und Kalibrierung* beschrieben, angewiesen. Dabei hat sich experimentell bestätigt, dass eine beschleunigende Linseneinstellung (RR < 1) deutlich robuster ist und eine Fehleinstellung dadurch unwahrscheinlicher wird. Dies war auch einer der Gründe, weshalb mit einem beschleunigenden Linsenmodus (Ekin 18/Epass 35) gemessen wurde, obwohl die lokale Energieauflösung damit geringer ist.

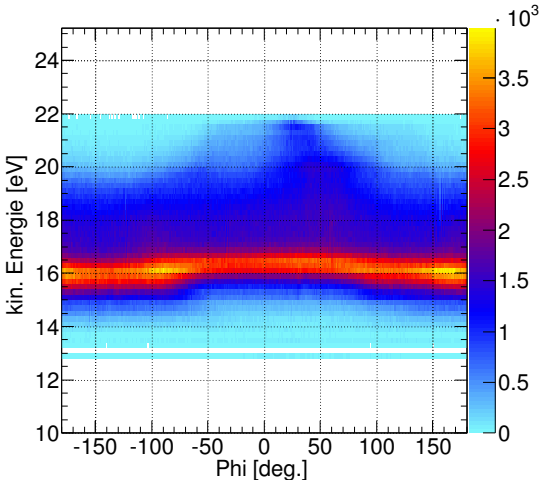


Abbildung 5.43: Gleiche Messung wie in Abbildung 5.30 auf Seite 118, bei der ein falscher Mittelpunkt (2 mm x-Offset) gewählt wurde. Anhand des Bi-Innerschalenzustands ist eine falsche Einstellung einfach zu erkennen.

Spektrometereigenschaften

Wie im Abschnitt 3.5 *Spektrometer* beschrieben, ist der Akzeptanzwinkel des Spektrometers (bzw. die Transmission) nicht über das gesamte abgedeckte Energiefenster konstant, sondern hängt von der kinetischen Energie der Elektronen ab (siehe Abbildung 5.44 links). Dadurch ist der Akzeptanzwinkel für die Summenenergie ebenfalls energieabhängig und ergibt sich als eine Art Selbstfaltung des Akzeptanzwinkels für einzelne Elektronen. Dies führt nicht direkt zu einer Verschlechterung der Qualität der Daten, jedoch muss diese Tatsache

bei der Interpretation der Daten stets berücksichtigt werden. In Abbildung 5.44 (Mitte und Rechts) ist der Einfluss des energieabhängigen Akzeptanzwinkels für zwei typische DPE-Spektren normiert aufgetragen:

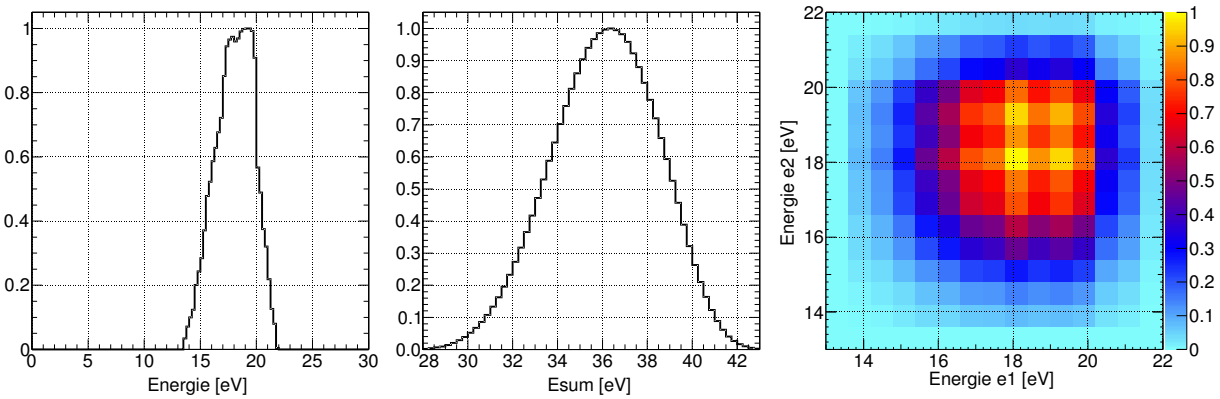


Abbildung 5.44: Simulation des Akzeptanzwinkels (normiert auf Eins) bzw. Effizienz und die Auswirkungen in typischen Spektren für den Linsenmodus Ekin 18 / Epass 35. Links) Akzeptranzwinkel abhängig von der kinetischen Energie. Mitte) Auf Eins normierte Effizienz für die Summenenergie. Rechts) Auf Eins normierte Effizienz im E1-gegen-E2-Spektrum.

Um die energieabhängige Transmission des Spektrometers wieder auszugleichen, können die im Folgenden beschriebenen Akzeptanzwinkelkorrekturen automatisch angewendet werden.

Akzeptanzwinkelkorrektur

Der energieabhängige Akzeptanzwinkel des Spektrometers ist durch die Simulation bekannt. Wenn man eine isotrope Emissionsrichtungsverteilung der Elektronen annimmt, wird es möglich, diesen wieder auszugleichen bzw. zu korrigieren. Dazu werden, wie in Abbildung 5.45 gezeigt, die Datenpunkte mit dem Kehrwert des normalisierten energieabhängigen Akzeptanzwinkels des Spektrometers multipliziert:

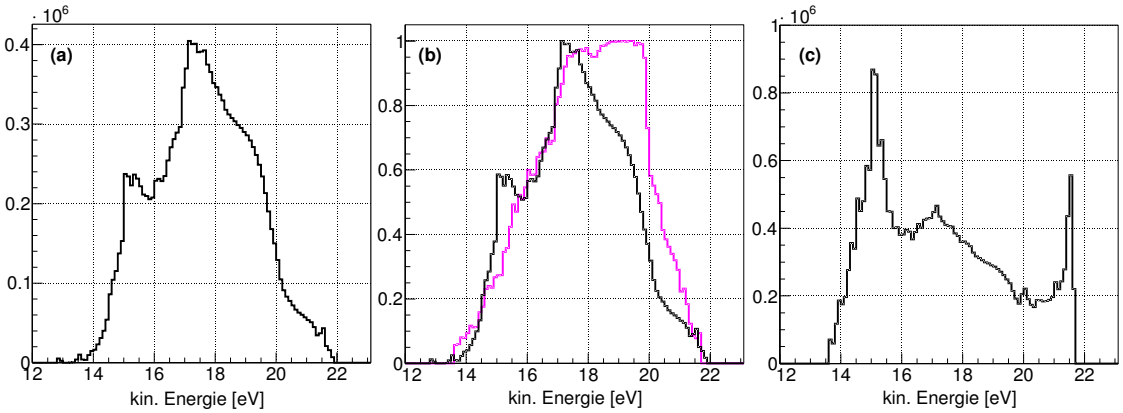


Abbildung 5.45: a) Die aufgezeichneten Daten. b) Die aufgezeichneten Daten (Schwarz) und der simulierte Akzeptanzwinkel (Pink) jeweils auf Eins normiert. c) Die akzeptanzwinkelkorrigierten Daten, in welchen ein Bismuth-Innerschalenzustand nun deutlicher zu erkennen ist.

Bei der Anwendung dieser Korrektur sind jedoch mehrere Punkte zu berücksichtigen. Die erste Annahme dieser Korrektur, dass die Elektronenemission von der Probe isotrop in alle Richtungen erfolgt, ist nicht korrekt, weshalb sie nur als Näherung betrachtet werden darf. Zweitens verstärkt diese Korrektur nochmal Fehler in der Kalibrierung. Dies bedeutet, dass Abweichungen von Simulation und Messung auch bei homogenen Daten zu Artefakten führen können. Zudem kann es an den

Randbereichen aufgrund der geringen Statistik leicht zu Fehlern kommen (siehe Abbildung 5.45 (c) bei ca. 21.5 eV).

Eine äquivalente Korrektur kann auch für die Summenenergie-Spektren durchgeführt werden, wie in Abbildung 5.46 gezeigt.

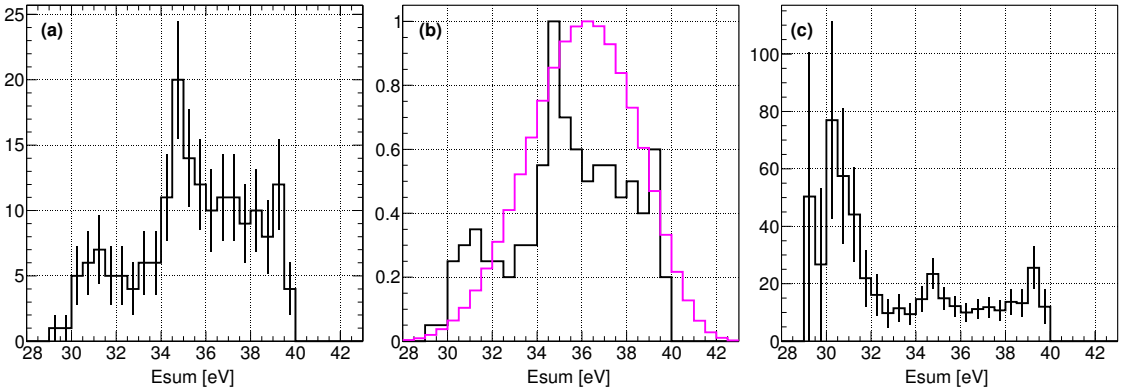


Abbildung 5.46: a) Ein aufgezeichnetes Summenenergiespektrum. b) Die aufgezeichneten Daten (Schwarz) und die simulierte Akzeptanz (Pink) des Spektrometers, jeweils auf Eins normiert. c) Die akzeptanzwinkelkorrigierten Daten.

Mit dieser Akzeptanzwinkelkorrektur können die im Vorborgenen liegenden Strukturen, wie z.B. der Bismuth-Innerschalenzustand in Abbildung 5.45, deutlicher hervorgehoben werden.

5.3.5 Messungen (Cooper-Paare)

Aus den experimentellen Bedingungen wie der begrenzten Strahlzeitdauer (2 mal knapp 7 Tage am SOLEIL), der begrenzten Probenlebenszeiten (max. ca. 24 Stunden pro Probe) sowie begrenzter Aufnahmeraten bzw. erreichbarer Statistik, sind in Kombination mit den zur Verfügung stehenden Nachweismethoden vier primäre Messszenarien entwickelt worden, mit deren die Existenz der direkten Emission von Cooper-Paaren überprüft werden soll:

- **Messungen bei sehr niedrigen Raten**
  Bei diesen Messungen soll versucht werden die direkte Emission von Cooper-Paaren anhand ihrer Signatur bei möglichst kleinem unkorrelierten Untergrund direkt zu identifizieren.
- **Verschiebung der Photonenenergie**
  Messungen bei moderaten Aufnahmeraten, bei denen die echte Doppelphotoemission bzw. die direkte Cooper-Paar-Emission anhand ihres unterschiedlichen Verhaltens beim Ändern der Photonenenergie identifiziert werden soll.
- **Supraleitende und normalleitende Messungen**
  Messungen bei moderaten Aufnahmeraten, bei denen die Probe erst unterhalb und anschließend oberhalb der Sprungtemperatur gemessen wird. Änderungen in der Doppelphotoemission können dabei auf die Supraleitung, evtl. auch auf die direkte Emission von Cooper-Paaren zurückgeführt werden.
- **Messung bei hohen Raten**
  Durch eine höhere Aufnahmerate kann die Statistik auf Kosten eines größeren unkorrelierten Untergrunds in den Daten deutlich verbessert werden. Durch den Vergleich mit eventgemixten Daten kann versucht werden, die echte Doppelphotoemission zu identifizieren.

In den folgenden Abschnitten werden die Ideen hinter den einzelnen Messszenarien noch einmal genauer erklärt und der jeweils Beste zur Verfügung stehende Datensatz vorgestellt. Eine Übersicht über sämtliche Messungen am SOLEIL (1 + 2) ist im Anhang A.5 *Aufgenommene Messungen* ab Seite 165 zu finden.

5.3.5.1 Messung bei sehr niedrigen Raten

Probe:	Bi2212 Kristall (Amir 1 ID: 4404)
Probentemperatur:	24.86 K
Linseneinstellung:	Ekin 18/Epass 35
Photonenenergien:	44.9 eV
Rate:	1091 Hz (Aufnahmerate), 397 Hz (Rate im Energiefenster)
Messdauer:	13 Stunden

Die Messungen bei sehr niedrigen Raten besitzen das beste Verhältnis von korrelierten Doppelphotoemissons-Ereignissen zum unkorrelierten Untergrund. Mit einer Aufnahmerate von ca. 1000 Hz, was einer Rate von 400 Hz im Energiefenster entspricht, sollte der Anteil der korrelierten Ereignisse nach dem Ratenscan bei ca. 35% liegen. Insgesamt werden nach dem Ratenscan (Abbildung 5.41) nach 13 Stunden Messdauer insgesamt 360 korrelierte und 560 unkorrelierte Doppel-Ereignisse im Energiefenster (16.5 eV – 19.5 eV) erwartet. Die Messung (Abbildung 5.47) bestätigt hinsichtlich der Gesamtzahl der aufgenommenen Doppelereignisse mit 1149 Einträgen diese Erwartung (920) hinreichend, vor allem wenn man beachtet, dass die Photonenenergie bei der Messung 0.4 eV über der Photonenenergie im Ratenscan liegt (44.5 eV).

Es stellt sich zunächst die interessante Frage, ob sich bei diesen extremen Einstellungen die Doppelphotoemissions-Fermikante ($E_{FD} = E_\gamma - 2 \times \Phi_{WF}$) in den Spektren direkt erkennen lässt. Dazu sind in Abbildung 5.47 die beiden kinetischen Energien der Elektronen gegeneinander sowie deren Summenenergie gezeigt.

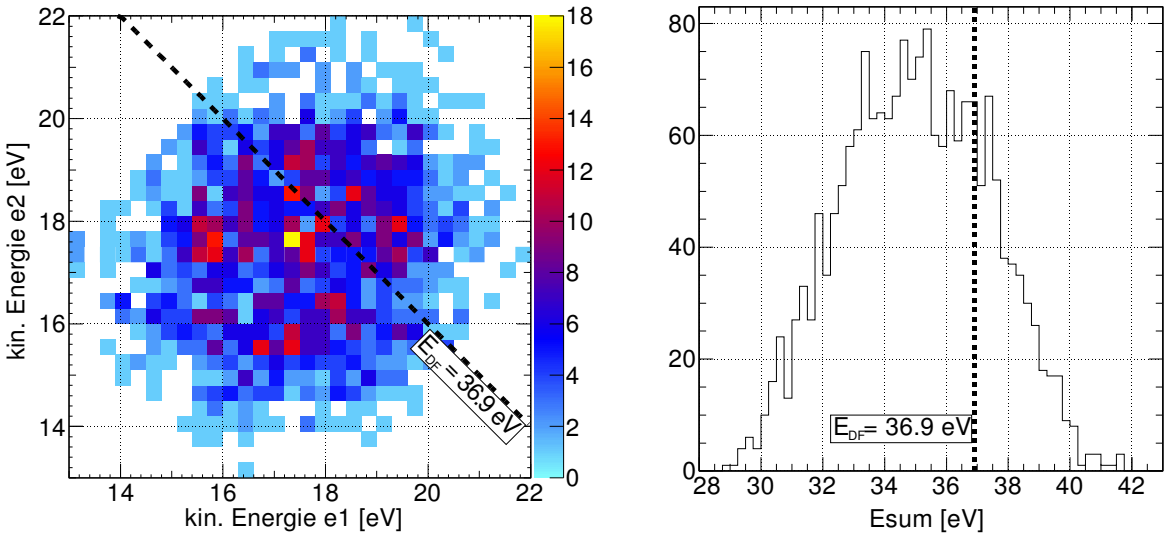


Abbildung 5.47: Im E1-gegen-E2-Spektrum (links) oder im Summenenergie-Spektrum (rechts) ist keine Kante in der Nähe der erwarteten DPE-Fermikante ($E_{DF} = 44.9\ eV - 2*\Phi_{WF} = 36.9\ eV$) zu erkennen.

Wie man erkennt, ist die DPE-Fermikante in den beiden Spektren nicht direkt auszumachen. Als weiteres Hilfsmittel können die aufgezeichneten Daten, wie bei den Nachweismethoden beschrieben, mit eventgemixten Daten verglichen werden.

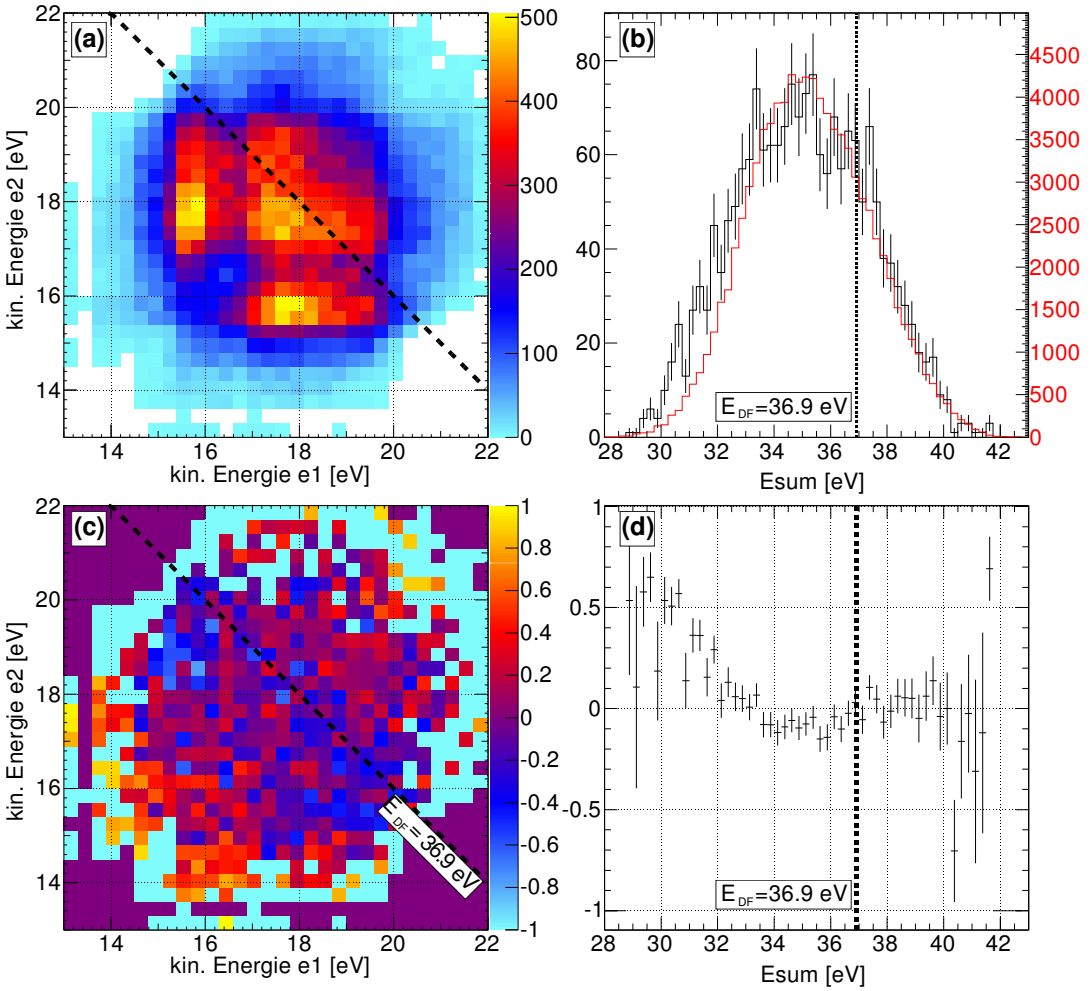


Abbildung 5.48: a) Eventgemixtes E1-gegen-E2-Spektrum. b) Schwarz: das aufgezeichnete Summenenergie-Spektrum; Rot: die eventgemixte Summenenergie. Darunter in c) und d) jeweils die gewichteten Differenzspektren zwischen aufgezeichneten und eventgemixten Daten.

Eine DPE-Fermikante ist im Vergleich (siehe Abbildung 5.48 c) und d)) mit den eventgemixten Daten nicht zu erkennen. Allerdings fällt ein deutlicher Anstieg der Doppelphotoemission ca. 3 eV unterhalb der DPE-Fermikante auf. Ein solcher Anstieg deutlich unterhalb der DPE-Fermikante könnte mit dem Einsetzen der Doppelphotoemission aus dem deutlich ausgeprägteren CuO_2-Band von Bi2212 erklärt werden. In Abbildung 5.49 ist eine Simulation zur Abschätzung der Doppelphotoemission als Ein-Photon-Streuelektronen gezeigt (eine Art Faltung der Zustandsdichte).

Demnach ließe sich der beobachtete Anstieg etwa 3 eV unterhalb von E_{FD} qualitativ mit den erwarteten Ein-Photon-Streuelektronen erklären. Zur Überprüfung, ob dieser Anstieg tatsächlich auf einen Ein-Photonen-Ursprung zurückzuführen werden kann, wurde die Photonenenergie, wie in den Nachweismethoden beschrieben, bei anderen Messungen variiert und dadurch bestätigt (Details siehe 5.3.5.2 *Messung bei moderaten Raten und Änderung der Photonenenergie*).

Betrachtet man die Resultate der einfachen Simulation der Ein-Photon-Streuelektronen in Abbildung 5.49, liegt die DPE-Fermikante mehrere Größenordnungen (ca. 4) unterhalb des beobachteten Anstiegs bei 34 eV. Ein Nachweis der DPE-Fermikante liegt demnach auf dem Niveau einer Abweichung von weniger als 0.5×10^{-4} zum eventgemixten Untergrund, was wiederum ca. 3 Größenordnungen unterhalb des durchschnittlichen Fehlers im gewichteten

Differenzen-Spektrum (0.05) liegt. Ein Nachweis der DPE-Fermikante ist somit also bei der geringen Statistik nicht möglich.

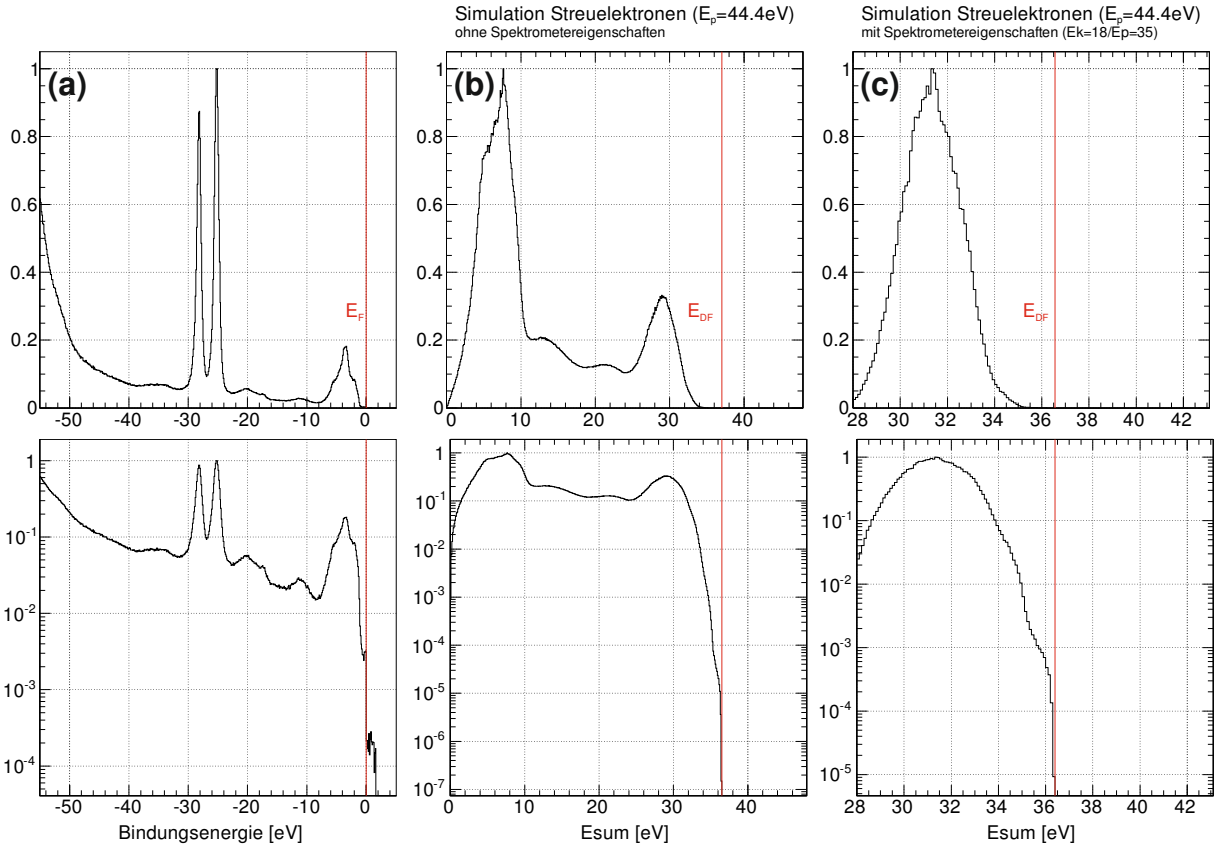


Abbildung 5.49: Simulation der Ein-Photon-Streuelektronen: a) Ein experimentell aufgezeichnetes Photoemissionsspektrum von Bi2212 (entnommen aus [Voss11]) dient als Näherung der Zustandsdichte (DOS). b) Die Energie eines Photons (44.4 eV) wird zufällig unter zwei Elektronen aufgeteilt und jeweils mit der Zustandsdichte gewichtet. c) Die gleiche Simulation wie in (b), jedoch wird jedes Elektron zusätzlich mit dem energieabhängigen Akzeptanzwinkel des Spektrometers gewichtet (Linseneinstellung: Ekin 18/Epass 35).

Das Hauptaugenmerk dieses Experiments lag jedoch nicht im Nachweis der DPE-Fermikante sondern in dem Versuch, die direkte Emission von Cooper-Paaren durch ein einzelnes Photon zu überprüfen. Dazu eignet sich, wie bei den Nachweismethoden beschrieben, besonders das Esum-gegen- $Psum_{parallel}$-Spektrum, in dem sich die theoretisch vorhergesagte direkte Emission von Cooper-Paaren deutlicher vom unkorrelierten Untergrund abzeichnen sollte.

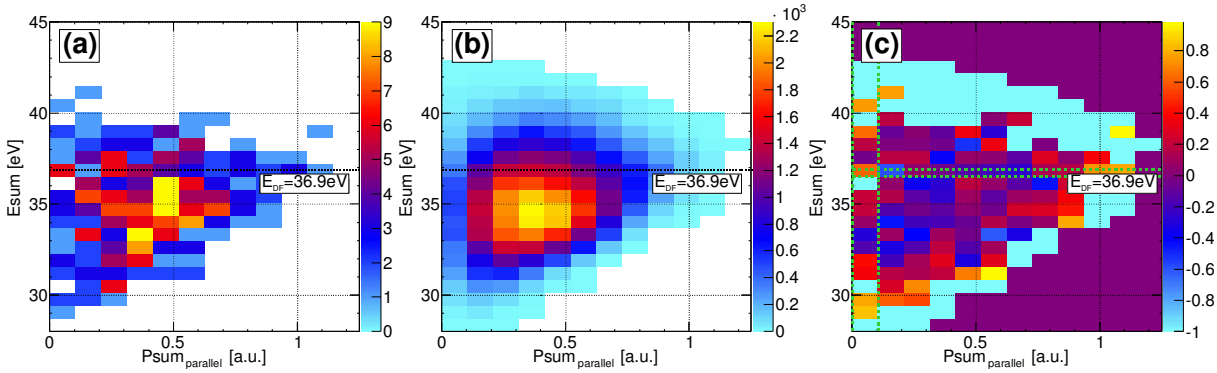


Abbildung 5.50: Esum-gegen-$Psum_{parallel}$-Spektren - a) Aufgezeichneten Daten. b) Eventgemixten Daten. c) Das dazugehörige gewichtete Differenzen-Spektrum [(a-b)/(a+b)]. Die grünen Linien im Differenzspektrum markieren die relevanten Bereiche für die Identifikation der direkten Emission von Cooper-Paaren.

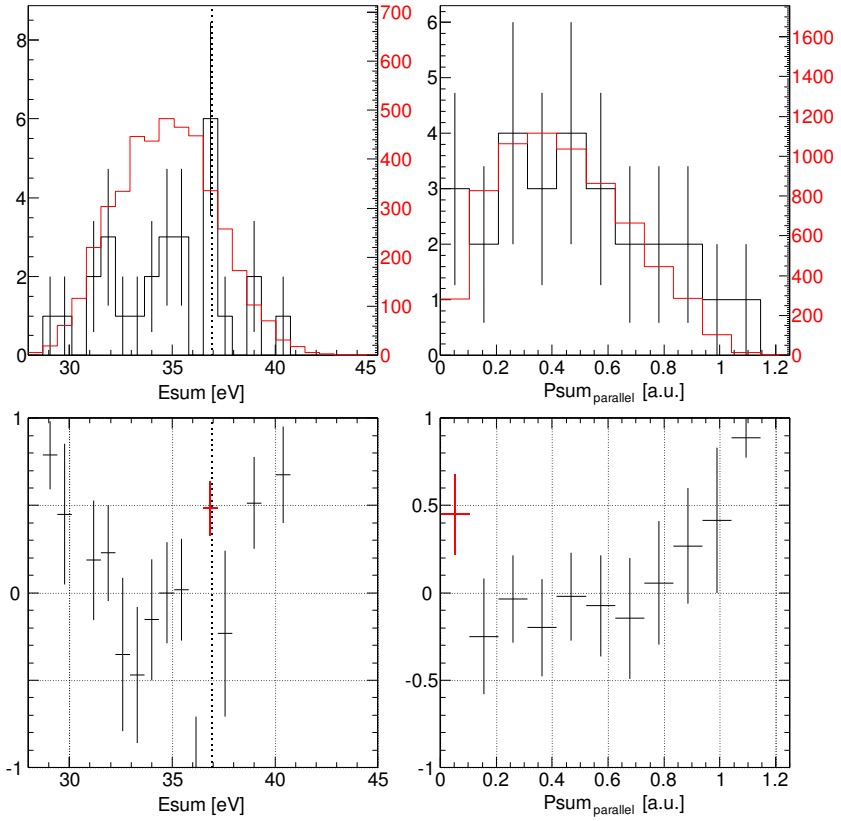


Abbildung 5.51: Die Esum- und $Psum_{parallel}$-Spektren (Schwarz: Daten; Rot: eventgemixte Daten) für die in Abbildung 5.50 markierten Bereiche (Esum mit Psum < 0.1 a.u., Psum mit 39.4 eV ≤ Esum ≤ 39.9eV), sowie die dazugehörigen gewichteten Differenzspektren darunter. Die roten Kreuze in den Differenzspektren markieren die für die direkte Emission von Cooper-Paaren relevanten Stellen.

In Abbildung 5.50 sind die entsprechenden Esum-gegen-$Psum_{parallel}$-Spektren (Daten/Eventgemixte/gewichtete Differenz) und in Abbildung 5.51 die dazugehörigen eindimensionalen Projektionen der Summenenergie- und Summenparallelimpulse gezeigt. Auf den ersten Blick ist zwar ein scheinbarer Anstieg genau bei der erwarteten Stelle (Esum = E_{DF} und $Psum_{parallel}$ = 0) zu erkennen, aufgrund der geringen Statistik ist es jedoch nicht möglich, von einem signifikanten Anstieg zu sprechen[98].

Abschließend kann für Messungen mit geringen Raten (< 1000 Hz) festgehalten werden, dass die Statistik, die während der Lebensdauer einer Probe in diesem Experiment gesammelt werden kann, nicht ausreichend ist, um statistisch signifikante Aussagen treffen zu können.

[98] In den Spektren erkennt man scheinbar einen wie von der Theorie vorhergesagten Anstieg der Doppelphotoemission an der DPE-Fermikante bei entgegengesetztem Parallelimpuls ($Psum_{parallel}$ < 0.1 a.u.). Dies wird auch durch die Gauß'sche Fehlerfortpflanzung bestätigt, wonach der Anstieg ca. 2-Sigma signifikant oberhalb von Null liegt. Allerdings müssen bei der extrem geringen Statistik mehrere Aspekte berücksichtigt werden. Zum einen ist die hier verwendete Fehlerrechnung („Wurzel-N-Gesetz", also Poisson-Verteilung als Gauß-Normalverteilung genähert) bei solch geringen Statistiken (Einträge < 30) nicht mehr korrekt (Erklärung siehe A.4 *Fehlerrechnung* auf Seite 170). Benutzt man die korrekte Fehlerrechnung (Poisson), werden die Fehler im Schnitt um 15%, maximal jedoch um 30% größer als die hier angegebenen. Dies ändert jedoch qualitativ nichts an den Beobachtungen. Zum anderen muss aber auch die Kanalunterteilung (engl. *Binning*) berücksichtigt werden. Diese ist zufällig gewählt und führt im gezeigten Fall dazu, dass im Kanal bei der Doppel-Fermikante 6 Einträge zu finden sind, wohingegen sich einen Kanal darunter kein einziger Eintrag befindet. Würde man die Kanalunterteilung einen halben Kanal versetzt wählen, befinden sind in beiden Kanälen je 3 Einträge befinden und es ist wäre keine Spur von einem Anstieg mehr zu erkennen.

5.3.5.2 Messung bei moderaten Raten und Änderung der Photonenenergie

Probe:	Bi2212 Film (Amit 2 ID: 4204, 4205)
Probentemperatur:	33.1 K
Linseneinstellung:	Ekin 18/Epass 35
Photonenenergien:	44.4 / 45.4 eV
Rate:	1500 Hz (Aufnahmerate), 545 Hz (Rate im Energiefenster)
Messdauer:	ca. 7h je Datensatz

Bei Messungen, in denen die Photonenenergie variiert wurde (Δ_{Photon}), kann das unterschiedliche Verhalten von unkorrelierten ($\Delta_{sum} = 2 \times \Delta_{Photon}$) und korrelierten ($\Delta_{sum} = \Delta_{Photon}$) Doppelereignissen dazu genutzt werden, um diese voneinander zu unterscheiden (siehe 5.3.2 *Nachweismethoden*).

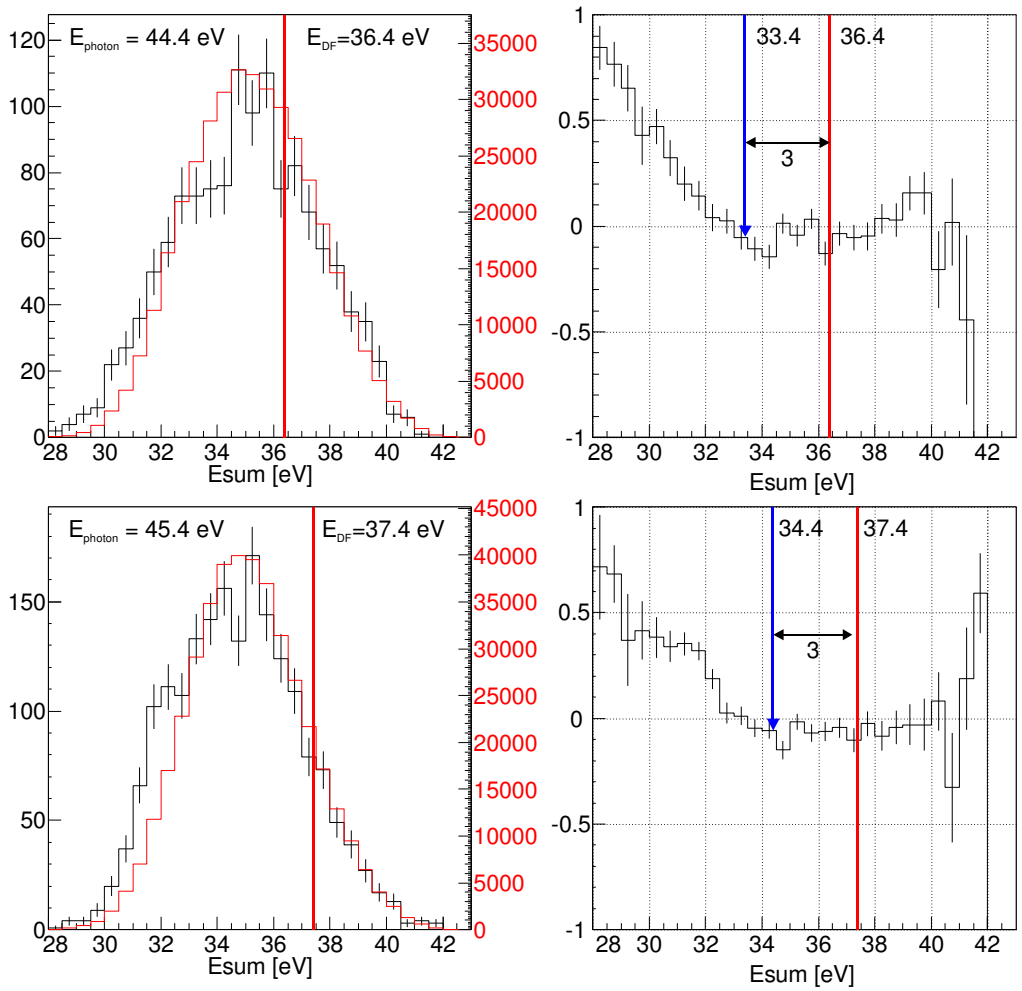


Abbildung 5.52: Zwei gemessene (Schwarz) und eventgemixte (Rot) Esum-Spektren, welche mit zwei unterschiedlichen Photonenenergien gemessen wurden (44.4 eV oben, 45.4 eV unten). Rechts davon sind die dazugehörigen Asymmetrie-Spektren gezeigt. Die roten Linien markieren die erwartete Lage der Doppel-Fermi-Kante, der blaue Pfeil befindet sich 3eV unterhalb der Fermikante.

Zwischen den beiden in Abbildung 5.52 gezeigten Messung wurde die Photonenenergie um 1 eV geändert. Wie bei Messungen mit niedrigen Raten, ist ein Anstieg etwa 3 eV unterhalb der erwarteten DPE-Fermikante zu erkennen. Ebenso ist eine Verschiebung der Anstiegskante um die einfache Änderung der Photonenenergie im Bereich 32 eV zu erkennen. Dies zeigt, dass es sich bei dem Anstieg tatsächlich um einen Ein-Photonen-Prozess (Doppelphotoemission: γ→2e) handelt. Die DPE-Fermikante selbst ist nicht auszumachen. Ebenso wenig sind deutlichen Strukturen im Spektrum zu erkennen, welche sich mit der einfachen Photonenenergieänderung verschieben.

Das dazugehörige Esum-gegen-$Psum_{parallel}$-Spektrum ist in Abbildung 5.58 unter 5.3.5.3 *Supra- und normalleitende Messungen* auf Seite 136 gezeigt.

Neben den Bi2212 Proben ist auch eine Y123 Probe mit demselben Messszenario untersucht worden:

Probe:	YBCO Kristall (Erb 1 ID: 4301, 4302)
Probentemperatur:	33.01 K
Linseneinstellung:	Ekin 18/Epass 35
Photonenenergien:	44.4 / 45.9 eV
Rate:	2000 Hz (Aufnahmerate), 727 Hz (Rate im Energiefenster)
Messdauer:	ca. 5h je Datensatz

In Abbildung 5.53 links sind die beiden, mit unterschiedlichen Photonenenergien (44.4 / 45.9 eV) aufgezeichneten Summenenergie-Spektren sowie der eventgemixte Untergrund gezeigt.

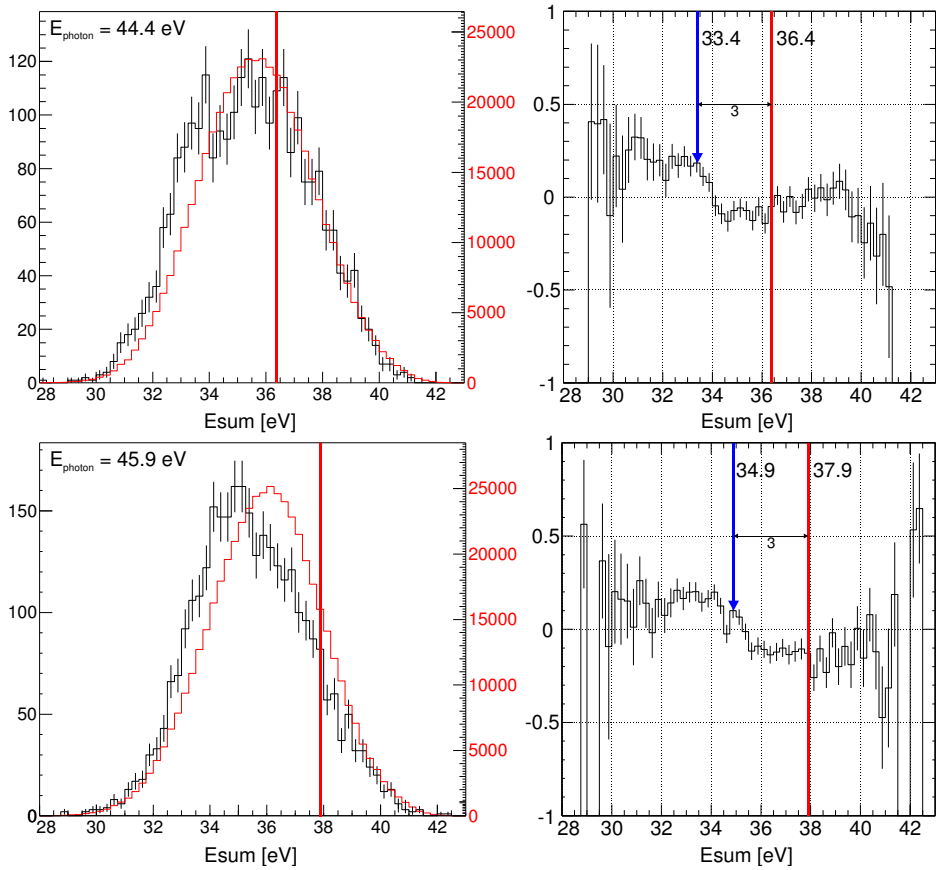


Abbildung 5.53: Zwei gemessene (Schwarz) und eventgemixte (Rot) Summenenergie-Spektren, welche mit unterschiedlichen Photonenenergien gemessen wurden (44.4 eV und 45.9 eV). Rechts davon die zugehörigen gewichteten Differenz-Spektren. Die roten Linien markieren die erwartete Lage der Doppel-Fermi-Kante, der blaue Pfeil befindet sich je 3eV unterhalb der Fermikante.

Wie man in den gewichteten Differenz-Spektren rechts erkennt, steigt ca. 3 eV unterhalb der erwarteten DPE-Fermikante die Doppelphotoemission deutlich an und verschiebt sich mit der Änderung der Photonenenergie um den einfachen Betrag. Dies lässt sich wie bei Bi2212 (vergleichbare Zustandsdichte) mit dem Einsetzen der Doppelphotoemission aus dem CuO_2-Band knapp 1 eV unterhalb der Fermikante erklären (siehe Abbildung 5.24 auf Seite 111).

5.3.5.3 Supra- und normalleitende Messungen

Probe:	Bi2212 Film (Amit 2 ID: 4204, 4208)
Probentemperatur:	33.01 / 81.87 K
Linseneinstellung:	Ekin 18/Epass 35
Photonenenergien:	44.4 eV
Rate:	2000 Hz (Aufnahmerate), 727 Hz (Rate im Energiefenster)
Messdauer:	ca. 7h je Datensatz

Beim Vergleich von Messungen unter- und oberhalb der Sprungtemperatur sollten sich sämtliche Änderungen in den Doppelphotoemission-Spektren auf die Supraleitung, evtl. auch auf die direkte Emission von Cooper-Paaren, zurückführen lassen.

Allerdings können beim Erwärmen der Probe auch neue Schwierigkeiten auftreten bzw. verstärkt werden. Zum einen kann es durch die Erwärmung der Probe und der Umgebung zu einer Verschlechterung des Vakuums kommen, was zu einer schnelleren Besetzung mit Adsorbarten führt. Andererseits kann es aufgrund von thermischen Ausdehnungen zu einer Verschiebung der Probeposition und somit auch einer Änderung der Startposition der Elektronen kommen. Da sich diese beiden Faktoren im Experiment nicht direkt quantifizieren lassen, kann stattdessen nach den zu erwarteten Auswirkungen geschaut werden. Dazu können Einzel-Elektronen-Energiespektren vor und nach der Erwärmung miteinander verglichen werden. In diesen wären aufgrund von Adsorbarten und/oder einer geänderten Startposition Abweichungen zu erwarten (siehe [Wall11]). Wie man allerdings in Abbildung 5.54 erkennt, sind lediglich kleinste Abweichungen (im Bereich 15 – 19 eV unter 2 Prozent absolut) zu beobachten. Dies deutet darauf hin, dass keine Adsorbate die Einfachphotoemission in diesem Energiebereich zu beeinflussen scheinen, sowie dass die Auswirkung einer erwarteten Verschiebung der Probe unterhalb der experimentellen Auflösung liegt.

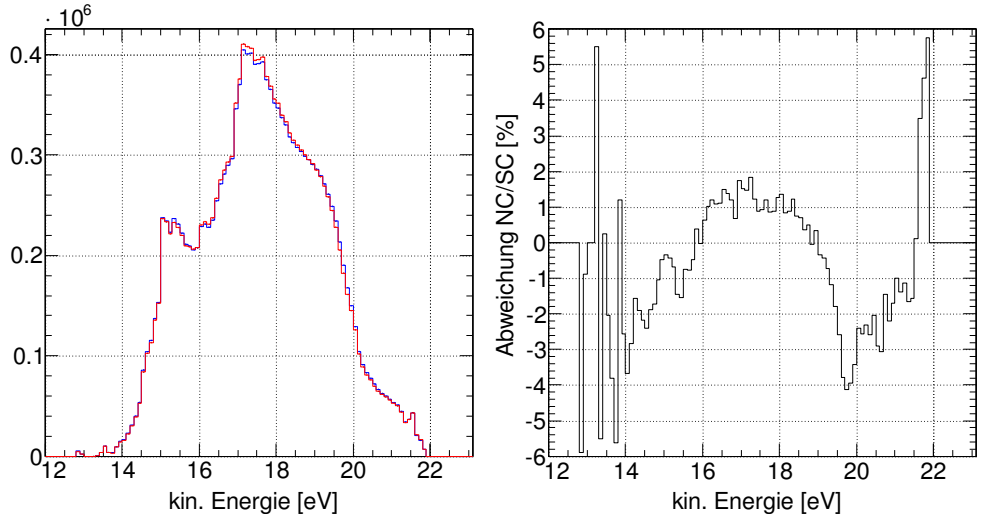


Abbildung 5.54: Links - Energiespektrum für Messung unterhalb (Blau) und oberhalb (Rot) der Sprungtemperatur. Rechts – Absolute Abweichung der beiden Messungen in Prozent. Im interessanten Bereich (15 - 19 eV) ist die Abweichung stets kleiner als 2 Prozent.

In Abbildung 5.55 sind die Summenenergie-Spektren und die gewichtete Differenz zum eventgemixten Untergrund für eine Messung oberhalb und unterhalb der Sprungtemperatur gezeigt.

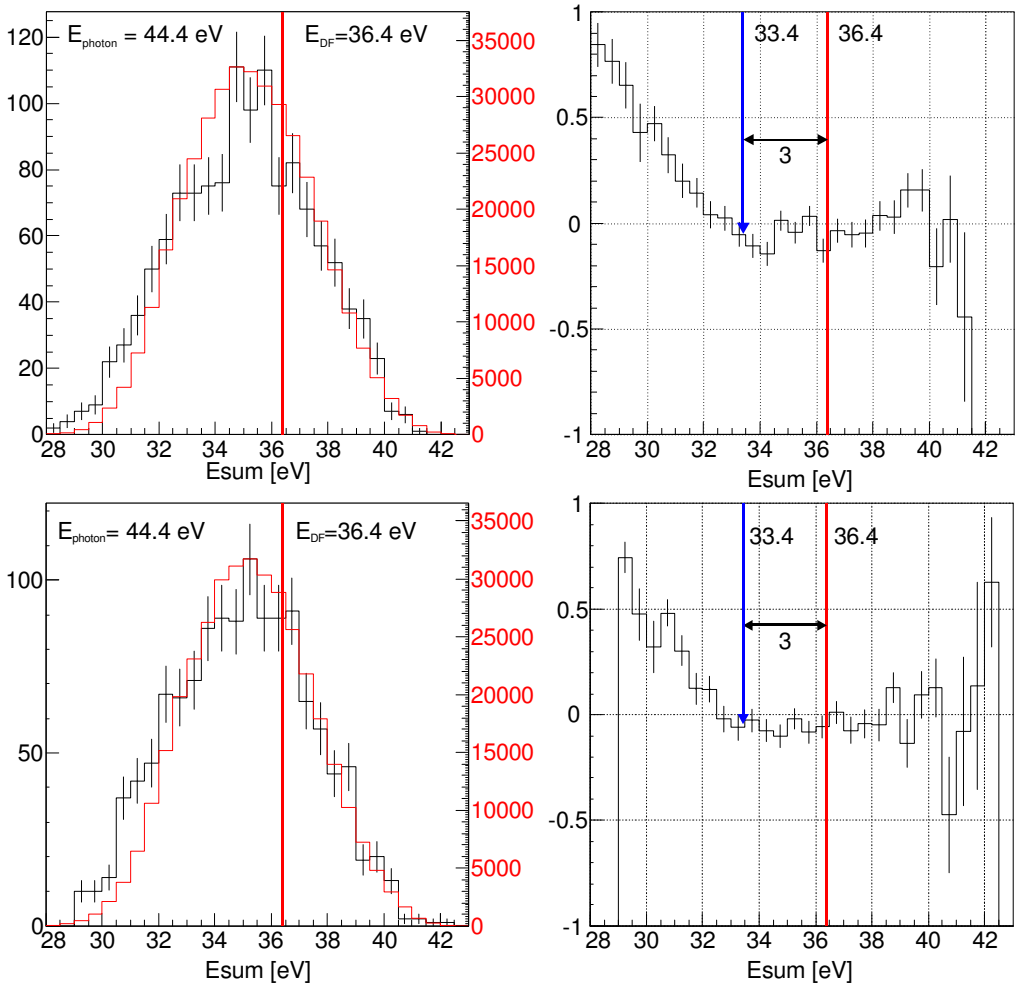


Abbildung 5.55: Summenenergie-Spektren, die unterhalb (obere Reihe) und oberhalb (untere Reihe) der Sprungtemperatur gemessen wurden.

Auf den ersten Blick scheint es eine Erhöhung zwischen 2 und 0.5 eV unterhalb von E_{DF} zu geben, welche oberhalb der Sprungtemperatur zu verschwinden scheint. Um zu überprüfen, ob diese Abweichung statistisch signifikant ist, können die Summenenergie-Spektren auch direkt miteinander verglichen werden wie in Abbildung 5.56 gezeigt.

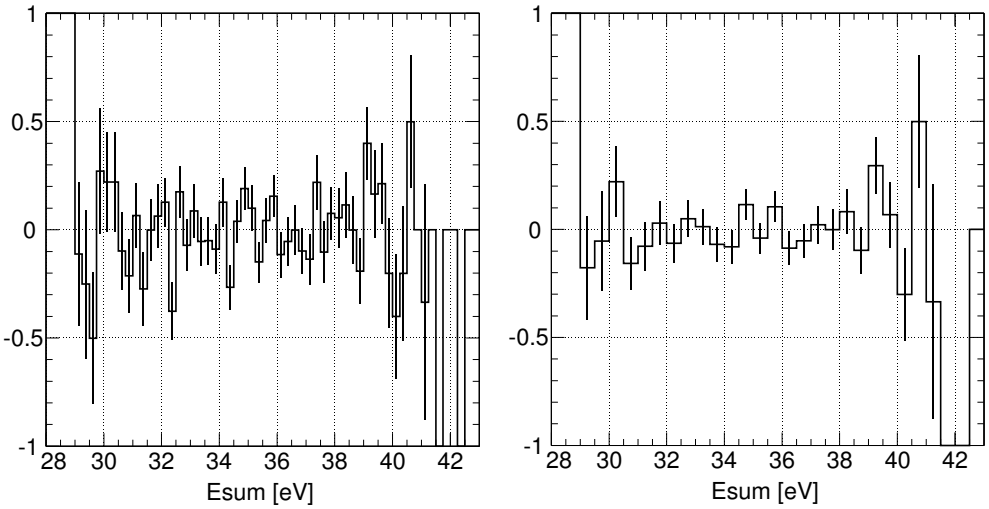


Abbildung 5.56: Summenenergie-Asymmetrie-Spektren zwischen einer Messung unterhalb und oberhalb der Sprungtemperatur. Beide Spektren unterscheiden sich lediglich in der gewählten Kanalunterteilung (Binning) voneinander.

Bei diesem Vergleich erkennt man, dass die beobachtete Abweichung nicht signifikant ist. Der Ursprung der beobachteten Erhöhung scheint am eventgemixten Untergrund zu liegen, der sich zwischen den beiden Messungen deutlich voneinander unterscheidet, was sich vermutlich wiederrum auf die kleinsten Abweichungen im Einzelenergiespektrum zurückführen lässt.

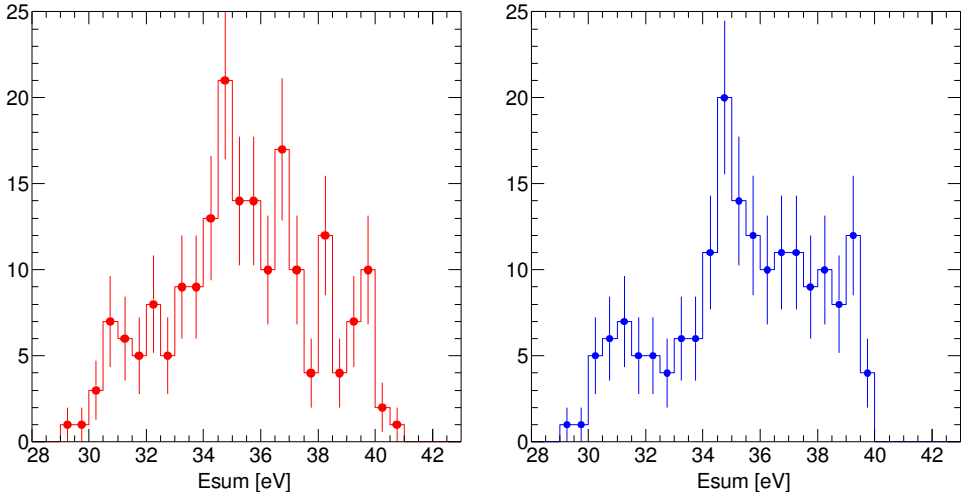


Abbildung 5.57: Esum-Spektren (ΔE_{12} < 1.5 eV) oberhalb (Rot) und unterhalb (Blau) der Sprungtemperatur. Ein Anstieg bei E_{DF} = 36,4eV (= 44,4eV – Φ_{WF}) im rechten Spektrum ist nicht zu beobachten (eher ein entgegengesetzter Effekt, welcher aber aufgrund der großen Fehler nicht signifikant ist).

Die speziell zum Nachweis der direkten Emission von Cooper-Paaren ausgelegten Esum-gegen-$Psum_{parallel}$-Spektren sind in Abbildung 5.58 gezeigt.

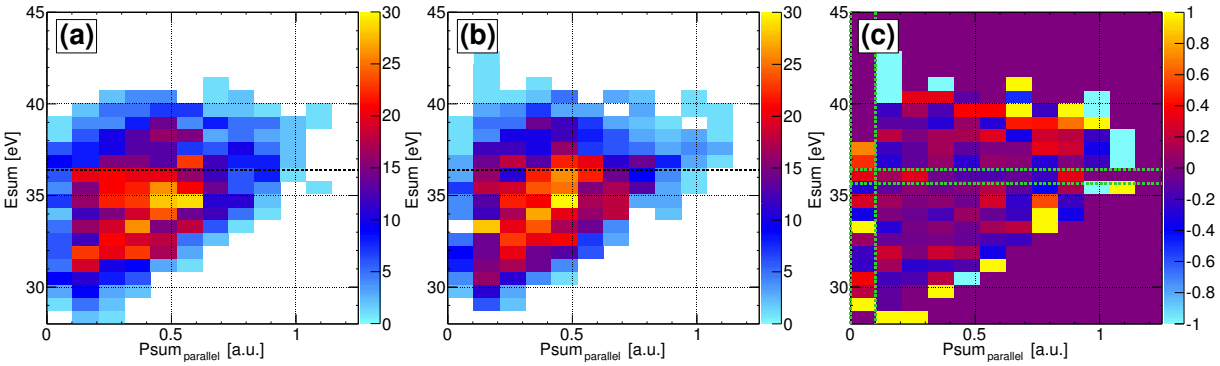


Abbildung 5.58: Esum-gegen-$Psum_{parallel}$-Spektren. a) Unterhalb der Sprungtemperatur. B) Oberhalb der Sprungtemperatur. c) Das dazugehörige gewichtete Differenzen-Spektrum [(a-b)/(a+b)]. Die grünen Linien markieren die relevanten Bereiche für die Identifizierung der direkten Cooper-Paar-Emission (siehe Abbildung 5.59).

Dabei ist keine signifikante Spur der direkten Emission von Cooper-Paaren festzustellen (< 1.5 Sigma in der Summenenergie siehe Abbildung 5.59).

Weitere Spektren zum Nachweis der direkten Emission von Cooper-Paaren, mit strengeren Bedingungen wie z.B. Esum-gegen-$Psum_{parallel}$ mit ΔE_{12} < 1eV, sind im Anhang unter A.3.1 *Supra- und normalleitende Messungen mit moderaten Raten* auf Seite 161 zu finden. Jedoch war auch mit härteren Bedingungen kein Hinweis auf die gesuchte direkte Emission von Cooper-Paaren zu entdecken.

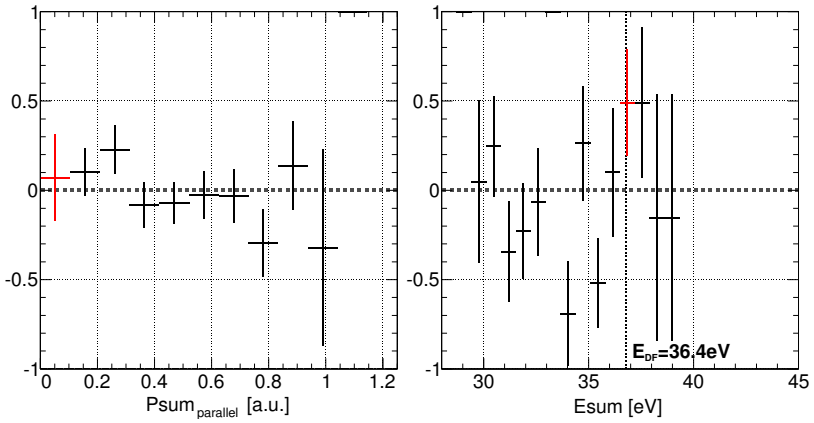


Abbildung 5.59: Projektionen der in Abbildung 5.58 markierten Bereiche (Psum mit 35.4 eV ≤ Esum ≤ 36.4 eV / Esum mit Psum ≤ 0.1 a.u.). Die Punkte, welche auf direkte Cooper-Paar Emission hindeuten würden, sind rot markiert.

5.3.5.4 Messungen bei sehr hohen Raten

Probe:	Bi2212 Kristall (Rot ID: 3400)
Probentemperatur:	31.3 K
Linseneinstellung:	Ekin 18/Epass 35
Photonenenergien:	43.9 eV
Rate:	9000 Hz (Aufnahmerate), 3600 Hz (Rate im Energiefenster)
Messdauer:	11 h

Bei Messungen mit höheren Raten kann innerhalb der Probenlebensdauer eine bessere Statistik erreicht werden, allerdings für den Preis eines schlechteren Verhältnisses von korrelierten zu unkorrelierten Doppelphotoemissions-Ereignissen. Das erwartete Verhältnis von echten (γ→2e) zu falschen (2γ→2e) Doppelereignissen liegt dabei für Messungen mit 9000 Hz bei ca. 10 %, also einen Faktor 3 geringer als bei typischen Messungen mit ca. 2000 Hz.

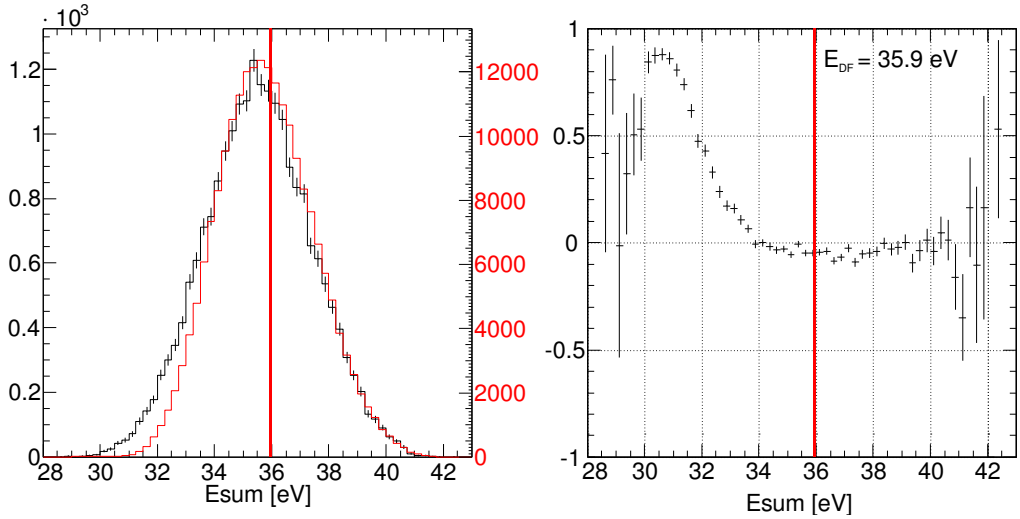


Abbildung 5.60: Links) Das Summenenergie-Spektrum für die aufgenommenen Daten (Schwarz) und die eventgemixten Daten (Rot). Rechts) Das dazugehörige gewichtete Differenzen-Spektrum.

In Abbildung 5.60 ist die Summenenergie für die aufgezeichneten und eventgemixten Daten sowie deren gewichtete Differenz voneinander gezeigt. Der bei den bisher vorgestellten Messungen beobachtete Anstieg bei niedrigeren Energien (etwa 3 eV unterhalb E_{DF}) ist wieder deutlich zu erkennen. Die DPE-Fermikante oder ein Peak (direkte Emission von Cooper-Paaren) bei der erwarteten Summenenergie (E_{DF} = 35.9 eV) ist nicht zu erkennen.

Durch die deutlich bessere Statistik ist es nun auch möglich, die Summenenergie mit einer Bedingung für gleiche Energieaufteilung (ΔE_{12} < 0.5 eV) mit ausreichender Statistik zu betrachten wie in Abbildung 5.61 gezeigt. Die DPE-Fermi-Kante oder die direkte Emission von Cooper-Paaren sind allerdings nicht auszumachen.

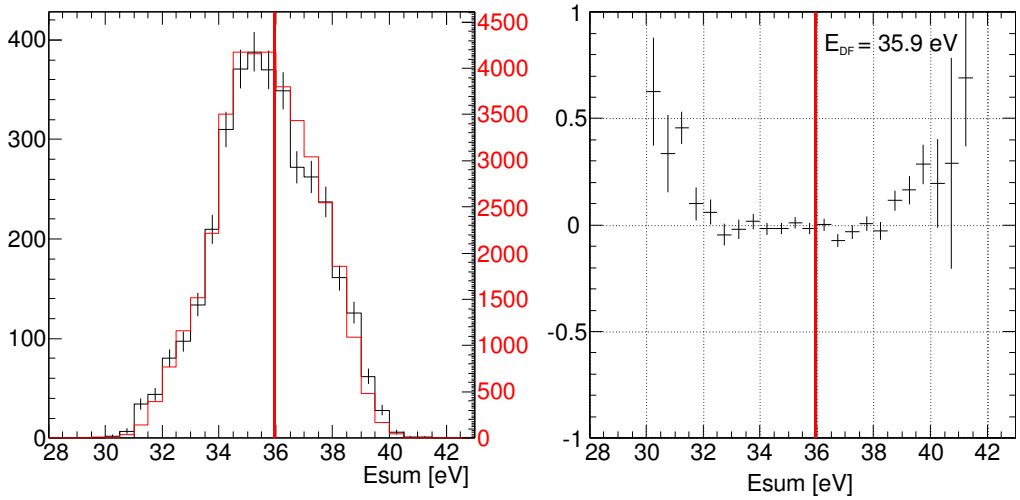


Abbildung 5.61: Gleiche Spektren wie in Abbildung 5.60, nur zusätzlich mit der Bedingung einer gleichen kinetischen Energie der beiden Elektronen (|dE| < 0.5 eV).

Das Esum-gegen-$Psum_{parallel}$-Spektrum für die direkte Emission von Cooper-Paaren ist in Abbildung 5.62. Die entsprechenden eindimensionalen Projektionen (grün markiert) in Abbildung 5.63 abgebildet.

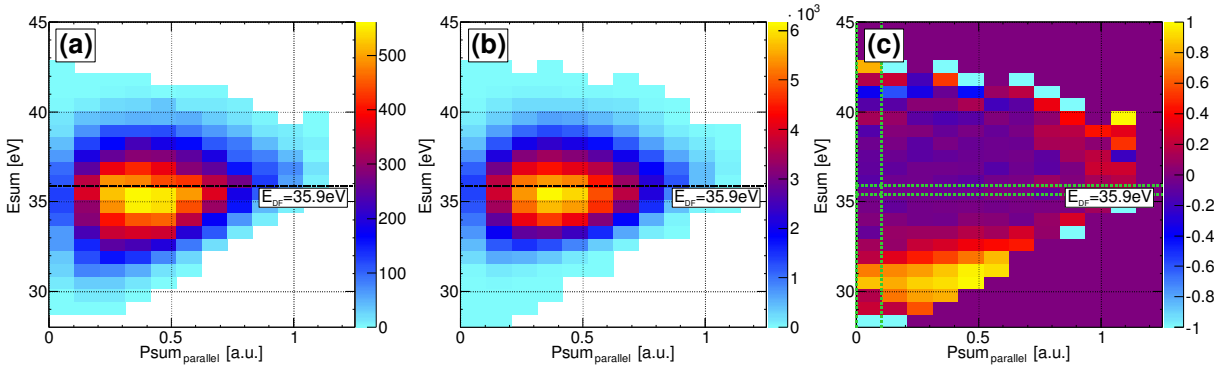


Abbildung 5.62: Esum-gegen-$Psum_{parallel}$-Spektren - a) Aufgenommenen Daten. b) Eventgemixte Daten. c) Das dazugehörige gewichtete Differenzen-Spektrum. Die grünen Linien markieren die relevanten Bereiche für die Identifizierung der direkten Cooper-Paar Emission (siehe Abbildung 5.63).

An den theoretisch erwarteten Stellen (rot markiert) ist kein signifikanter Anstieg zu erkennen.

Eine alternative Darstellung für die Korrelation der beiden Elektronen ist in Abbildung 5.64 gezeigt (Erklärung des $p'_x p'_y$-Koordinatensystems siehe Abbildung 5.1 auf Seite 96). Die verarmte Zone, in der beide Elektronen mit ähnlichen Impulsen starten, entsteht durch das

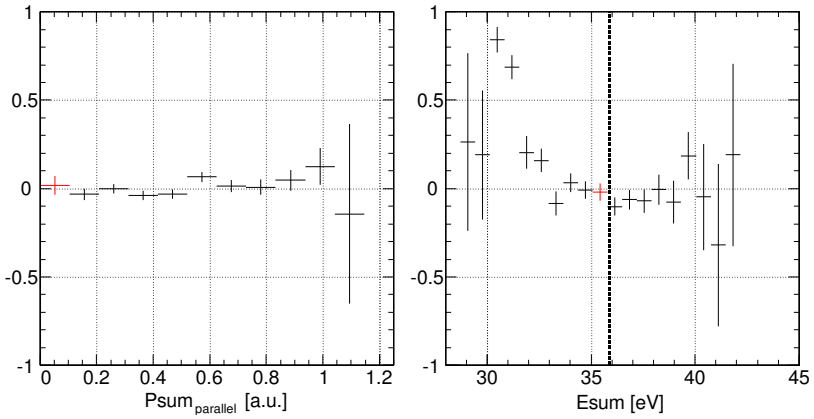


Abbildung 5.63: Projektionen der in Abbildung 5.62 markierten Bereiche (Psum mit 36.4 eV ≤ Esum ≤ 36.9 eV / Esum mit Psum ≤ 0.1 a.u.). Die Punkte, welche auf direkte Cooper-Paar Emission hindeuten würden, sind rot markiert.

sog. Detektor-Totzeitloch (siehe 4.1.2 *Doppelpulserkennung* auf Seite 79). Ein Hinweis auf die direkte Emission von Cooper-Paaren, für die man eine Häufung in negativer p'_x-Richtung erwartet, ist nicht zu erkennen.

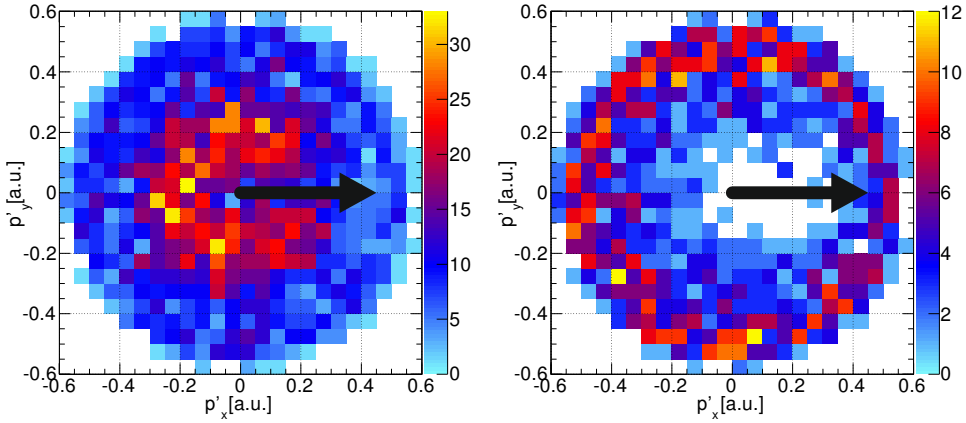


Abbildung 5.64: Zwei Elektronen deren Summenenergie in einem Bereich bis 1 eV unter die DPE-Fermikante liegt. Die Richtung eines Elektrons ist festgehalten (schwarzen Pfeil) und das zweite Elektron aufgetragen. Rechts ohne, links mit Bedingung auf gleiche Energie dE ≤ 1 eV.

5.3.5.5 Höhere Anregungsenergien

Probe:	Bi2212 Kristall (Probe 4 ID: 3704/3705)
Probentemperatur:	31.9 K
Linseneinstellung:	Ekin 30/Epass 30
Photonenenergien:	68.1 / 69.1 eV
Rate:	11000 Hz (Aufnahmerate), 4000 Hz (Rate im Energiefenster)
Messdauer:	je ca. 4h

Eine mögliche Energieabhängigkeit der direkten Emission von Cooper-Paaren kann nicht ausgeschlossen werden, weshalb neben der Hauptmessreihe mit Photonenenergien um die 44 eV auch Messungen mit den höchsten einstellbaren[99] Photonenenergien von 68 und 69 eV durchgeführt wurden.

In Abbildung 5.65 ist das E_{sum} vs $Psum_{parallel}$-Spektrum für eine Messung mit E_{photon} = 69.1 eV gezeigt. Eine signifikante Signatur für die direkte Emission von Cooper-Paaren ist nicht zu erkennen.

[99] Der Cut-off des verbauten Aluminium-Filters liegt bei 72.6 eV (Details siehe 5.3.3 *Kalibrierung* auf Seite 117).

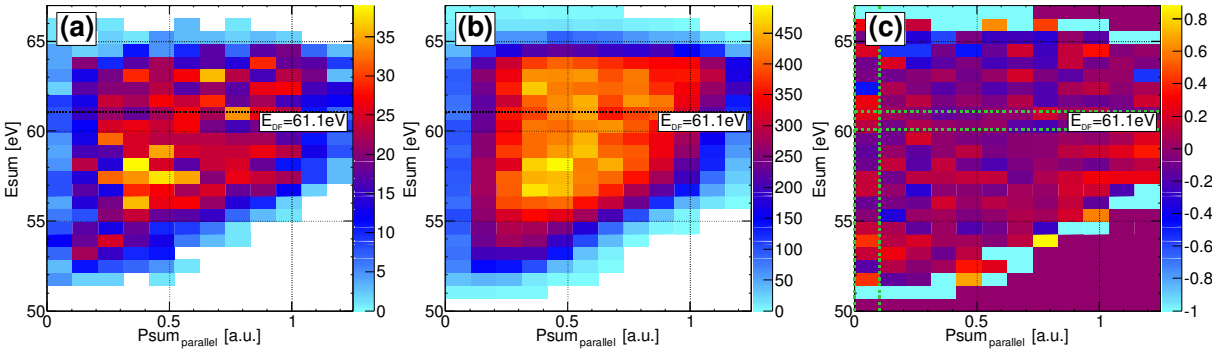


Abbildung 5.65: Esum-gegen-$Psum_{parallel}$-Spektren - a) Aufgenommenen Daten. b) Eventgemixte Daten. c) Das dazugehörige gewichtete Differenzen-Spektrum. Die grünen Linien markieren die relevanten Bereiche für die Identifizierung der direkten Cooper-Paar Emission (siehe Abbildung 5.66).

Gleiches gilt für die entsprechenden Projektionen in Abbildung 5.66, in denen die Statistik nicht ausreicht, um signifikante Aussagen zu treffen.

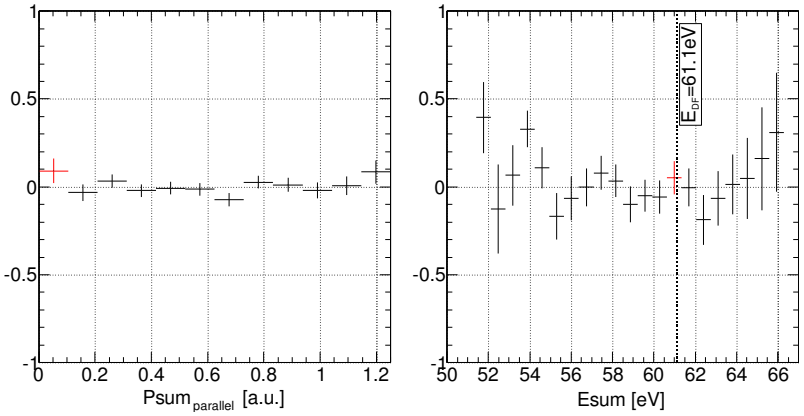


Abbildung 5.66: Projektionen der in Abbildung 5.65 markierten Bereiche (Psum mit 59.1 eV ≤ Esum ≤ 61.1 eV / Esum mit Psum ≤ 0.1 a.u.). Die Punkte, welche auf direkte Cooper-Paar-Emission hindeuten würden, sind rot markiert.

5.3.6 Diskussion der Doppelphotoemissions-Messungen

Die grundsätzliche Nachweismöglichkeit der Doppelphotoemission konnte durch direkte Beobachtungen (5.3.5.2 *Messung bei moderaten Raten und Änderung der Photonenenergie*) demonstriert werden. Ein Abfall der Doppelereignisse oberhalb der theoretischen DPE-Fermikante war allerdings nicht zu beobachten, was auf einen extrem hohen 2γ→2e-Untergrund zurückzuführen ist.

Die große Unbekannte ist im Wesentlichen das Verhältnis der Wirkungsquerschnitte der echten Doppelphotoemission an der DPE-Fermikante zur Einfachphotoemission im DPE-Energiefenster (2γ→2e-Untergrund). Für eine Abschätzung soll noch einmal die in 5.3.5.4 *Messungen bei sehr hohen Raten* vorgestellte Messung (ID 3400: 3600 Hz im Energiefenster und 11 Stunden Messdauer) analysiert werden.

Statt des in Abbildung 5.41 auf Seite 126 gezeigten Ratenscans, kann die Rate des 2γ→2e-Untergrunds an der DPE-Fermikante auch direkt aus den Messdaten abgeschätzt werden (siehe Abbildung 5.67). Dazu werden die Einträge aus einem Kanal knapp oberhalb der DPE-Fermikante (ca. 1000 Einträge) genommen und durch die Messdauer geteilt (R_{Falsch}(3600 Hz) = 1000/11 Stunden = 0.025 Hz). Diese betrachteten Raten gelten für die eingestellte Kanalbreite von 0.25 eV (Binning), auf dessen Niveau (Lage) ein Nachweis der DPE-Fermikante möglich wäre. Soll die Position der DPE-Fermikante hingegen genauer bestimmt werden, sind die Raten entsprechend geringer.

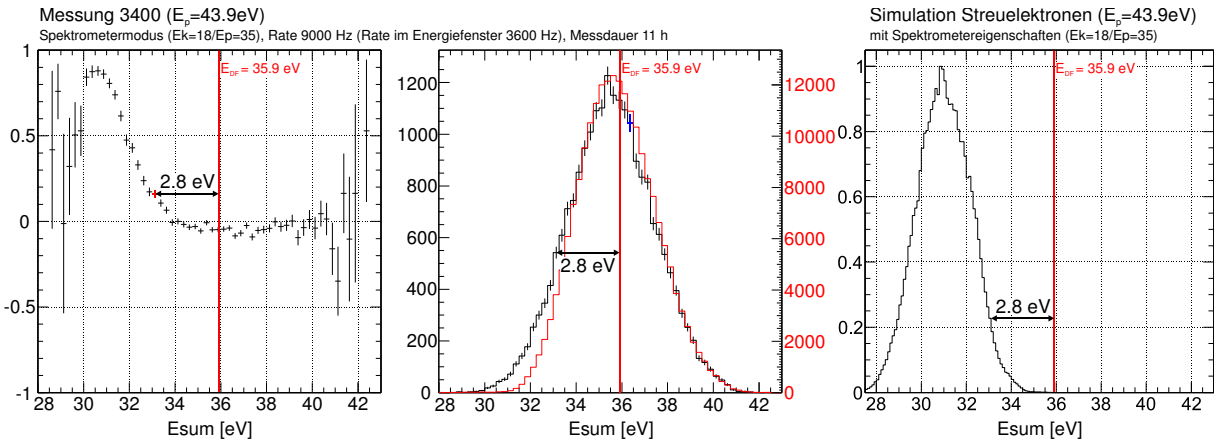


Abbildung 5.67: Links) Im gewichteten Differenzspektrum zum eventgemixten Untergrund ist etwa 3 eV unterhalb der DPE-Fermikante (E_{DF}) eine Abweichung von 20 % mit ca. 5σ zu erkennen. Mitte) In den aufgezeichneten Messdaten entsprechen diese 20% Abweichung insgesamt 120 Doppelereignissen (= 0.2 × 600). Rechts) In der Simulation der Streuelektronen mit der Photonenenergie E_γ = 43.9 eV liegt die entsprechende Stelle vier Größenordnungen oberhalb der DPE-Fermikante.

Um die Anzahl bzw. die Rate der echten Doppelereignisse an der DPE-Fermikante abzuschätzen, muss ein Szenario für die Doppelphotoemission angenommen werden. Dazu wird das in Abbildung 5.49 auf Seite 132 eingeführte Modell der Selbstfaltung der Zustandsdichte verwendet. Aus diesem Modell würde folgen, dass die in Abbildung 5.67 rot markierte Stelle (2.8 eV unterhalb der DPE-Fermikante mit ca. 20 % Abweichung zum eventgemixten Untergrund, was 120 Doppelereignissen entspricht) mindestens einen Faktor 10^4 oberhalb der DPE-Fermikante liegt (siehe Simulation der Streuelektronen in Abbildung 5.67 rechts). Umgekehrt kann daraus abgeleitet werden, dass an der DPE-Fermikante insgesamt 120×10^{-4} echte Doppelereignisse liegen ($R_{Echt}(3600\ Hz) = 120 \times 10^{-4}/11$ Stunden $= 3 \times 10^{-7}$ Hz).

Durch das bekannte Verhalten der echten (linear: $R_{Echt} = E \times R_{Einzel}$) und falschen (quadratisch: $R_{Falsch} = F \times R_{Einzel}^2$) Doppelereignisse reichen die einzelnen oben beschrieben Punkte ($R_{Echt}(3600\ Hz) = 3 \times 10^{-7}$ Hz und $R_{Falsch}(3600\ Hz) = 0.025$ Hz) aus, um die Faktoren E und F zu bestimmen ($E = R_{Echt}/R_{Einzel} = 3 \times 10^{-7} / 3600 = 8.33 \times 10^{-11}$, $F = 0.025 / 3600^2 = 1.9 \times 10^{-9}$).

Die interessante Frage ist nun die, unter welchen Bedingungen das Experiment die DPE-Fermikante hätte auflösen können. Dazu wird die Signifikanz σ*, wie in Abbildung 5.68 beschrieben, definiert:

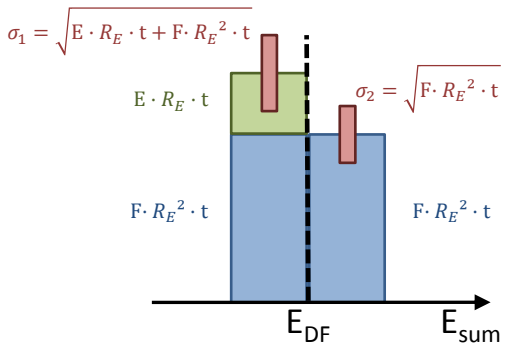


Abbildung 5.68: Darstellung der betrachteten Situation mit einem Kanal unterhalb und einem Kanal oberhalb der DPE-Fermikante (R_E: Einzel-Rate im Energiefenster ∝ Photonenintensität, t: Messdauer). Die Signifikanz, mit der eine Kante aufgelöst werden kann, wird definiert als:

$$E \cdot R_E \cdot t + F \cdot R_E^2 \cdot t = F \cdot R_E^2 \cdot t + \sigma^* \cdot \sqrt{F \cdot R_E^2 \cdot t}$$

$$\sigma^* = \frac{E \cdot R_E \cdot t}{\sqrt{F \cdot R_E^2 \cdot t}} = \frac{E}{\sqrt{F}} \cdot \sqrt{t}$$

Anschaulich bedeutet dies, dass man misst, wie signifikant der Anstieg durch die echten Doppelereignisse (= E × R_E × t) ist, jedoch mit dem stets kleineren σ_2-Fehler der falschen

Doppelereignisse ($=\sqrt{(F \times R_E^2 \times t)}$). Die Photonenintensität bzw. die Einzel-Rate im Energiefenster R_E fällt bei dieser Definition weg. Bei präziseren Definitionen der σ*-Signifikanz, welche stets kleinere Werte liefern, hilft es bedingt, mit höheren Raten zu messen (Details siehe Anhang A.3.3 *Negatives Extrem-Szenario* auf Seite 163). Es handelt sich bei der verwendeten Definition der σ*-Signifikanz demnach um ein positives Extrem-Szenario (*Best Case Szenario*).

Der Verlauf der beschrieben σ*-Signifikanz ist in Abbildung 5.69 für die abgeschätzten Werte von E und F abhängig von der Messdauer gezeigt (blaue Kurve). Wie man erkennt, geht die σ*-Signifikanz auch bei mehreren hundert Stunden Messdauer nicht über den Wert 0.002 hinaus. Wenn es also an der Fermikante keinen zusätzlichen Mechanismus der Doppelphotoemission geben sollte (direkte Emission von Cooper-Paaren), so ist die DPE-Fermikante im Rahmen dieses Experiments nicht aufzulösen.

Eine Möglichkeit, die σ*-Signifikanz schneller zu steigern, besteht darin, die Repetitionsrate der Photonenquelle zu erhöhen. Könnte man beispielsweise mit dem Experiment im Multi-Bunch-Mode (8 GHz) statt im 8-Bunch-Mode (6.77 MHz) am SOLEIL messen, würde die Messung knapp 300-fach schneller ablaufen. Der entsprechende Verlauf der σ*-Signifikanz ist in Abbildung 5.69 (rote Kurve) gezeigt. Man gewinnt zwar deutlich schneller an σ*-Signifikanz, eine realistische Messung ist allerdings auch damit nicht möglich. Die Rückrechnung, um wieviel schneller eine Messung laufen müsste, um in 24 Stunden auf 3 σ*-Signifikanz zu kommen, ergibt eine mindestens 10^7-fach höhere Geschwindigkeit, was einer Repetitionsrate der Photonenquelle im hohen Tera-Hz-Bereich entspricht (1.93×10^{14} Hz). Die in diesem Fall nötige Zeitauflösung zur Diskriminierung von koinzidenten Ereignissen müsste entsprechend im Femto-Sekunden-Bereich liegen, was technisch nicht möglich ist.

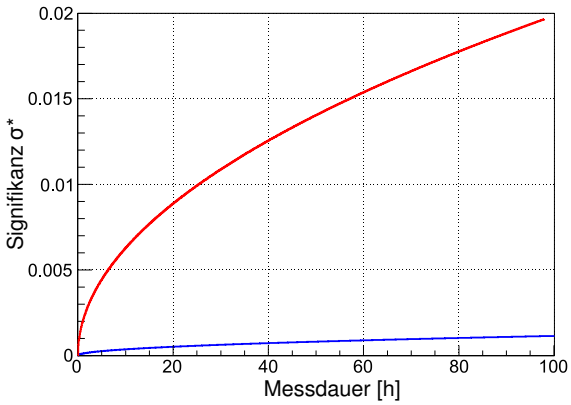


Abbildung 5.69: Die erreichbare σ*-Signifikanz abhängig von der Messdauer. Die blaue Kurve zeigt die Messungen im 8-Bunch-Mode (6.77 MHz), die rote Kurve zeigt eine theoretische Messung im Multi-Bunch-Mode (8 GHz).

Die Abschätzungen, welche stets sehr optimistisch zugunsten eines möglichen Nachweises der DPE-Fermikante getroffen wurden, führen letztlich zu der Schlussfolgerung, dass ein Nachweis der DPE-Fermikante von Bi2212 mit einer stochastischen Photonenquelle experimentell nicht möglich ist. Dabei gilt diese Aussage unabhängig vom experimentellen Aufbau für alle in 3.5.1 *Koinzidenzmessungen* auf Seite 56 vorgestellten Experimente. Auch die unterschiedlichen Nachweiswahrscheinlichkeiten (P_c) ändern die qualitative Schlussfolgerung für einen möglichen experimentellen Nachweis der DPE-Fermikante nicht.[100]

[100] Die absolute Nachweiswahrscheinlichkeit P_C für Doppelereignisse ist in diesem Experiment unbekannt, da auch die einfache Nachweiswahrscheinlichkeit für einzelne Elektronen unbekannt ist. Da P_C für die falschen und

Größter Unsicherheitsfaktor bei dieser Abschätzung ist der Parameter E, welcher mit Hilfe eines einfachen Modells der Streuelektronen abgeschätzt worden ist. Umgekehrt kann man auch fragen, ab welchem Wert von E ein Nachweis in diesem Experiment möglich gewesen wäre. Bei einer angenommen Messdauer von 24 Stunden findet man $E = 1.4 \times 10^{-6}$ (für 3σ*-Signifikanz), was eine Größenordnung oberhalb der experimentell gefundenen Obergrenze[101] von $E < 2.1 \times 10^{-7}$ liegt. Weitere Zahlenbeispiele zum Nachweis der DPE-Fermikante sind in Tabelle 5.1 aufgelistet.

Faktor unter dem Anstieg 2.8 eV unter DPE-Fermikante	Anzahl Beobachteter DPE-Ereignisse [#]	Anteil an Beobachteten DPE-Ereignissen [%]	Parameter E	σ* nach 24 Stunden (bei 6.77 MHz)	Rate für 3σ* in 24 Stunden [Hz]
1.0×10^{-7}	0,000012	0,000001	8.4×10^{-14}	5.6×10^{-7}	1.8×10^{20}
1.0×10^{-6}	0,00012	0,00001	8.4×10^{-13}	5.6×10^{-6}	1.8×10^{18}
1.0×10^{-5}	0,0012	0,0001	8.4×10^{-12}	5.6×10^{-5}	1.8×10^{16}
1.0×10^{-4}	0,012	0,001	8.4×10^{-11}	5.6×10^{-4}	1.8×10^{14}
1.0×10^{-3}	0,12	0,01	8.4×10^{-10}	5.6×10^{-3}	1.8×10^{12}
1.0×10^{-2}	1,2	0,1	8.4×10^{-9}	5.6×10^{-2}	1.8×10^{10}
1.0×10^{-1}	12	1	8.4×10^{-8}	5.6×10^{-1}	1.8×10^{8}
2.5×10^{-1}	30	1,5	2.1×10^{-7}	1.4×10^{-0}	3.0×10^{6}
1.0×10^{0}	120	10	8.4×10^{-7}	5.6×10^{-0}	1.8×10^{6}
1.0×10^{1}	1200	100	8.4×10^{-6}	$5.6 \times 10^{+1}$	1.8×10^{4}

Tabelle 5.1: Zahlenbeispiele für einen möglichen Nachweis der DPE-Fermikante bei Bi2212. Die Anzahl bzw. der Anteil an beobachteten DPE-Ereignissen bezieht sich auf die Messung in Abbildung 5.67 auf Seite 143.

Bei der bisherigen Betrachtung ist allerdings zu berücksichtigen, dass diese nicht unmittelbar für die direkte Emission von Cooper-Paaren gilt. Diese unterscheidet sich von der normalen Doppelphotoemission[102] dadurch, dass nach der Theorie eine scharfe Energieverteilung der beiden Elektronen sowie eine spezifische Emissionsgeometrie existieren. Dadurch wird die Energie- und Winkelauflösung des Experiments zu einem entscheidenden Parameter. Je besser die Auflösung wird, umso schärfere Bedingungen lassen sich an die Daten stellen, wodurch das Signal zum Untergrundverhältnis verbessert werden kann.

---

echten Doppelereignisse gleichermaßen gilt, bleibt das Verhältnis allerdings unverändert. Lediglich die Messdauer kann, analog zu einer höheren Repetitionsrate der Photonenquelle, durch eine höhere Nachweiswahrscheinlichkeit P_C verkürzt werden. Eine Steigerung um mehr als den Faktor 100 scheint allerdings unwahrscheinlich, weshalb dies an der qualitativen Aussage nichts ändert (angenommen die Transmission der beiden Gitter liegt je bei 50% und die Detektionswahrscheinlichkeit der MCPs ebenfalls bei 50 %, wäre der Faktor $64 = 1/(0.5^3)^2$).

[101] Eine experimentelle Obergrenze für den Parameter E lässt sich abschätzen, indem man den Fehlerbalken an der DPE-Fermikante als Rate für die echte Doppelphotoemission annimmt.

[102] Bei der Betrachtung wurde angenommen, dass sich die Doppelphotoemission durch keine besonderen Strukturen vom 2γ→2e-Untergrund unterscheidet. Die Annahme stützt sich dabei auf frühere Beobachtungen von [Voss11, Wall11], bei denen keinerlei Strukturen in den DPE-Spektren entdeckt wurden.

Für eine Abschätzung der experimentellen Erfolgsaussichten zum Nachweis der direkten Emission von Cooper-Paaren gibt es im Wesentlichen zwei Unbekannte:

Zum einen, wie stark sich die mögliche direkte Emission von Cooper-Paaren von der normalen Doppelphotoemission abhebt. (Ohne unkorrelierten Untergrund aus 2γ→2e-Prozessen.)

Orientiert man sich dazu an der Arbeit von Jamal Berakdar [KoBe03] (siehe 2.4.1 *Direkte Emission von Cooper-Paaren* auf Seite 36) für V_3Si, kann, der Anteil des unkorrelierten Untergrunds (J_{UP}: γ→2e) und der direkten Emission von Cooper-Paaren (J_{CP}) in einem Energiefenster, wie in der Doktorarbeit von Stefan Voss [Voss11] beschrieben, abgeschätzt werden mit:

$$J_{CP} = 100 \int\int e^{-2.5(x^2+y^2)}\, dx\, dy$$
$$J_{UP} = -0.053 \int\int x + y\, dx\, dy \qquad (5.4)$$

Für das Verhältnis im Integrationsbereich von jeweils -50 meV bis 50 meV (entspricht der experimentellen Energieauflösung von 100 meV) ergibt sich J_{UP}/J_{CP} = 52.7. Das Verhältnis verbessert sich mit der Energieauflösung exponentiell: 50 meV - 6.59; 20 meV - 0.42. Dies bedeutet, dass bei der Auflösung von 100 meV mit der strengsten Energiediskriminierung ein Anteil von 1.9 % Cooper-Paaren gemessen werden können, die anhand ihrer Emissionsgeometrie zu erkennen sind.

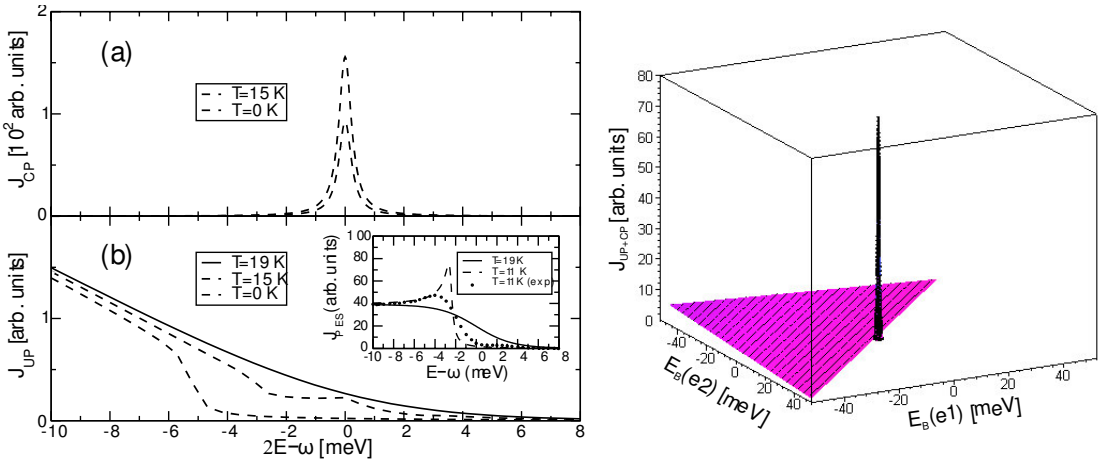


Abbildung 5.70: Nachweismöglichkeit für die direkte Emission von Cooper-Paaren bei V_3Si (T_c = 17 K, Energielücke 2.6 meV). Links) Berechnete DPE-Intensität als Funktion der Summenenergie (2E) bei gleicher Energieaufteilung [KoBe07]. Rechts) Dreidimensionale Darstellung der Rechnungen links in einem Energiefenster (100 meV x 100 meV), welches der experimentellen Energieauflösung entspricht. Das Volumen unter dem Peak (direkt emittierte Cooper-Paare) ist 52.7-mal kleiner als der Betrag des linear anwachsenden unkorrelierten Untergrunds in dem Energiefenster.

Die verwendeten Rechnungen beziehen sich allerdings auf den konventionellen Supraleiter V_3Si. Bei Bi2212 ist die Energielücke mit ca. 30 meV deutlich größer als die von V_3Si mit 2.5 meV. Zudem ist die Kohärenzlänge der Cooper-Paare vergleichbar mit der Abschirmlänge λ, was zu einem deutlichen Anwachsen des DPE-Matrixelementes führen sollte (siehe 2.4.1 *Direkte Emission von Cooper-Paaren* auf Seite 36). Eine Abschätzung konkreter Zahlen, um wieviel stärker die direkte Emission von Cooper-Paaren bei Bi2212 letztendlich sein sollte, wäre allerdings reine Spekulation. Ein Anteil von nur 1.9 % scheint jedoch extrem pessimistisch.

Die zweite Unbekannte ist die Frage, wie gut die direkte Emission von Cooper-Paaren auf dem 2γ→2e-Untergrund durch eine stochastische Photonenquelle diskriminiert werden kann.

Dabei gibt es theoretisch zwei Szenarien: Findet die direkte Emission von Cooper-Paaren im selben Kanal wie die normale Doppelphotoemission statt, wobei die Gesamtzahl der emittierten Doppelereignisse erhalten bleibt (wie in [KoBe03]) oder ist die direkte Emission von Cooper-Paaren ein zusätzlicher DPE-Kanal.

Im ersten Fall, bei dem das Einsetzen der direkten Emission von Cooper-Paaren die Gesamtanzahl der emittierten Doppelereignisse nicht erhöht, kann man eine Abschätzung analog zur DPE-Fermikante durchführen.

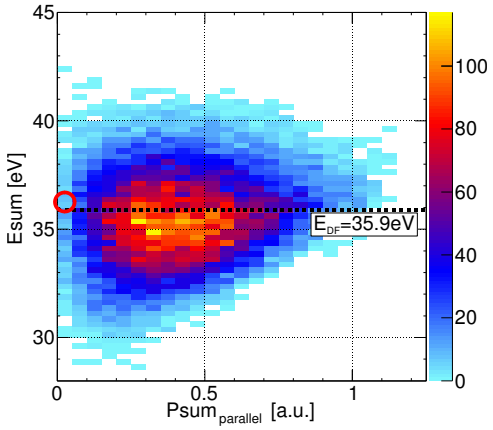


Abbildung 5.71: Das $Psum_{parallel}$ gegen Esum-Spektrum aus Messung 3400. Mit einem Kanal knapp oberhalb der DPE-Fermikante (roter Kreis) kann der 2γ→2e-Untergrund abgeschätzt werden ($E_{DF} < E_{sum} < E_{DF} + 0.2$, $P_{sum,parallel} < 0.15$ au = 0.3 eV). Dieser Untergrund ist praktisch nicht unterscheidbar von den erwarteten direkt emittierten Cooper-Paaren unterhalb der DPE-Fermikante.

Aus den 70 falschen Einträgen in einem Bereich oberhalb der DPE-Fermikante (siehe Abbildung 5.71 roter Kreis) ergibt sich der Parameter $F = 1.36 \times 10^{-10}$ (= 70/11 Stunden/3600 Hz^2). Nimmt man an, dass es sich bei 50% der echten Doppelereignisse von der DPE-Fermikante um Cooper-Paare handelt, ergibt sich $E = 4.2 \times 10^{-11}$ (= $0.5 \times 8.33 \times 10^{-11}$, siehe Abschätzung oben). Der entsprechende Verlauf der σ*-Signifikanz ist in Abbildung 5.72 abhängig von der Messdauer gezeigt.

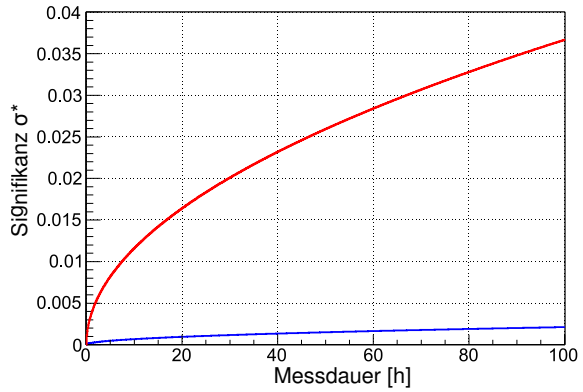


Abbildung 5.72: Die erreichbare σ*-Signifikanz abhängig von der Messdauer. Die blaue Kurve zeigt die Messungen im 8-Bunch-Mode (6.77 MHz), die rote Kurve zeigt eine theoretische Messung im Multi-Bunch-Mode (8 GHz).

Es ergibt sich zwar ein etwas positiveres Bild als bei der DPE-Fermikante (wobei natürlich auch mit einem 50-%-Anteil an Cooper-Paaren extrem positive Annahmen gemacht wurden), jedoch ist auch hier keine experimentelle Messung möglich.

Im zweiten Fall, wenn die direkte Emission von Cooper-Paaren in einem unabhängigen DPE-Kanal stattfindet, ist der Wirkungsquerschnitt für die direkte Emission von Cooper-Paaren unbekannt sowie eine theoretische Abschätzung aufgrund zu vieler Unbekannter (fehlende Theorie) nicht sinnvoll. Es kann allerdings aus den in 5.3.5 *Messungen (Cooper-Paare)*

vorgestellten Messreihen eine experimentelle Obergrenze abgeschätzt werden. Nimmt man dazu die in Abbildung 5.71 gezeigte Messung, liegen 12 Einträge in dem Kanal, in welchem Cooper-Paare erwartet werden (E_{DF} - 0.25 ≤ Esum ≤ E_{DF}, $Psum_{parallel}$ ≤ 0.1 a.u.) bzw. insgesamt 1132 Einträge an der DPE-Fermikante (entspricht einer Cooper-Paarung von 100% an der DPE-Fermikante), wobei sich im Vergleich mit dem eventgemixten Untergrund nur ein Unterschied von weniger als 1 % zeigt. Innerhalb dieser Abweichung bleibt eine effektive Aufnahmeraten von R_{Cooper} = 0.01 × 12 / 11 Stunden = 3 × 10^{-6} Hz bzw. R_{Cooper} = 0.01 × 1132 / 11 Stunden = 2.85 × 10^{-4} Hz möglich, bei einer Einzel-Rate im Energiefenster von 3600 Hz. Schätzt man die entsprechende Einzel-Rate in einem 0.25 eV Energiefenster an der Fermikante ab (siehe Abbildung 5.73), ist die Messung mit 15 Hz gelaufen (entspricht insgesamt knapp 600000 Einzel-Ereignissen in einem 0.25 eV großen Energiefenster an der Fermikante nach 11 Stunden). Als eine Obergrenze für den Wirkungsquerschnitt kann daher 12/600000 = 2 × 10^{-5} bzw. 1132/600000 ≈ 2 × 10^{-3} abgeschätzt werden.

Als Ergebnis der DPE-Untersuchungen an Kuprat-Hochtemperatursupraleitern (Bi2212 und Y123) kann festgehalten werden, dass sowohl der experimentelle Nachweis der DPE-Fermikante als auch der Nachweis der direkten Emission von Cooper-Paaren extrem unwahrscheinlich scheint. Gründe dafür sind das extrem schlechte Verhältnis der Zustandsdichte an der DPE-Fermikante zur Zustandsdichte für den 2γ→2e-Untergrund bei Messungen mit einer stochastischen Photonenquelle.

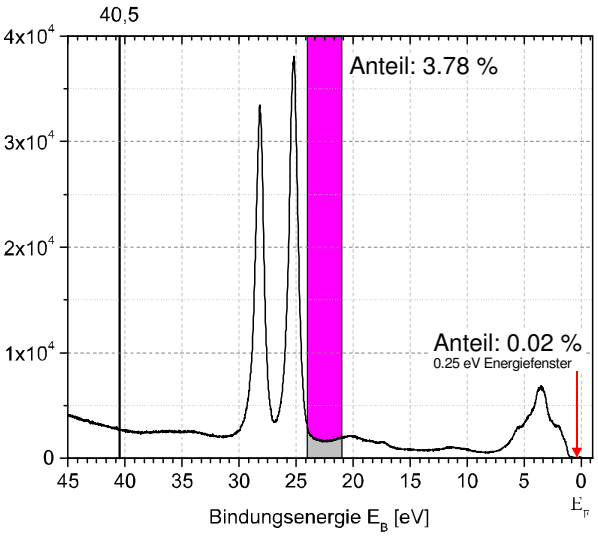


Abbildung 5.73: Die gemessene Rate im Energiefenster macht nur einen Bruchteil (3.78 %) der tatsächlichen Einzel-Rate aller emittierten Elektronen aus.

Doch selbst wenn man voraussetzt, dass eine wirkliche Ein-Photonen-Quelle zur Verfügung stünde, ist ein experimenteller Nachweis der DPE-Fermikante schwierig. Nimmt man dazu den abgeschätzten Wert von E = 8.33 × 10^{-11}, ist die Aufnahmerate an der DPE-Fermikante (angenommen jedes Photon löst ein Elektron aus) R_{DPE} = 8.33 × 10^{-11} × $R_{Bunchmarker}$/26.45 bei einer Photonenenergie von 44.5 eV. Der Faktor 26.45 stammt aus Abbildung 5.73 und skaliert die bisher verwendete Einzel-Rate im Energiefenster auf die gesamten emittierten Elektronen. Um in 24 Stunden auf 1000 Einträge an der Fermikante zu kommen (mit 0.25 eV Energieauflösung), wäre eine Repetitionsrate von 3.68 GHz erforderlich.

6 Zusammenfassung und Ausblick

Im Rahmen dieser Arbeit wurde eine neue Messapparatur aufgebaut, mit welcher es zum ersten Mal möglich war, die Doppelphotoemission von Kuprat-Hochtemperatursupraleitern zu untersuchen. Das dazu eingesetzte elektrostatische Flugzeitspektrometer deckt einen ±30°-Akzeptanzwinkel (0.84 sr) in einem bis zu ±8 % großen Energiefenster um die zu messende kinetische Energie ab. Mit einer neu entwickelten Konvertierung konnte dieses Energiefenster nochmal um den Faktor 2 vergrößert werden, auch wenn dort nicht mehr der volle Raumwinkel abgedeckt wird.

Die für die Auswertung der Messdaten neu entwickelte Datenanalysesoftware *Sandbox Analyze* ermöglicht mit seiner interaktiven Benutzeroberfläche und der engen Anbindung an die zur Kalibration nötigen Spektrometer-Simulationen ein effektives Arbeiten mit den eventbasierenden Messdaten. Die enthaltene neu entwickelte Konvertierung der aufgezeichneten Flugzeiten und Auftrefforte in die Startenergie und Startrichtung der Elektronen bietet neben dem größeren abgedeckten Energiefenster auch deutlich höhere Konvertierungsraten (bis zu 20 mal schneller als die ursprüngliche Konvertierung), welche für die eventbasierende Datenaufnahme erforderlich sind.

Bei den durchgeführten Einfachphotoemissions-Messungen an den Kuprat-Hochtemperatursupraleitern Bi2212 ($Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$) und Y123 ($YBa_2Cu_3O_{7+\delta}$) konnte die Fermifläche in der gesamten ersten Brillion-Zone sowie die bis zu 3 eV darunterliegende elektronische Struktur aufgelöst werden, ohne dass dafür die Probe bewegt werden musste. Die im Vergleich zu hemisphärischen Analysatoren um mehrere Größenordnungen geringeren benötigten Photonenströme auf der Probe bieten auch für reine Einfachphotoemissions-Messungen interessante Anwendungsmöglichkeiten. Dazu zählt beispielsweise die Untersuchung von sehr kleinen Proben (*Nano*-PES) oder von für Strahlungsschäden sehr anfälligen Proben, wie organischen Kristallen (*Low Dose*-PES).

Für die Doppelphotoemissions-Messungen wurde die ursprünglich von Lutz Foucar [Fouc08] und Robert Wallauer [Wall11] entwickelte Doppelpulserkennung weiter optimiert und durch die Einführung von Doppelfiltern ein zuverlässiger Einsatz sichergestellt. Die Detektor-Totzeit bei der Verwendung von nur einem Detektor stellt dadurch bei den durchgeführten Koinzidenzmessungen praktisch keinen Nachteil mehr dar.

Die grundsätzliche Funktion des Experiments für Doppelphotoemissions-Messungen konnte durch die Beobachtung der DPE-Verteilung beim Ändern der Photonenenergie unmittelbar demonstriert werden. Für den gesuchten Mechanismus der direkten Emission von Cooper-Paaren konnten hingegen keine Anzeichen gefunden werden. Im Gegenteil haben sich aufgrund der geringen Zustandsdichte von Kuprat-Hochtemperatursupraleitern an der Fermikante und des Problems einer stochastischen Photonenquelle fundamentale physikalische Grenzen für DPE-Messungen an diesen Materialien gezeigt. Die Rate der echten Doppelphotoemission liegt mit circa 0.002 % der Einzel-Rate (im gesamten abdeckten Energiefenster von ca. 3 eV) so niedrig, dass sogar ein Nachweis der DPE-Fermikante mit einer echten Ein-Photonenquelle unwahrscheinlich scheint. Eine gewisse Restunsicherheit bleibt allerdings bestehen, da der relative Anteil der Doppelphotoemission an der DPE-Fermikante mit einem einfachen Modell der Streuelektronen (Selbstfaltung der Zustandsdichte) abgeschätzt werden musste.

Für zukünftige Doppelphotoemissions-Experimente wäre daher ein besseres Verständnis dieser Streuelektronen (γ→2e) entscheidend. Dazu liefern die bisher in Frankfurt verwendeten einfachen Flugzeitspektrometer ([Hatt04, Voss11, Wall11]), welche den gesamten Raumwinkel (2π) und den gesamten Energiebereich (0 bis E_γ) abdecken, einen möglichen experimentellen Zugang. Für Kuprat-Hochtemperatursupraleiter müsste allerdings ein Kompromiss zwischen diesen einfachen Flugzeitspektrometern mit ihrer zu geringen Energieauflösung und dem in dieser Arbeit verwendeten komplexen elektrostatischen Flugzeitspektrometer mit seinem zu kleinen Energiefenster gefunden werden.

Die Schwierigkeit bei der experimentellen Untersuchung dieser Streuelektronen bestand bisher darin, eine ausreichende Bandbreite von experimentellen Parametern (unterschiedliche Proben, Photonenenergien, Aufnahmeraten) mit ausreichender Qualität abzudecken, um diese miteinander vergleichen zu können. Besonders die begrenzte Strahlzeitdauer an Synchrotronanlagen im Single-Bunch-Mode (BESSY) bzw. 8-Bunch-Mode (Soleil) war hierbei der größte limitierende Faktor.

Aktuelle Forschung und Entwicklung für die Bereitstellung eines effektiven Single-Bunch-Modus während des normalen Betriebs im Multi-Bunch-Hybrid-Modus von Synchrotronanlagen (BESSY), sei es durch einen Licht-Chopper (Pulsformer) [CEER09] oder durch resonantes Auswählen im Undulator (*quasi-resonant excited bunch*) [HOKM14], könnte bald eine wichtige experimentelle Verbesserung zur Verfügung stellen. Vorausgesetzt die erhältliche Strahlzeitdauer verlängert sich mit der höheren Verfügbarkeit. Eine weitere, sehr vielversprechende Technik ist die Erzeugung Hoher Harmonischer mit Laserpulsen (HHG – *High Order Harmonic Generation*), welche heute bereits mit Repetitionsraten im MHz-Bereich möglich ist [CBHK12]. Diese Technik bietet zudem den Vorteil, dass die Experimente ohne die übliche Limitierung der Strahlzeitdauer an Synchrotron-Großforschungsanlagen durchführen werden können.

Das Verständnis der Streuelektronen ist, abgesehen von Doppelphotoemissions-Experimenten, auch für andere Bereiche der Physik von großem Interesse, zum Beispiel bei Rasterelektronenmikroskopen (SEM – *Scanning Electron Microscope*). Das anlaufende europaweite SIMDALEE2-Netzwerk (*Source, Interaction with Matter, Detection and Analysis of Low Energy Electrons 2* - [SIMDALEE2]) möchte unter anderem die Transporteigenschaften von Elektronen in Festkörpern sowie deren Emission quantitativ verstehen.

Sollte sich jedoch das in dieser Arbeit abgeschätzte Bild für den Wirkungsquerschnitt der echten Doppelphotoemission an der DPE-Fermikante bei Kuprat-Hochtemperatursupraleitern nicht dramatisch ändern, ist eine experimentelle Untersuchung dieser, für Korrelationsuntersuchungen hoch interessanten Materialien physikalisch wohl nicht möglich.

A. Anhang

A.1 Physikalische Ergänzungen

A.1.1 Naturkonstanten

	Symbol	Wert (SI Einheiten)	Wert (a.u.)
Elementarladung:	e	1.6022×10^{-19} As	1
Elektronenmasse:	m_e	9.1096×10^{-31} kg	1
Plancksches Wirkungsquantum:	h	6.6262×10^{-31} kg m^2/s^2	2π
	$\hbar$	$h/2\pi$	1
Vakuumlichtgescheindigkeit:	c	2.9979×10^{8} m/s	137.036
Energie:	$e^2/(4\pi\epsilon_0 a_0)$	27.211 eV	1
Länge:	a_0	0.52918 Å (Å = 10^{-10} m)	1
Elektrische Feldkonstante:	ϵ_0	8.854×10^{-12} As/(Vm)	$1/(4\pi)$
Magnetische Feldkonstante:	μ_0	$4\pi \times 10^{-7}$ Vs/(Am)	$4\pi/137{,}036^2$

A.1.2 Nützliche Umrechnungen

Impuls Elektron	p [a.u.] = 0.529 k [1/Å]
Impuls-Energie Elektron	p [a.u.] = $(E\ [eV]/13.6)^{1/2}$

A.1.3 Vorsätze für Maßeinheiten

Yotta	10^{24}	Y	Deci	10^{-1}	d
Zetta	10^{21}	Z	Centi	10^{-2}	c
Exa	10^{18}	E	Milli	10^{-3}	m
Peta	10^{15}	P	Micro	10^{-6}	µ
Tera	10^{12}	T	Nano	10^{-9}	n
Giga	10^{9}	G	Pico	10^{-12}	p
Mega	10^{6}	M	Femto	10^{-15}	f
Kilo	10^{3}	K	Atto	10^{-18}	a
Hecto	10^{2}	h	Zepto	10^{-21}	z
Deca	10^{1}	da	Yocto	10^{-24}	y

A.1.4 Physikalische Ergänzungen zu Bi2212

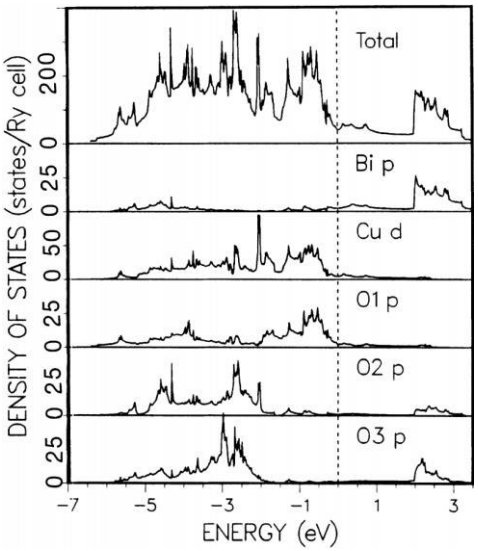


Abbildung A.1: Totale und partielle Zustandsdichte von Bi2212. Entnommen aus [KrPi88].

Die Zustandsdichte an der Fermikante beträgt 2.88 [Zustände/eV-Einheitszelle]. Die Beiträge in [Zustände/eV-Atom] an der Fermikante sind im einzelnem:

Cu1 d	Bi p	O1 p	O2 p	O3 p
0.33	0.17	0.16	0.07	0.07

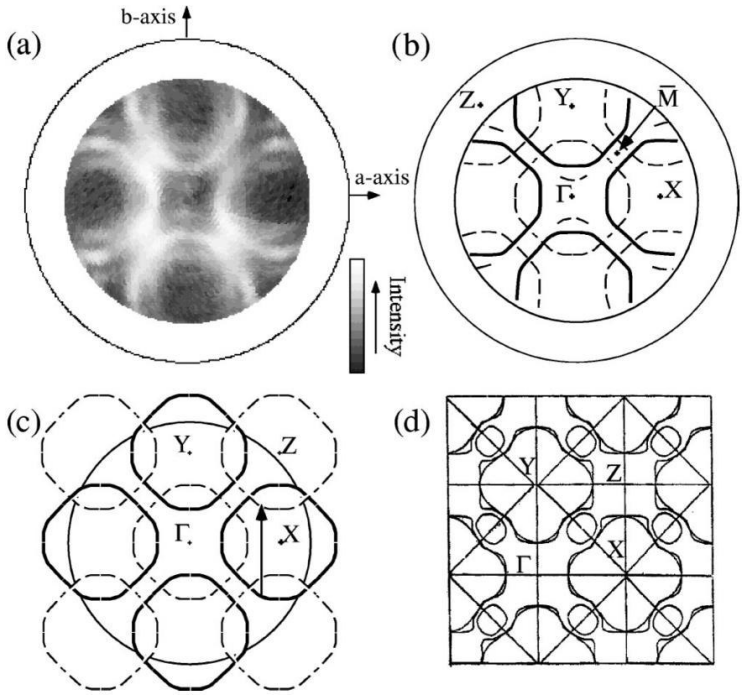


Abbildung A.2: Fermifläche einer beinahe optimal gedopten Bi2212 Probe: a) Integrierte Intensitätskarte (10 meV Integrationsfenster um E_F) für Bi2212 bei 300K gemessen mit 21.2 eV Photonen (He-I Linie); b), c) Superposition der Haupt-Fermiflächen (dicke Linien) und die (π,π)-Verschiebung (gestrichelte Linien) hervorgerufen durch zurückklappende Schattenbänder; d) Berechnete Fermifläche von Massidda et al. [MaYF88]. Entnommen aus [Dama03] basierend auf [AOSS94].

A.2 Technische Ergänzungen

A.2.1 Ausheizvorgang

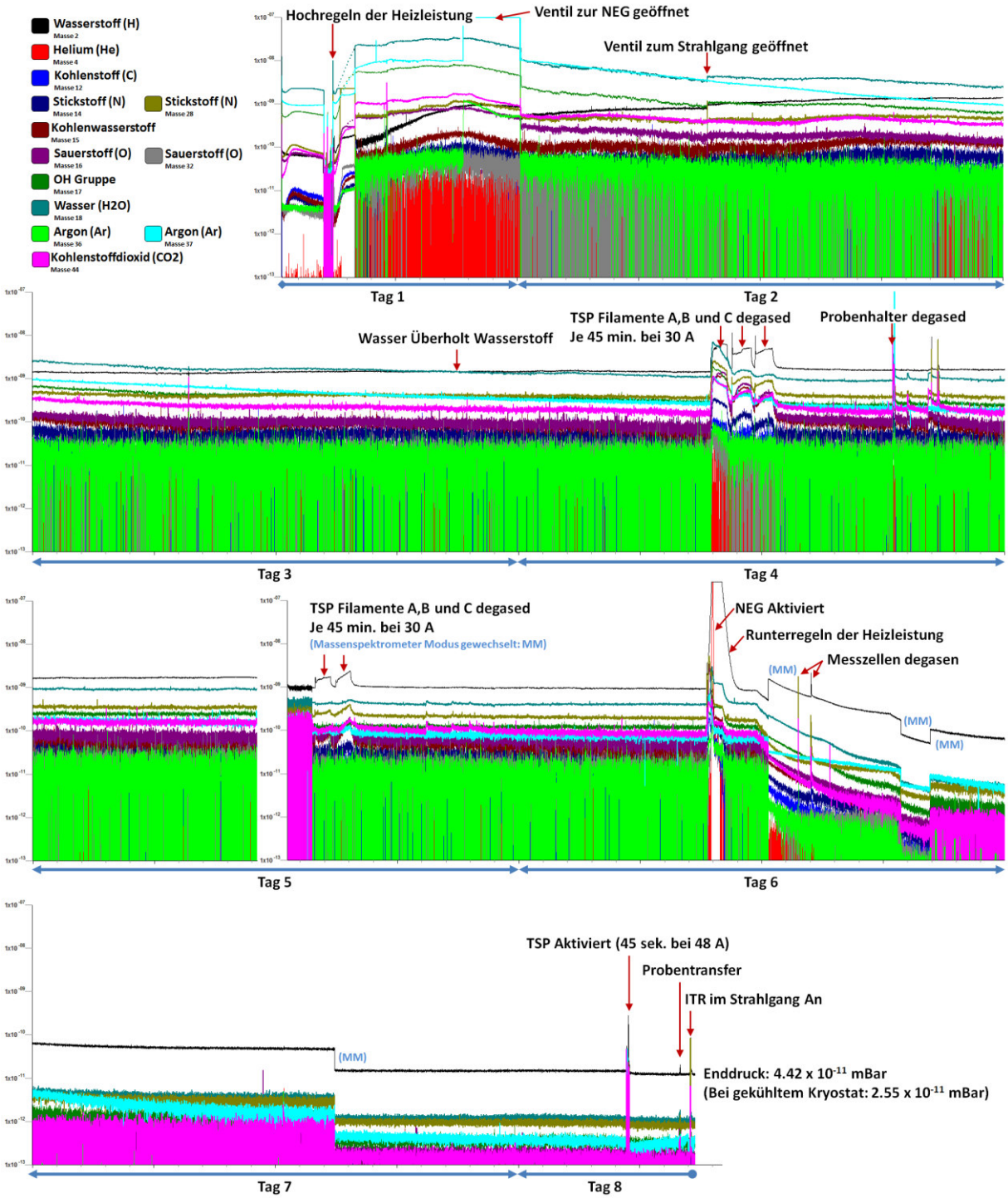


Abbildung A.3: Übersicht des Ausheizvorgangs der Streukammer für die erste SOLEIL Strahlzeit. Die Kammer wurde zuvor mit ca. 200 °C für 2 Wochen ausgeheizt und für den Transport mit Argon geflutet, was den außergewöhnlich hohen Argon-Partialdruck erklärt.

A.2.2 Themis 1000 mit ±30° Weitwinkelvorsatzlinse (Details)

Weitere technische Details zu dem verwenden Flugzeitspektrometer:

A.2.2.1 *Entwicklung Themis 1000 mit ±30° Weitwinkelvorsatzlinse* Seite 154
A.2.2.2 *Energie- und Winkelauflösung* Seite 155
A.2.2.3 *Negative Einflüsse* Seite 156
A.2.2.4 *Repetitionsratenbegrenzung* Seite 159

A.2.2.1 Entwicklung Themis 1000 mit ±30° Weitwinkelvorsatzlinse

Der Ausgangpunkt für die Entwicklung des Themis 1000 mit ±30° Weitwinkelvorsatzlinse war das bereits als Flugzeitspektrometer optimierte Themis 1000 (basierend auf einer Phoibos-Linse) und die für hemisphärische Analysatoren entwickelte Weitwinkelvorsatzlinse (WAL). Konzeptionell fokussiert das WAL auf den Arbeitspunkt des Themis 1000, welches die Elektronen übernimmt (siehe Abbildung A.4).

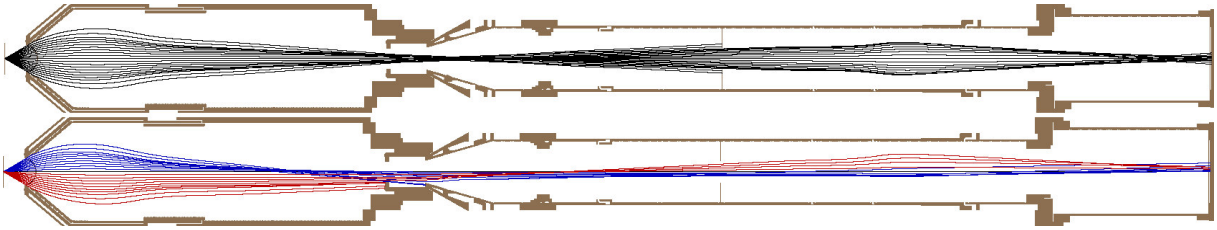


Abbildung A.4: Die Linseneinstellungen für Ekin 100 / Epass 100. Gezeigt sind die Trajektorien ±30° in 3°-Schritten für 100 eV (Schwarz, oben) sowie 96 eV (Blau, unten) und 104 eV (Rot, unten).

Durch chromatische Aberrationen im WAL gehen jedoch ein Großteil der Trajektorien direkt verloren. Zudem wurde keine gute Winkeldispersion auf dem Detektor erreicht. Beim letztlich verwendeten Linsenmodus wurde das Gesamtsystem aus Themis 1000 und WAL als Einheit optimiert (siehe Abbildung A.5) [SPECS].

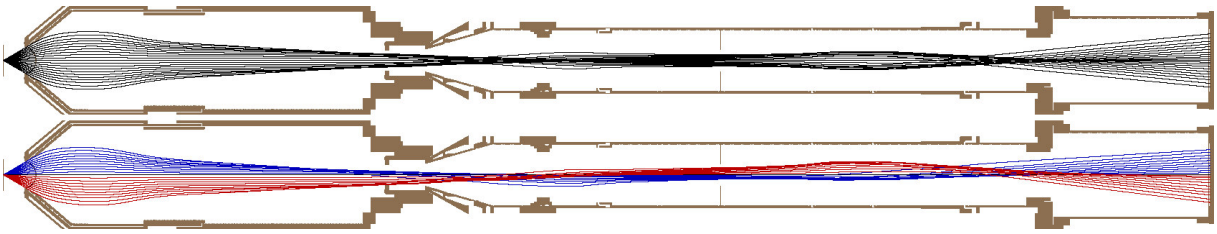


Abbildung A.5: Die Linseneinstellung für Ekin 100 / Epass 100 nach einem heuristischen Optimierungsverfahren. Im gewünschten Energiefenster (Ekin ± 0.04 Epass) ist Winkeldispersion auf dem Detektor erreicht worden.

Nach der Optimierung ist der Fokuspunkt zwischen WAL und Themis 1000 verschwunden, dafür allerdings ist das gewünschte Energiefenster vollständig abgedeckt und eine Winkeldispersion auf dem Detektor erreicht.

A.2.2.2 Energie- und Winkelauflösung

In Abbildung A.6 ist die theoretische Energie- und Winkelauflösung, abhängig von der kinetischen Energie und dem Startwinkel Theta für verschiedene Linsenmodi gezeigt.

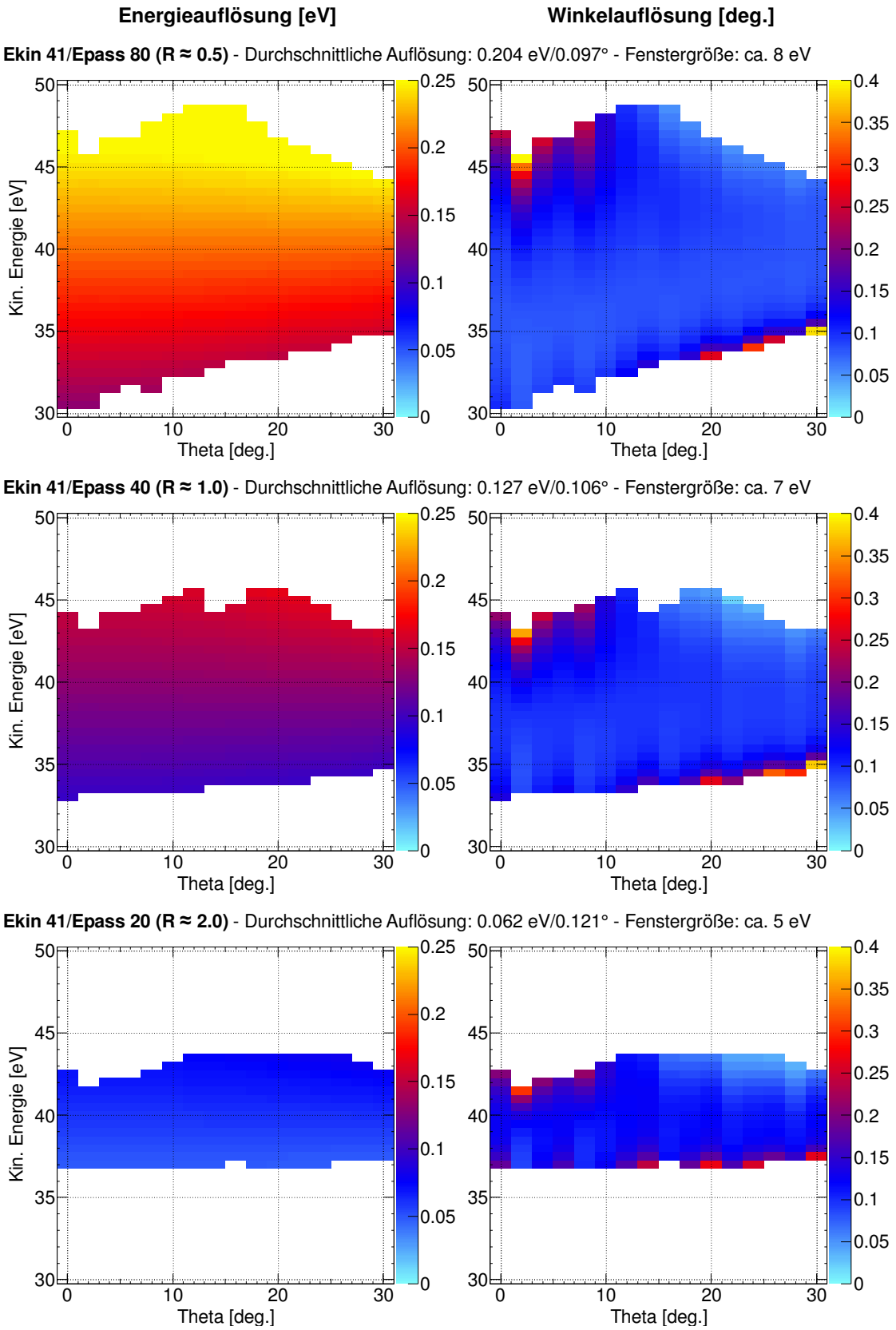


Abbildung A.6: Theoretische Energie- und Winkelauflösung (angenommen wurde eine konservative Zeitauflösung von 300 ps und eine 100 µm Ortsauflösung des Detektors).

Neben der Theta-Winkelauflösung gibt es noch die Phi-Winkelauflösung (Azimutalwinkel wie in Abbildung 5.1 auf Seite 96 beschrieben), welche vom Radius bzw. dem Umfang abhängt, auf dem sich die 360° verteilen. In Abbildung A.7 ist dieser Zusammenhang mit einer angenommenen Ortsauflösung von 100 µm dargestellt.

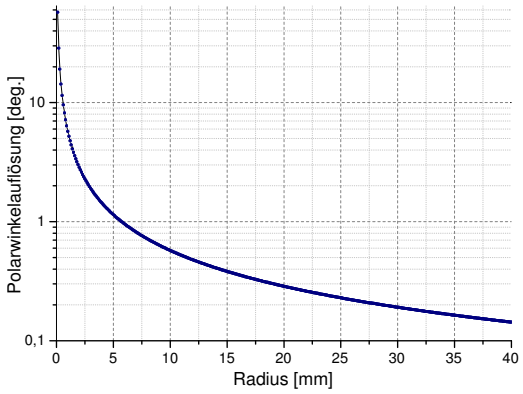


Abbildung A.7: Die Phi-Auflösung (Azimutalwinkel) abhängig vom Auftreffradius der Elektronen (angenommen wurde eine Detektor-Ortsauflösung von 100µm).

Allgemein wird stets versucht, die relevante Physik möglichst großflächig, also auf große Radien, auf dem Detektor zu verteilen. Die gesuchten Koinzidenz-Ereignisse sollten sich bei den typischen Spektrometer-Einstellungen im äußeren Drittel des Detektors befinden.

A.2.2.3 Negative Einflüsse (Parasitär)

Eintrittsgitter des Spektrometers

Zur Trennung der elektrischen Potentiale im Spektrometer von der Probe und theoretisch zur Vermeidung von sphärischen Aberrationen in der Weitwinkelvorsatzlinse (Formung der Potentiale), wird ein geerdetes sphärisches Eintrittsgitter eingesetzt (quadratische Löcher mit 350 µm Kantenlänge und einer verbleibenden Stegbreite von 30 µm [SPECS]). Negative und unvermeidbare Auswirkungen sind eine dadurch reduzierte Transmission (< 1), welche sich besonders auf Doppelphotoemissions-Messungen (Wahrscheinlichkeit ein Doppelereignis zu Messen ∝ Transmission^2) negativ auswirkt.

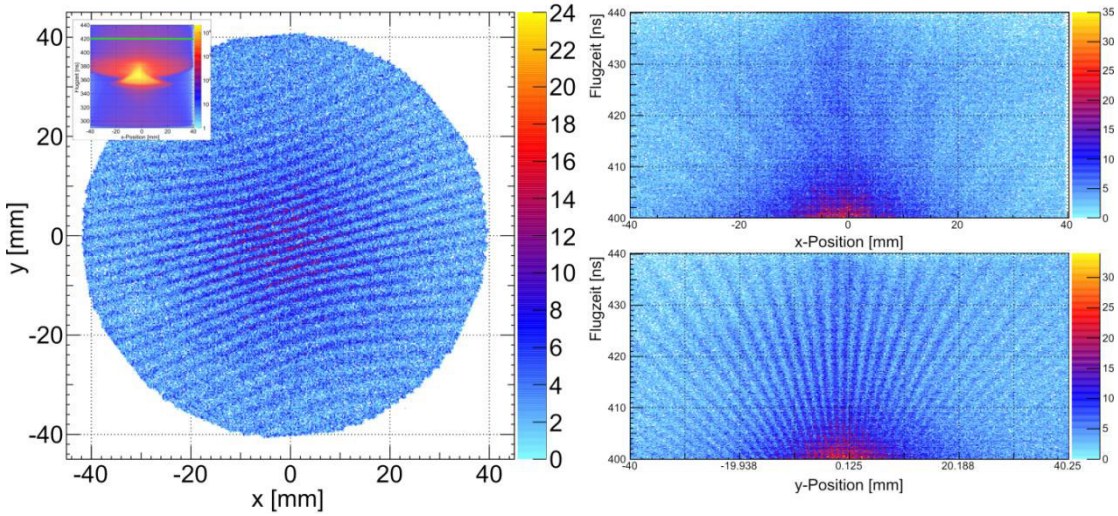


Abbildung A.8: Links) Im Ortsbild für Flugzeitbereiche hinter dem eigentlichen Energiefenster (der ausgewählte Flugzeitbereich ist im Inlet grün markiert) zeigt sich die Struktur des Eintrittsgitters, indem kleine Akzeptanzwinkel auf den gesamten Detektor verteilt werden. Rechts) Flugzeit-gegen-Ort Spektren: In y-Richtung (|x|< 1.5 mm) ist die Gitterstruktur deutlich zu erkennen. In x-Richtung (|y|< 1.5 mm) ist die Gitterstruktur hingegen aufgrund der größeren Ausdehnung der Startposition nicht zu erkennen. Die schwach zu erkennenden Streifen in x-Richtung entstehen lediglich dadurch, dass die Streifen in y-Richtung nicht exakt horizontal verlaufen.

Zum anderen limitiert das Eintrittsgitter auch die theoretische Winkelauflösung, allerdings liegt diese bei einer Maschenweite von 0.05 mm mit 0.03° deutlich unterhalb der experimentellen Winkelauflösung, aufgrund der begrenzen Ortsauflösung des Detektors (100 µm).

Wie stark Mikro-Linseneffekte die Winkelauflösungen zusätzlich beeinflussen lässt sich nur schwer abzuschätzen. Da jedoch die beiden durch das Eintrittsgitter voneinander getrennten Feldbereiche deutlich unterhalb der kinetischen Energie der Elektronen liegen (im Linsenmodus Ekin 18/Epass 35 beträgt das Feld 0.5 cm hinter dem Eintrittsgitter ca. – 0.8 V), ist mit keinen dramatischen Effekten zu rechnen.

Stabilität des Elektronenstartorts über die Messdauer

Im Zusammenhang mit dem beschriebenen Wandern der Flugzeitverteilung (siehe 5.2.2 *Qualität der Daten* auf Seite 101) wurde auch die mechanische Stabilität des Kryostaten bzw. dessen Abstand zum Spektrometer (der sog. Arbeitsabstand) experimentell überprüft. Dazu wurde wie in Abbildung A.9 gezeigt der Schwanz der Flugzeitverteilung in x-Richtung (horizontal), über eine längere Messung hinweg verfolgt.

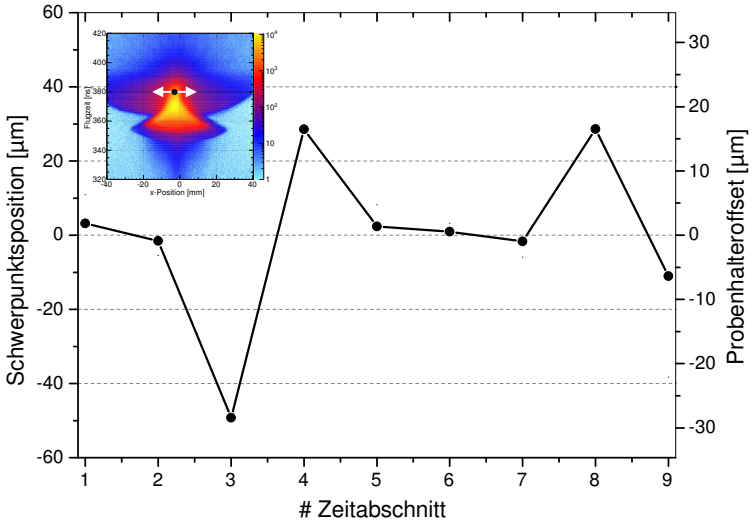


Abbildung A.9: Schwerpunktsposition für den *Schwanz* der Flugzeitverteilung in X-Richtung (siehe Inlet). Das korrespondierende Probenhalteroffset (in z-Richtung) ist in der rechten Achse angegeben.

Der durch die beobachteten Arbeitsabstandschwankungen von max. ± 30 µm maximal verursachte Flugzeitfehler liegt mit 50 ps (siehe Abbildung 5.11 auf Seite 103) allerdings deutlich unterhalb der Zeitauflösung des Experiments (ca. 300 ps).

Transmission des Spektrometers

Was mit den Elektronen passiert welche nicht im Energiefenster gemessen werden und nicht einfach am Spektrometer vorbeifliegen (Θ ≤ 30°), ist in Abbildung A.10 dargestellt.

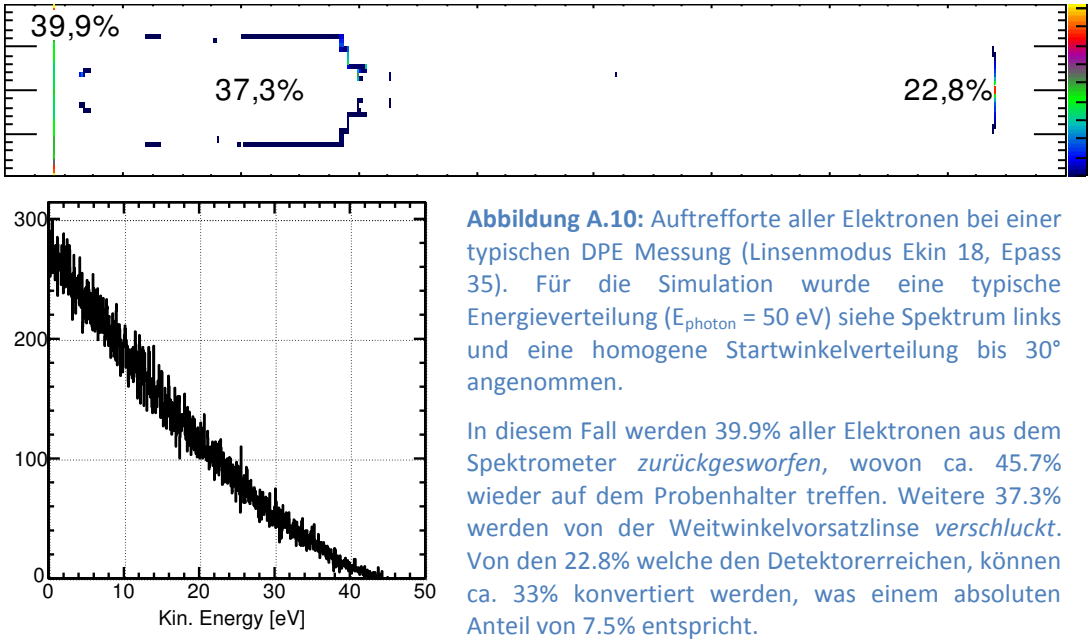


Abbildung A.10: Auftrefforte aller Elektronen bei einer typischen DPE Messung (Linsenmodus Ekin 18, Epass 35). Für die Simulation wurde eine typische Energieverteilung (E_{photon} = 50 eV) siehe Spektrum links und eine homogene Startwinkelverteilung bis 30° angenommen.

In diesem Fall werden 39.9% aller Elektronen aus dem Spektrometer *zurückgesworfen*, wovon ca. 45.7% wieder auf dem Probenhalter treffen. Weitere 37.3% werden von der Weitwinkelvorsatzlinse *verschluckt*. Von den 22.8% welche den Detektorerreichen, können ca. 33% konvertiert werden, was einem absoluten Anteil von 7.5% entspricht.

Dass Elektronen mit höheren kinetischen Energien primär schon in der Weitwinkelvorsatzlinse verschluckt werden, ist insoweit von Vorteil, als dass die dort erzeugten Sekundär-Elektronen praktisch keine Chance haben den Detektor zu erreichen.

A.2.2.4 Repetitionsratenbegrenzung

Um die Energieauflösung bei Flugzeitmessungen zu erhöhen, wird die Flugzeitverteilung gestreckt. Wird sie dabei allerdings breiter als der Bunchabstand der Photonenquelle, werden die Messungen im überlappenden Bereich uneindeutig. In Abbildung A.11 ist dieser Zusammenhang für typische DPE-Messungen (E_{kin} ca. 18 eV) am Soleil (Bunchabstand 147.64 ns) gezeigt. Wie man erkennt, überlappen die Flugzeitverteilungen aufeinander folgender Bunche selbst ohne Abbremsung (RR = 1). Dies war einer der Gründe, weshalb mit einem beschleunigenden Linsenmodus (Ekin 18/Epass 36 – RR: 0.5) gemessen werden musste.

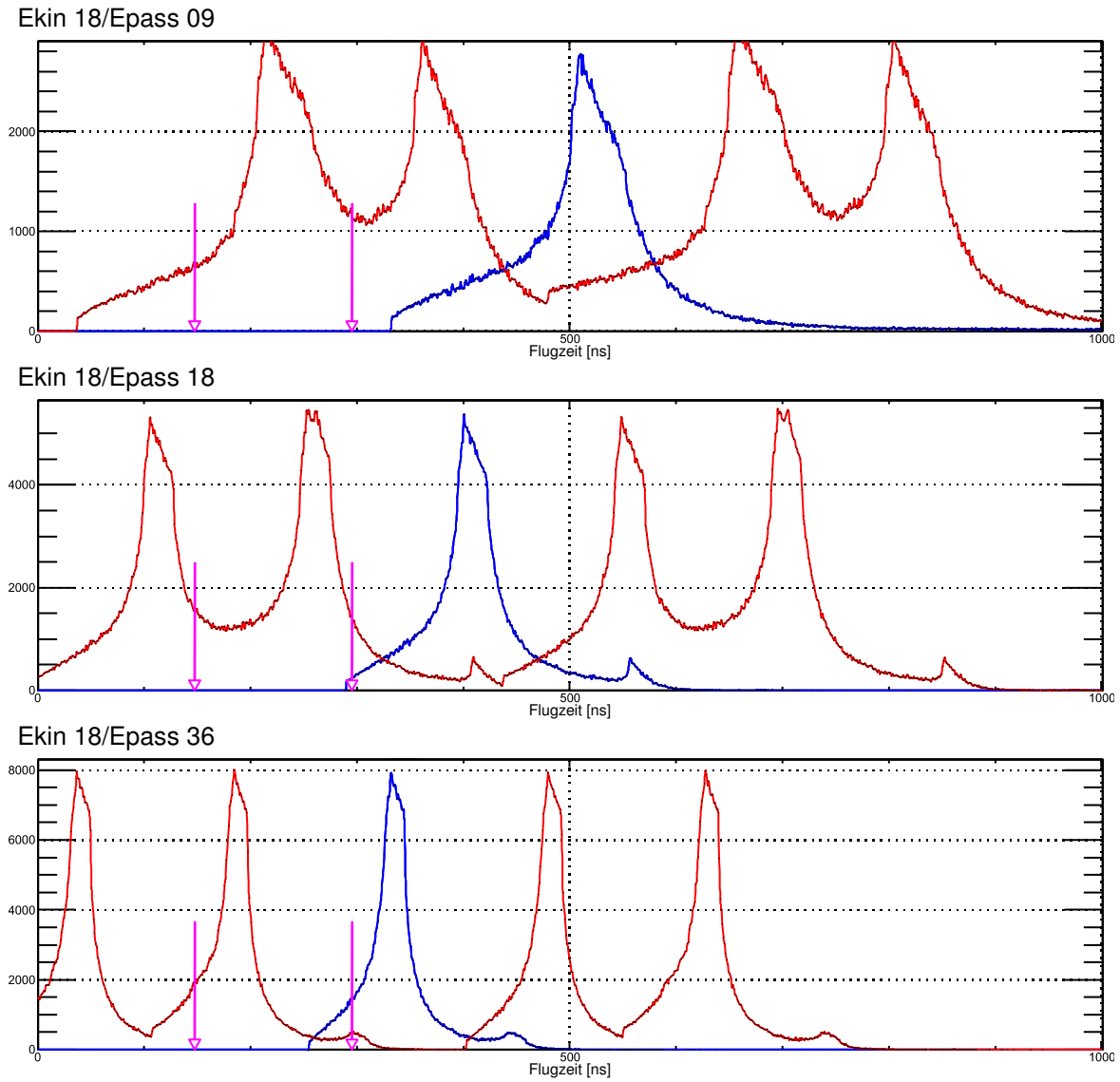


Abbildung A.11: Flugzeitverteilung für einen Photonenbunch bei 0 ns (Blau) sowie zwei davorliegende und zwei dahinterliegende Photonenbunche (pinke Pfeile, Rot). Die angenommene Energieverteilung entspricht einer typischen DPE-Messung mit E_{photon} = 46eV. Im abbremsenden Linsenmodus (Ekin 18/Epass 9) machen die schnellsten bzw. die langsamsten Elektronen der benachbarten Flugzeitverteilung einen Anteil von ca. 25% aus.

A.2.3 Konvertierung (Theta Glättung)

Das runde Eintrittsgitter des Spektrometers wird in SIMION 8.1 durch kleine Quadrate nachmodelliert (siehe Abbildung A.12 a)). Da die maximale Anzahl dieser Elemente limitiert ist, ist die resultierende Kurve nicht mehr perfekt rund bzw. glatt. Abhängig davon, wo ein Elektron nun das Gitter durchfliegt (Winkel), ergeben sich kleine Unterschiede in der Flugzeit und im Ort. (b) Lässt man Elektronen einer festen Energie mit unterschiedlichen Startwinkeln durch das Spektrometer fliegen, ist die Phasenraumdichte (Abstand im Ort und in der Flugzeit, geteilt durch den Startwinkelunterschied) von zwei benachbarten Teilchen keine glatte Funktion vom Startwinkel mehr, wie man es physikalisch erwarteten würde, sondern oszilliert (b: schwarze Kurve). Bei der Konvertierung führt dies zu störenden Intensitätsschwankungen, wie bei einer aufgezeichneten Fermifläche von Bi2212 demonstriert (d: untere Hälfte). Um diese zu verhindern, wird zuerst für einen Zwischenschritt die Phasenraum-Startwinkel-Kurve durch einen gleitenden Mittelwert geglättet (b: blaue Kurve), um anschließend durch iteratives Manipulieren der Startwinkel die simulierte Kurve dieser geglätteten Kurve anzunähern (b: rote Kurve). Die manipulierten Startwinkel sind in (c) gezeigt. Im Schnitt wird der Startwinkel dabei nur um ±0.05° geändert, was deutlich unterhalb der Detektorauflösung liegt. Das Ergebnis der durchgeführten Glättung ist in (d: obere Hälfte) gezeigt.

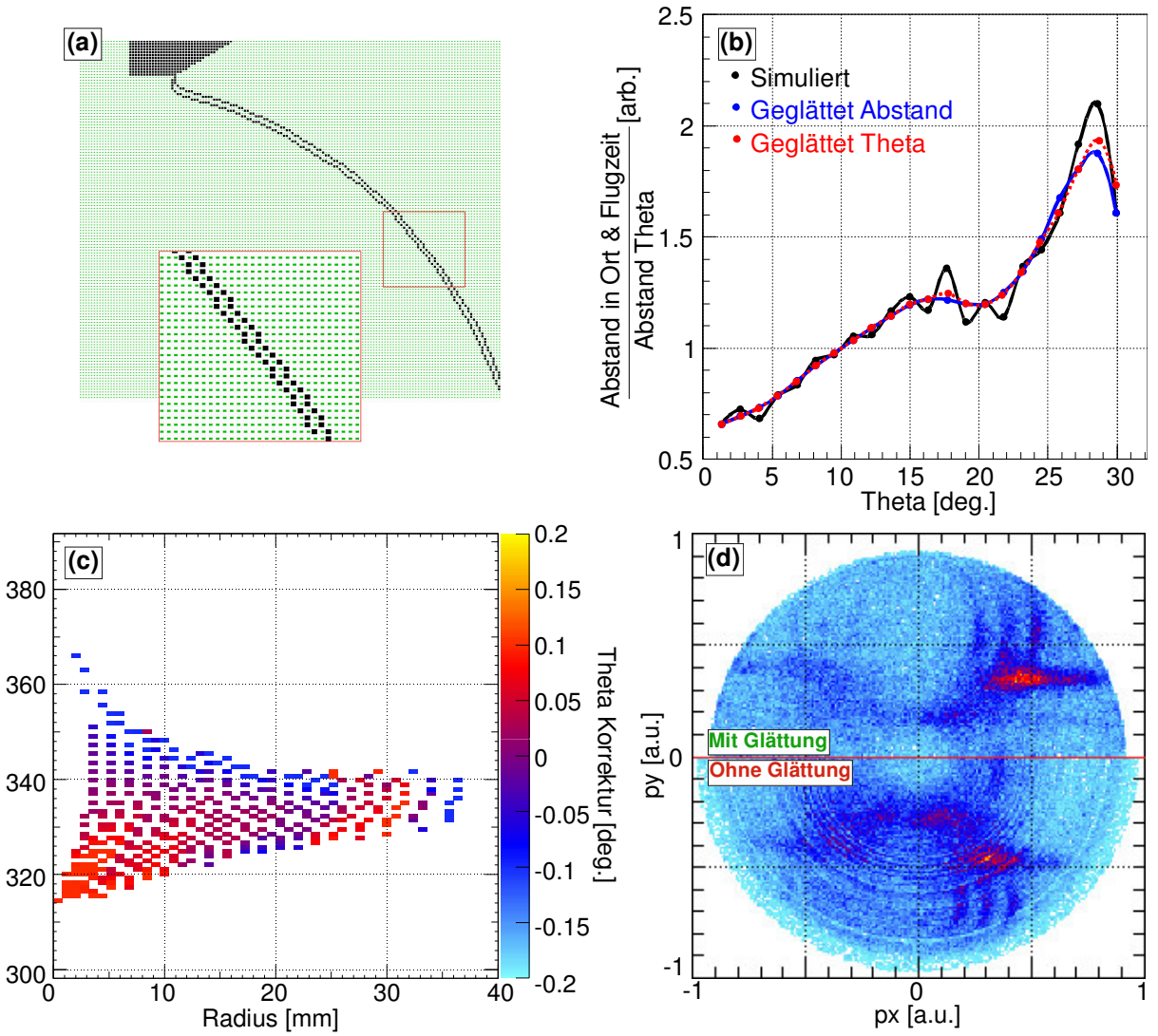


Abbildung A.12: Theta Glättung – a) Eintrittsgitter in SIMION. b) Phasenraum. c) Korrigierte Theta-Werte. d) Vorher-Nachher-Vergleich für 2D-Impulse.

A.3 Ergänzungen zur Auswertung

A.3.1 Supra- und normalleitende Messungen mit moderaten Raten

Ergänzende Spektren zu 5.3.5.3 *Supra- und normalleitende Messungen* auf Seite 136 mit strengeren Bedingungen für die Identifikation der direkten Emission von Cooper-Paaren.

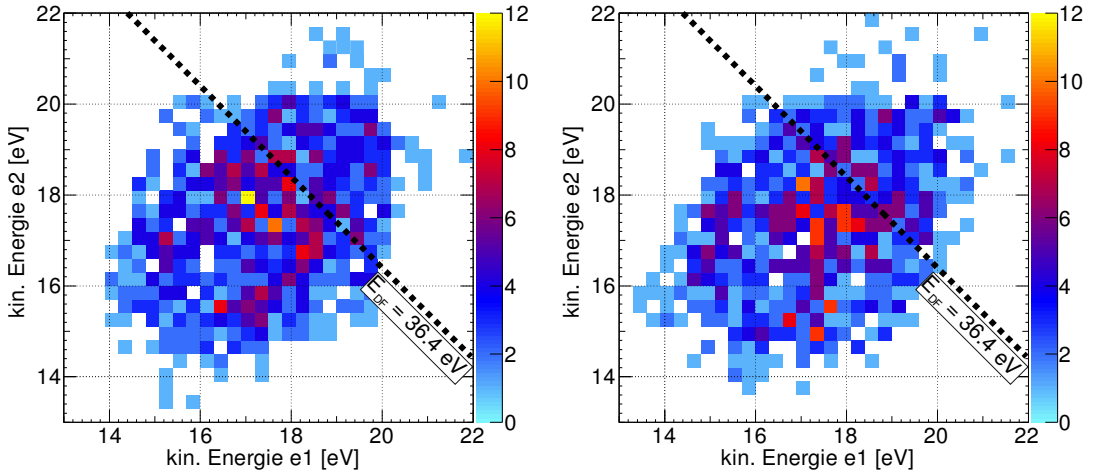


Abbildung A.13: E1-gegen-E2-Spektrum ohne zusätzliche Bedingungen. Links für die supraleitende, rechts für die normalleitende Phase.

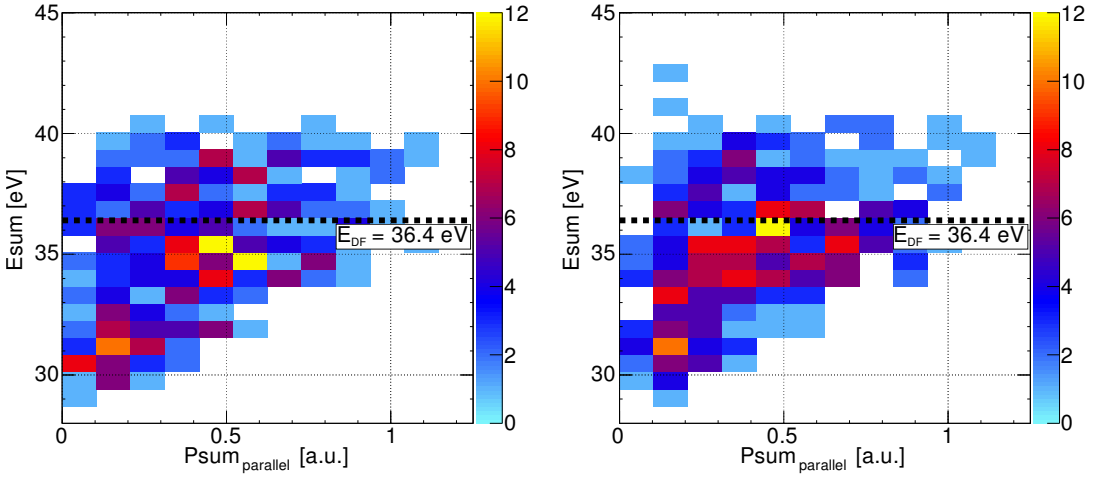


Abbildung A.14: Esum gegen $Psum_{parallel}$-Spektrum mit der Bedingung für gleiche Energieaufteilung $|dE| \leq 1$ eV unter den beiden Elektronen. Links für die supraleitende, rechts für die normalleitende Phase.

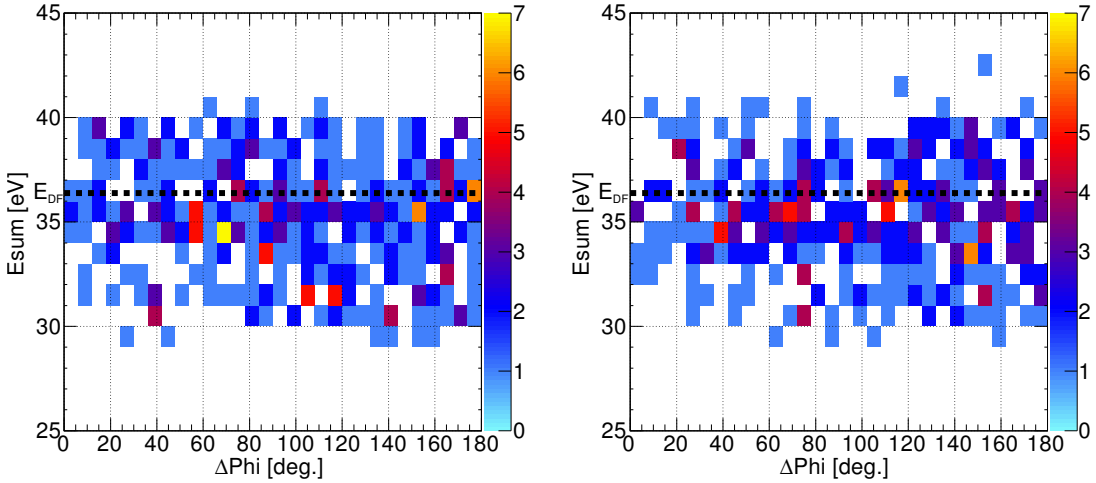


Abbildung A.15: Esum gegen ΔPhi-Spektrum (ΔPhi: Azimuthalwinkel zwischen den beiden Elektronen), in welchem eine Back-to-Back Emission bei großen ΔPhi-Werten (> 180°) knapp unterhalb der DPE-Fermikante (schwarze gestrichelte Linie) erwartet wird. Links für die supraleitende, rechts für die normalleitende Phase.

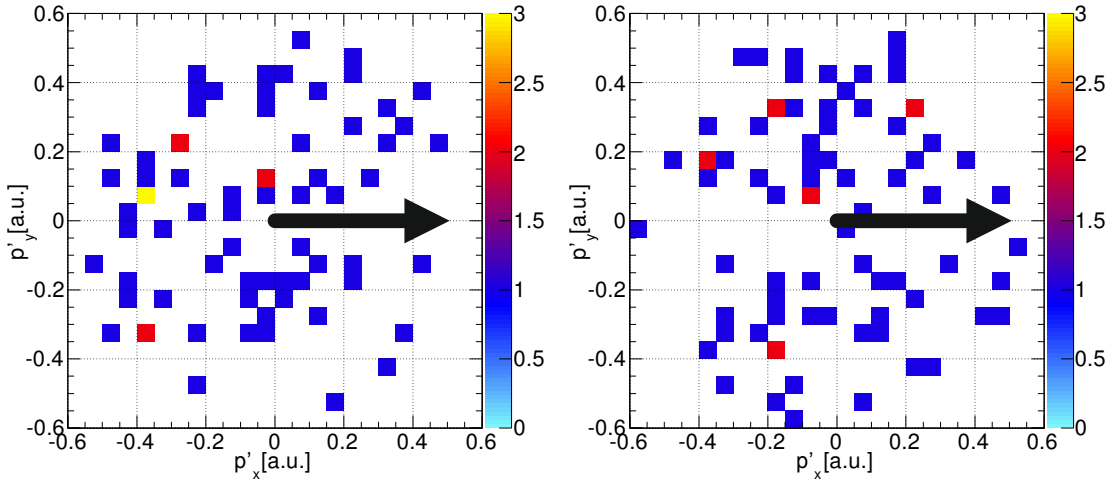


Abbildung A.16: Zwei Elektronen, deren Summenenergie in einem Bereich bis 1 eV unter der Fermikante liegt. Die Richtung eines Elektrons ist festgehalten (schwarzer Pfeil) und der Impuls des anderen Elektrons aufgetragen. Links für die supraleitende, rechts für die normalleitende Phase.

A.3.2 Hohe Raten Messungen

Ergänzende Spektren zu 5.3.5.4 *Messungen bei sehr hohen Raten* auf Seite 139, mit strengeren Bedingungen für die Identifikation der direkten Emission von Cooper-Paaren.

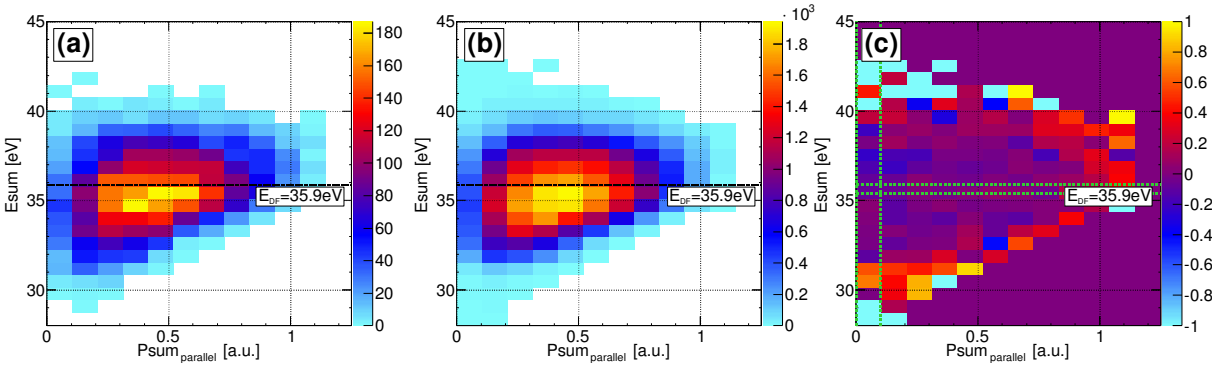


Abbildung A.17: Esum gegen $Psum_{parallel}$-Spektrum mit der Bedingung für gleiche Energieaufteilung |dE| < 1 eV. a) aufgenommene Daten, b) eventgemixte Daten und c) die gewichtete Differenz.

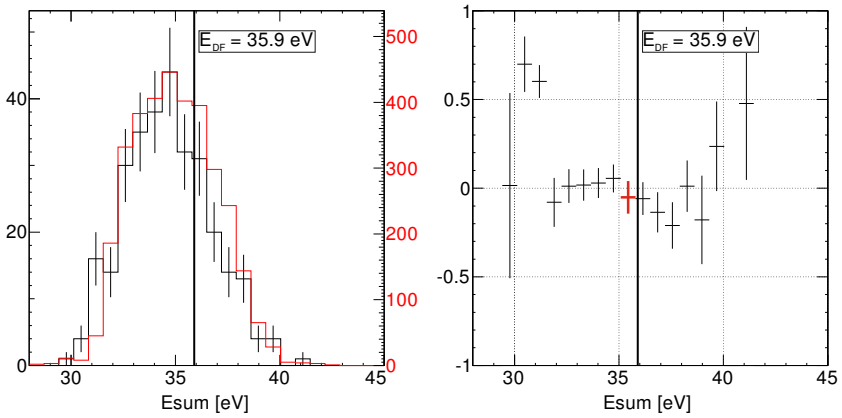


Abbildung A.18: Links) Die Projektion ($Psum_{parallel}$ < 0.1 a.u.) der aufgenommenen (Schwarz) und der eventgemixten (Rot) Daten. Rechts) Das gewichtete Differenzspektrum, in dem die direkte Emission von Cooper-Paaren knapp unterhalb der DPE-Fermikante (rot markiert) erwartet wird.

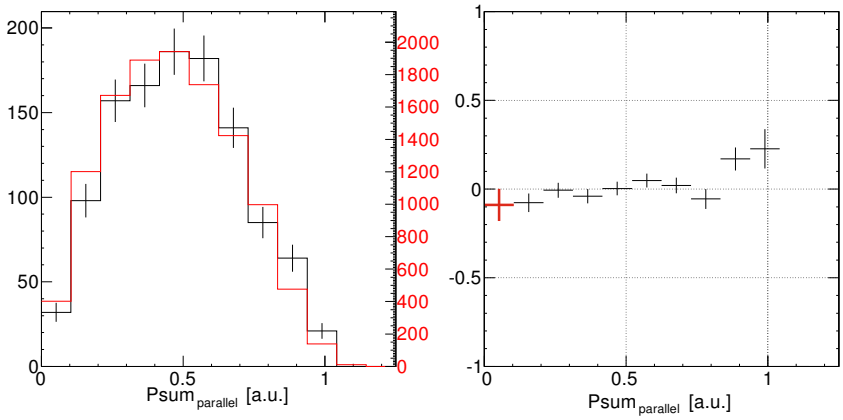


Abbildung A.19: Links) Die Projektion (34.9 eV ≤ Esum ≤ 35.9 eV) der aufgenommenen (Schwarz) und der eventgemixten (Rot) Daten. Rechts) Das gewichtete Differenzspektrum, in dem die direkte Emission von Cooper-Paaren bei kleinen $Psum_{parallel}$-Werten ($Psum_{parallel} \leq 0.1$ a.u., rot markiert) erwartet wird.

A.3.3 Negatives Extrem-Szenario

Statt die σ*-Signifikanz als positives Extrem-Szenario wie in 5.3.6 *Diskussion der Doppelphotoemissions-Messungen* zu definieren, kann auch ein negatives Extrem-Szenario definiert werden:

$$(E \cdot r \cdot t + F \cdot r^2 \cdot t) - \sigma^{**}(\sqrt{E \cdot r \cdot t} + \sqrt{F \cdot r^2 \cdot t}) = F \cdot r^2 \cdot t$$
$$\sigma^{**} = \frac{E \cdot r \cdot t}{\sqrt{E \cdot r \cdot t} + \sqrt{F \cdot r^2 \cdot t}} \qquad \text{(A.1)}$$

In diesem Fall hilft es wie in Abbildung A.20 rechts zu erkennen, bedingt mit einer höheren Aufnahmerate zu messen. Allerdings müssen bei der Wahl der Aufnahmerate auch weitere experimentelle Details berücksichtigt werden, wie zum Beispiel andere Ursprünge für falsche Doppelereignisse (Details siehe 5.3.4 *Qualität der Daten* auf Seite 119).

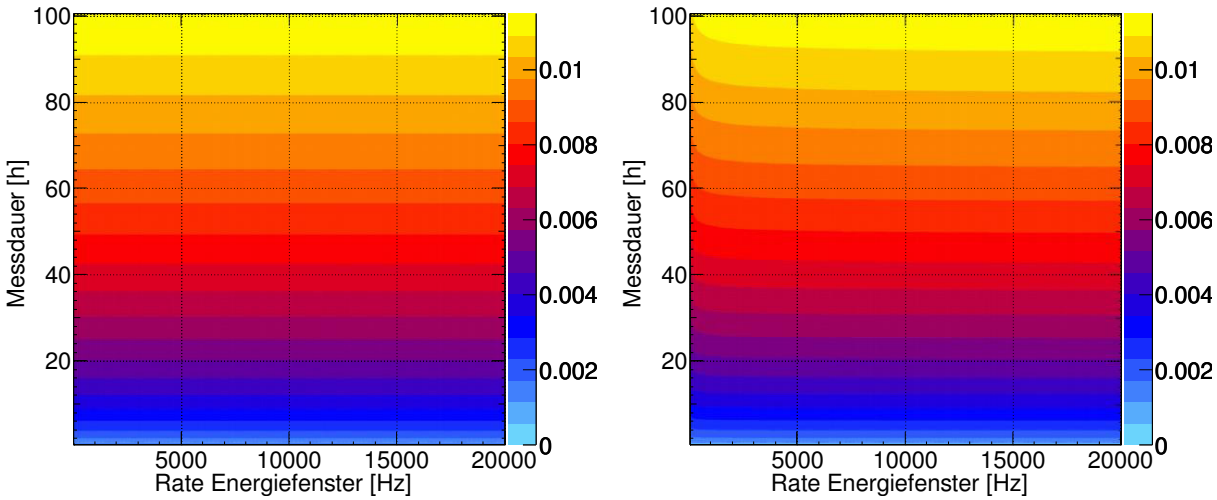


Abbildung A.20: Links die σ*-Signifikanz als positives Extrem-Szenario, indem die Aufnahmerate keinen Einfluss auf die erreichbare Signifikanz bewirkt. Rechts eine realistischere Definition der Signifikanz, bei der durch höhere Aufnahmeraten die erreichbare Signifikanz bedingt verbessert werden kann.

A.4 Fehlerrechnung

Die in den Histogrammen angegebenen Fehler entsprechen dem sog. „Wurzel-N-Gesetz“, wobei angenommen wird, dass die gemessen Ereignisse N pro Kanal (*Bin*) auch als Schätzung für den Mittelwert μ herangezogen werden können. Da bei einer großen Anzahl an Ereignissen N die für das Experiment gültige Poission-Verteilung einer Gauß-Verteilung ähnelt, für welche gilt

$$\mu = N, \qquad \sigma^2 = \mu \tag{A.2}$$

kann der Fehler bzw. die Standardabweichung des jeweiligen Kanals angeben werden mit:

$$\sigma = \sqrt{\mu} = \sqrt{N} \tag{A.3}$$

Dies bedeutet, dass bei einer erneuten Messung die Anzahl der Ereignisse im Kanal wieder mit 68.26%-Wahrscheinlichkeit im Intervall [N-σ] bis [N+σ] liegt (1σ-Signifikanz). Da bei diesem Experiment allerdings meist sehr kleine N vorliegen, ist die Frage, in wieweit das „Wurzel-N-Gesetz“ und die damit verbundenen Nährungen der Poisson-Verteilung als Gauß-Verteilung gültig ist. Dazu sind in Abbildung A.21 die Fehler nach dem „Wurzel-N-Gesetzt“ und nach der Poisson-Verteilung[103] für kleine N berechnet.

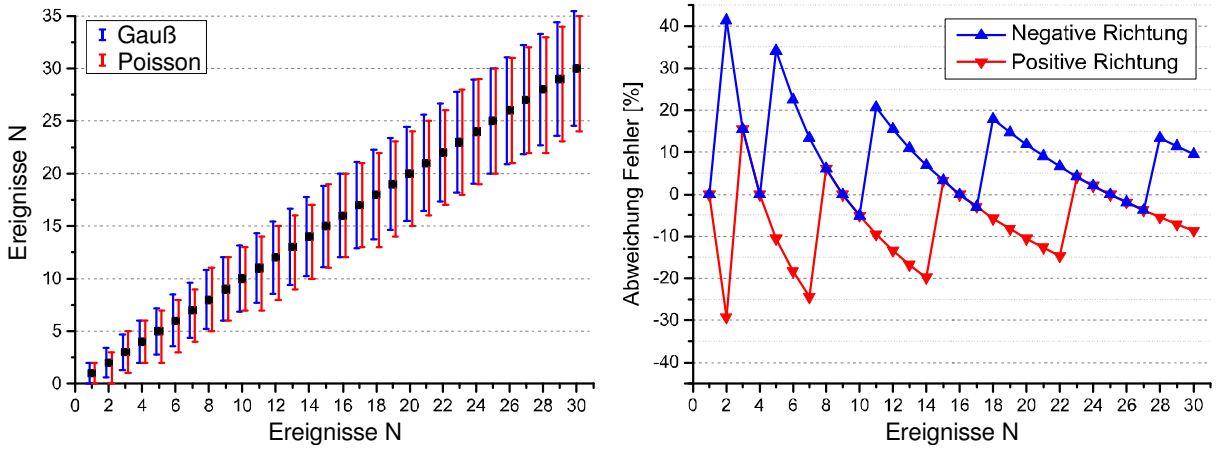


Abbildung A.21: Links) Fehler für N Einträge mit dem „Wurzel-N-Gesetz“ (Blau) und Poission-Verteilung (Rot) berechnet. Rechts) Prozentuale Abweichung der Fehler nach der Poission-Verteilung gegenüber den Fehlern nach dem „Wurzel-N-Gesetz“.

Wie man erkennt, sind die Fehler nach der Poisson-Verteilung erwartungsgemäß asymmetrisch. Dabei werden die Fehler in negativer Richtung nach dem „Wurzel-N-Gesetz“ bis zu 40% (für N = 2) unterschätzt. Aufgrund der großen relativen Fehlern bei kleinen N führt dies jedoch zu keiner qualitativen Änderung in der Auswertung.

[103] Die Grenzen wurden numerisch so berechnet, dass die Summe der Wahrscheinlichkeiten bis zu den Grenzen wieder mindestens 34.1% entspricht.

A.5 Aufgenommene Messungen

Aufgelistet sind die Messungen der beiden Strahlzeiten am Synchrotron SOLEIL 2013:

ID	Dauer [h]	Probenname	Probe	E_{photon} [eV]	Ekin	Epass	RR	Messung	Temp [mV]	Rate [Hz]	Größe [GB]
3001	05:16	CuPoly	CuPoly	40	0	0	0,00	Driftmode	304,4	15000	0,002
3002	00:37	CuPoly	CuPoly	40	100	100	1,00	Photonenpeak	304,4	15000	0,001
3003	00:10	NoName	Bi2212	70	41	30	1,37	Workfunction	304,4	20000	7
3004	00:10	NoName	Bi2212	46	41	30	1,37	Workfunction	304,4	20000	7
3005	00:24	CuPoly	CuPoly	45	41	30	1,37	Workfunction	304,4	15000	7
3006	00:22	CuPoly	CuPoly	44	41	40	1,03	Workfunction	304,4	15000	7
3007	04:40	NoName	Bi2212	44	41	40	1,03	Workfunction	304,4	15000	7
3008	00:27	NoName	Bi2212	43,9	41	40	1,03	Workfunction	304,4	15000	26,9
3009	01:11	CuPoly	CuPoly	43,9	41	40	1,03	Workfunction	304,4	15000	25,3
3050	00:06	NNRate	Bi2212	43,9	18	35	0,51	RateScan	35,7	10000	7,9
3051	00:06	NNRate	Bi2212	43,9	18	35	0,51	RateScan	35,7	20000	8,2
3052	00:18	NNRate	Bi2212	43,9	18	35	0,51	RateScan	35,7	5000	7,9
3053	00:30	NNRate	Bi2212	43,9	18	35	0,51	RateScan	35,7	2000	7,8
3054	00:58	NNRate	Bi2212	43,9	18	35	0,51	RateScan	35,7	1000	7,8
3055	08:43	NNRate	Bi2212	43,9	18	35	0,51	RateScan	35,7	500	7,8
3056	00:24	NNRate	Bi2212	43,9	41	40	1,03	Workfunction	35,7	300000	27,2
3057	00:36	CuPoly	CuPoly	43,9	41	40	1,03	Workfunction	35,7	300000	27,3
3100	01:49	NoName2	Bi2212	43,9	41	40	1,03	Fermi	35,7	15000	205
3101	00:03	NoName2	Bi2212	70,9	41	40	1,03	Corelevel	35,7	20000	2,8
3102	00:02	NoName2	Bi2212	71,4	41	40	1,03	Corelevel	35,7	20000	2,8
3103	00:03	NoName2	Bi2212	70,4	41	40	1,03	Corelevel	35,7	20000	2,8
3104	00:09	NoName2	Bi2212	69,9	41	40	1,03	Corelevel	35,7	20000	2,8
3105	00:03	NoName2	Bi2212	47	18	35	0,51	Corelevel	35,7	20000	6,9
3106	00:29	NoName2	BI2212	46,5	18	35	0,51	Corelevel	35,7	20000	2,7
3107	07:38	NoName2	Bi2212	43,4	18	35	0,51	Cooper	35,7	9000	52,5
3108	00:12	NoName2	Bi2212	49	18	35	0,51	Corelevel	35,7	20000	2,4
3109	01:30	NoName2	BI2212	49	18	35	0,51	Corelevel	35,7	20000	4
3110	00:06	NoName3	Bi2212	70,9	41	40	1,03	Corelevel	35,7	20000	6,8
3111	00:11	NoName3	Bi2212	70,4	41	40	1,03	Corelevel	35,7	20000	6,8
3112	02:44	NoName3	Bi2212	43,9	41	40	1,03	Fermi	35,7	15000	316
3113	00:07	NoName3	Bi2212	48,9	18	35	0,51	Corelevel	35,7	20000	6,8
3114	00:12	NoName3	Bi2212	47,9	18	35	0,51	Corelevel	35,7	20000	6,8
3115	00:23	NoName3	Bi2212	46,9	18	35	0,51	Corelevel	35,7	20000	6,8
3116	10:39	NoName3	Bi2212	43,4	18	35	0,51	Cooper	35,7	9000	72,7
3200	00:03	Probe X	Bi2212	48,9	18	35	0,51	Corelevel	31,4	15000	2,7
3201	00:03	Probe X	Bi2212	48,7	18	35	0,51	Corelevel	31,4	15000	2,7
3202	00:03	Probe X	Bi2212	48,4	18	35	0,51	Corelevel	31,4	15000	2,7
3203	00:24	Probe X	Bi2212	47,9	18	35	0,51	Corelevel	31,4	15000	2,2
3204	08:51	Probe X	Bi2212	43,4	18	35	0,51	Cooper	31,4	1950	264
3205	00:12	Probe X	Bi2212	71,5	46	30	1,53	Corelevel	34,1	20000	2,7
3206	01:04	Probe X	Bi2212	49,9	46	30	1,53	Fermi	34,1	20000	40,7
3300	00:03	R2	Bi2212	48,9	18	35	0,51	Corelevel	30,8	23000	2,7

3301	00:03	R2	Bi2212	48,4	18	35	0,51	Corelevel	30,8	23000	2,7
3302	00:05	R2	Bi2212	47,9	18	35	0,51	Corelevel	30,8	23000	2,7
3303	00:40	R2	Bi2212	43,4	18	35	0,51	Cooper	30,8	9000	1,4
3304	09:53	R2	Bi2212	43,4	18	35	0,51	Cooper	30,8	9000	400
3305	01:16	R2	Bi2212	48,9	18	35	0,51	Test	30,8	40000	31,6
3400	00:03	Rot	Bi2212	48,9	18	35	0,51	Corelevel	31,4	2000	2,7
3401	00:07	Rot	Bi2212	47,9	18	35	0,51	Corelevel	31,4	2000	2,7
3402	11:16	Rot	Bi2212	43,9	18	35	0,51	Cooper	31,4	9000	308
3410	01:49	CuPoly	CuPoly	22	18	35	0,51	Fermi	30,8	15000	13,6
3500	12:16	Probe 6	Bi2212	43,9	18	35	0,51	Cooper	122,6	1500	69,9
3501	00:05	Probe 6	Bi2212	48,9	18	35	0,51	Corelevel	122,6	20000	2,6
3502	00:04	Probe 6	Bi2212	50,4	18	35	0,51	Corelevel	122,6	20000	2,6
3503	00:05	Probe 6	Bi2212	48,4	18	35	0,51	Corelevel	122,6	20000	2,6
3504	00:30	Probe 6	Bi2212	46,9	18	35	0,51	Corelevel	122,6	20000	2,6
3600	00:03	Probe 3	Bi2212	70,9	41	40	1,03	Corelevel	132,9	20000	2,7
3601	00:24	Probe 3	Bi2212	69,4	41	40	1,03	Corelevel	132,9	20000	2,7
3602	00:19	Probe 3	Bi2212	43,9	41	40	1,03	Fermi	132,9	13000	13,1
3610	01:23	CuPoly	CuPoly	43,9	41	40	1,03	Fermi	132,9	13000	13,1
3611	00:27	CuPoly	CuPoly	37	33	40	0,83	Fermi	132,9	13000	26,3
3612	00:27	CuPoly	CuPoly	37	33	20	1,65	Fermi	132,9	13000	13
3603	00:03	Probe 3	Bi2212	48,9	18	35	0,51	Corelevel	132,9	20000	2,7
3604	00:21	Probe 3	Bi2212	47,4	18	35	0,51	Corelevel	132,9	20000	2,6
3605	07:35	Probe 3	Bi2212	43,9	18	35	0,51	Cooper	132,9	9000	239
3606	08:27	Probe 3	Bi2212	50	44	40	1,10	Fermi	21,1	8500	394
3607	00:03	Probe 3	Bi2212	60	30	30	1,00	Corelevel	132,9	20000	2,7
3608	00:10	Probe 3	Bi2212	59	30	30	1,00	Corelevel	132,9	20000	2,7
3609	02:21	Probe 3	Bi2212	67,5	30	30	1,00	Cooper	132,9	9000	116
3701	03:11	Probe 4	Bi2212	50	46	20	2,30	Fermi	31,9	9000	26,1
3702	00:04	Probe 4	Bi2212	59	30	30	1,00	Corelevel	31,9	20000	2,6
3703	00:15	Probe 4	Bi2212	58	30	30	1,00	Corelevel	31,9	20000	2,6
3704	03:56	Probe 4	Bi2212	67,5	30	30	1,00	Cooper	31,9	13000	215
3705	09:53	Probe 4	Bi2212	68,5	30	30	1,00	Cooper	31,9	13000	163
3800	00:04	Pb111	Pb111	63	18	35	0,51	Corelevel	46,6	2000	5,8
3801	00:16	Pb111	Pb111	63,5	41	40	1,03	Fermi	46,6	20000	5,5
3802	00:06	Pb111	Pb111	43,9	41	40	1,03	Fermi	46,6	15000	11
3803	00:16	CuPoly	CuPoly	43,9	41	40	1,03	Fermi	46,6	15000	3,9
3804	00:28	CuPoly	CuPoly	43,9	41	40	1,03	Fermi	46,6	15000	5,3
3805	05:50	Pb111	Pb111	50	21	25	0,84	DPE-Fermi	46,6	11000	19,1
4100	09:58	Amit 1	Bi2212F	44	41	20	2,05	Fermi	32,5	15000	466
4101	03:02	Amit 1	Bi2212F	44	15	30	0,50	Cooper	32,5	20000	174
4200	00:21	Amit 2	Bi2212F	44	15	30	0,50	Corelevel	33,0	20000	17,4
4201	00:46	Amit 2	Bi2212F	44	41	20	2,05	Fermi	33,0	16000	67,8
4202	01:33	Amit 2	Bi2212F	44	41	40	1,03	Fermi	33,0	21000	176
4203	04:01	Amit 2	Bi2212F	44,5	41	20	2,05	Fermi	33,0	24000	283
4204	07:21	Amit 2	Bi2212F	44,5	18	35	0,51	Cooper	33,0	1550	41,1
4205	06:58	Amit 2	Bi2212F	45,5	18	35	0,51	Cooper	33,0	1550	57,2

4206	01:24	Amit 2	Bi2212F	44	41	40	1,03	Fermi	30,3	20000	51,5
4207	01:56	Amit 2	Bi2212F	44	41	40	1,03	Fermi	81,9	20000	104
4208	04:23	Amit 2	Bi2212F	44,5	18	35	0,51	Cooper	81,9	1550	47,3
4209	00:12	Amit 2	Bi2212F	44,5	18	35	0,51	GroupRange	81,9	1550	0,001
4210	00:18	Amit 2	Bi2212F	44,5	18	35	0,51	RateScan	81,9	10000	8
4211	00:07	Amit 2	Bi2212F	44,5	18	35	0,51	RateScan	81,9	5000	8
4212	00:22	Amit 2	Bi2212F	44,5	18	35	0,51	RateScan	81,9	20000	8
4213	04:04	Amit 2	Bi2212F	44,5	300	50	6,00	Photonenpeak	81,9	1000	0,035
4300	02:30	Erb 1	YBCO	44	41	40	1,03	Fermi	33,0	25000	115
4301	05:37	Erb 1	YBCO	44,5	18	35	0,51	Cooper	33,0	2000	62,6
4302	06:05	Erb 1	YBCO	46	18	35	0,51	Cooper	33,0	2000	63,2
4303	04:42	Erb 1	YBCO	45,5	18	35	0,51	Cooper	100,9	2200	31,2
4401	00:15	Amir 1	Bi2212	44,5	16	30	0,53	Corelevel	33,0	23000	16
4402	05:05	Amir 1	Bi2212	44,5	41	40	1,03	Fermi	33,0	20000	347
4404	13:00	Amir 1	Bi2212	45	18	35	0,51	Cooper	24,9	1000	73,7
4405	02:14	Amir 1	Bi2212	44,5	16	40	0,40	Corelevel	21,6	17000	15,6
4406	08:15	Amir 1	Bi2212	45	18	35	0,51	Cooper	97,6	1100	39,2

Abkürzungen:

Bi2212	$Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$ - Kristallprobe
Bi2212F	$Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$ - Filmprobe
YBCO	$YBa_2Cu_3O_{7+\delta}$ - Kristallprobe
CuPoly	Polykristalline Kupferprobe
Pb111	Einkristalline Bleiprobe mit [111]-Oberflächenorientierung

B. Verzeichnisse

B.1 Literaturverzeichnis

[ACza] Achim Czasch - Private Kommunikation, (http://www.atom.uni-frankfurt.de/czasch/).

[AOSS94] P. Aebi, J. Osterwalder, P. Schwaller, L. Schlapbach, T. Mochiku, K. Kadowaki, Complete Fermi surface mapping of Bi2Sr2CaCu2O8+x (001): Coexistence of short range antiferromagnetic correlations and metallicity in the same phase. *Phys. Rev. Lett.* **72**, 2757–2760 (1994).

[AOSS95] P. Aebi, J. Osterwalder, P. Schwaller, L. Schlapbach, M. Shimoda, T. Mochiku, K. Kadowaki, Aebi et al. Reply: *Phys. Rev. Lett.* **74**, 1886–1886 (1995).

[AlgL] Fast RBF interpolation/fitting - ALGLIB, (http://www.alglib.net/interpolation/fastrbf.php).

[AlDe05] E. Altman, E. Demler, Correlated ARPES as a probe of dynamic pairing susceptibility. *Priv. Kommun.*, 2–3 (2005).

[Ande87] P. W. Anderson, The Resonating Valence Bond State in La2CuO4 and Superconductivity. *Science*. **235**, 1196–8 (1987).

[Ande06] P. W. Anderson, The “strange metal” is a projected Fermi liquid with edge singularities. *Nat. Phys.* **2**, 626–630 (2006).

[ABPS99] Y. Ando *et al.*, Resistive upper critical fields and irreversibility lines of optimally doped high-Tc cuprates. *Phys. Rev. B*. **60**, 12475–12479 (1999).

[BaLi99] A. Bansil, M. Lindroos, Importance of Matrix Elements in the ARPES Spectra of BISCO. *Phys. Rev. Lett.* **83**, 5154–5157 (1999).

[BaCS57] J. Bardeen, L. N. Cooper, J. R. Schrieffer, Theory of Superconductivity. *Phys. Rev.* **108**, 1175–1204 (1957).

[Bard50] J. Bardeen, Wave Functions for Superconducting Electrons. *Phys. Rev.* **80**, 567–574 (1950).

[BDPS90] S. Barrett, D. Durand, C. Pennington, C. Slichter, T. Friedmann, J. Rice, D. Ginsberg, Cu63 Knight shifts in the superconducting state of YBa2Cu3O7-δ (Tc=90 K). *Phys. Rev. B*. **41**, 6283–6296 (1990).

[Baue11] T. Bauer, *Doppelphotoemission an Cu (111) und Pb (111)* (2011).

[Bera98] J. Berakdar, Emission of correlated electron pairs following single-photon absorption by solids and surfaces. *Phys. Rev. B*. **58**, 9808–9816 (1998).

[BeSp64] C. Berglund, W. Spicer, Photoemission Studies of Copper and Silver: Theory. *Phys. Rev.* **136**, A1030–A1044 (1964).

[BESSY] Berliner Elektronen-Speicherring Gesellschaft für Synchrotronstrahlung - Synchrotron BESSY II, (http://www.helmholtz-berlin.de/).

[BeGr90] K. Bethge, G. Gruber, *Physik der Atome und Moleküle* (Wiley-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA, 1990).

[BZKE12] S. V Borisenko *et al.*, Angle-resolved photoemission spectroscopy at ultra-low temperatures. *J. Vis. Exp.*, 1–8 (2012).

[BSDG90] R. Böttner, N. Schroeder, E. Dietz, U. Gerhardt, W. Assmus, J. Kowalewski, Angle-resolved photoelectron spectra of (Bi1-xPbx)2Sr2CaCu2O8 and their line-shape analysis. *Phys. Rev. B*. **41**, 8679–8690 (1990).

[BuKl12] W. Buckel, R. Kleiner, *Supraleitung* (WILEY-VCH, ed. 7, 2012).

[BuKl12] W. Buckel, R. Kleiner, *Supraleitung* (Wiley-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA, Weinheim, Germany, 2012).

[Burl05] Burle Industries, “Procedures and Specifications - Subject MCP 75/32/8 D 60:1” (2005), (http://www.burle.com/).

[CaKa03] D. Cahen, a. Kahn, Electron Energetics at Surfaces and Interfaces: Concepts and Experiments. *Adv. Mater.* **15**, 271–277 (2003).

[CEER09] M. Cammarata *et al.*, Chopper system for time resolved experiments with synchrotron radiation. *Rev. Sci. Instrum.* **80**, 1–10 (2009).

[CODC01] C. T. Chantler, K. Olsen, R. A. Dragoset, J. Chang, A. R. Kishore, S. A. Kotochigova, D. S. Zucker, NIST X-Ray Form Factor, Atten., and Scattering Database. *US Dep. Commer. NIST* (2001) (http://www.nist.gov/pml/data/ffast/).

[CBHK12] C.-T. Chiang, A. Blättermann, M. Huth, J. Kirschner, W. Widdra, High-order harmonic generation at 4 MHz as a light source for time-of-flight photoemission spectroscopy. *Appl. Phys. Lett.* **101**, 071116 (2012).

[Coop56] L. Cooper, Bound Electron Pairs in a Degenerate Fermi Gas. *Phys. Rev.* **104**, 1189–1190 (1956).

[CPOTS] CPOTS - Charged Particle Optics: Theory and Simulation - Erasmus IP, (http://cpots.physics.uoc.gr/).

[crono] cronologic (2014), (http://www.cronologic.de/products/digitizer/ndigo5g/).

[Dama03] A. Damascelli, Angle-resolved photoemission studies of the cuprate superconductors. **75** (2003).

[DBCR96] H. Ding *et al.*, Electronic Excitations in Bi2Sr2CaCu2O8: Fermi Surface, Dispersion, and Absence of Bilayer Splitting. *Phys. Rev. Lett.* **76**, 1533–1536 (1996).

[DMJS00] R. Dörner, V. Mergel, O. Jagutzki, L. Spielberger, J. Ullrich, R. Moshammer, H. Schmidt-Böcking, Cold Target Recoil Ion Momentum Spectroscopy: a “momentum microscope” to view atomic collision dynamics. *Phys. Rep.* **330**, 95–192 (2000).

[Eins05] A. Einstein, Über einen die Erzeugung und Verwandlung des Lichtes betreffenden heuristischen Gesichtspunkt. *Ann. Phys.* **322**, 132–148 (1905).

[Fan45] H. Fan, Theory of Photoelectric Emission from Metals. *Phys. Rev.* **68**, 43–52 (1945).

[FeEa74] P. Feibelman, D. Eastman, Photoemission spectroscopy—Correspondence between quantum theory and experimental phenomenology. *Phys. Rev. B*. **10**, 4932–4947 (1974).

[FNRF89] J. Fink, N. Nucker, H. A. Romberg, J. C. Fuggle, Electronic structure studies of high-Tc superconductors by high-energy spectroscopies. *IBM J. Res. Dev.* **33**, 372–381 (1989).

[Fouc08] L. Foucar, *Auslese von Delaylinedetektoren mit Hilfe von Transientenrekordern* (2008).

[Fröh50] H. Fröhlich, Theory of the Superconducting State. I. The Ground State at the Absolute Zero of Temperature. *Phys. Rev.* **79**, 845–856 (1950).

[GoCa34] C. . Gorter, H. Casimir, On supraconductivity I. *Physica*. **1**, 306–320 (1934).

[GoWi84] R. R. Goruganthu, W. G. Wilson, Relative electron detection efficiency of microchannel plates from 0–3 keV. *Rev. Sci. Instrum.* **55**, 2030 (1984).

[Groo72] O. Groot, *Surface Studies* (Springer Berlin, 1972).

[GVLP95] C. Gu *et al.*, Superconducting energy gap in Bi1.8Pb0.4Sr2Ca2Cu3O10+δ studied by photoemission spectroscopy. *Phys. Rev. B*. **51**, 1397–1400 (1995).

[Hama12] HAMAMATSU, “Specification for F1942-04X (70)” (2012), (http://www.hamamatsu.com).

[HSWM96] J. Harris, Z. Shen, P. White, D. Marshall, M. Schabel, J. Eckstein, I. Bozovic, Anomalous superconducting state gap size versus Tc behavior in underdoped Bi2Sr2Ca1-xDyxCu2O8+δ. *Phys. Rev. B*. **54**, R15665–R15668 (1996).

[HVHD14] M. Hashimoto, I. M. Vishik, R.-H. He, T. P. Devereaux, Z.-X. Shen, Energy gaps in high-transition-temperature cuprate superconductors. *Nat. Phys.* **10**, 483–495 (2014).

[HJSC08] M. Hattass *et al.*, Dynamics of two-electron photoemission from Cu(111). *Phys. Rev. B*. **77**, 1–9 (2008).

[Hatt04] M. Hattass, *Koinzidenz-Spektroskopie an Oberflächen : Zwei-Elektronen-Photoemission von Cu (111) Dissertation* (2004).

[HOKM14] K. Holldack *et al.*, Single bunch X-ray pulses on demand from a multi-bunch synchrotron radiation source. *Nat. Commun.* **5**, 4010 (2014).

[Hubb55] J. Hubbard, The Dielectric Theory of Electronic Interactions in Solids. *Proc. Phys. Soc. Sect. A*. **68**, 976–986 (1955).

[Hüfn03] S. Hüfner, *Photoelectron Spectroscopy* (Springer Berlin, ed. 3, 2003).

[HCTS14] M. Huth, C.-T. Chiang, A. Trützschler, F. O. Schumann, J. Kirschner, W. Widdra, Electron pair emission detected by time-of-flight spectrometers: Recent progress. *Appl. Phys. Lett.* **104**, 061602 (2014).

[IORT98] T. Ishida, K. Okuda, A. Rykov, S. Tajima, I. Terasaki, In-plane anisotropy of vortex-lattice melting in large YBa2Cu3O7 single crystals. *Phys. Rev. B*. **58**, 5222–5225 (1998).

[KaSc90] A. Kampf, J. Schrieffer, Spectral function and photoemission spectra in antiferromagnetically correlated metals. *Phys. Rev. B*. **42**, 7967–7974 (1990).

[Kitt06] C. Kittel, *Einführung in die Festkörperphysik* (2006).

[Klau96] W. Klaus, *Physik der Teilchenbeschleuniger* (B.G. Teubner, Stuttgart, 1996).

[Kord15] A. A. Kordyuk, Pseudogap from ARPES experiment: three gaps in cuprates and topological superconductivity (2015) (http://arxiv.org/abs/1501.04154).

[KoBe07] K. A. Kouzakov, J. Berakdar, Mechanisms of superconductivity studied by two-particle emission. *J. Electron Spectros. Relat. Phenomena*. **161**, 121–124 (2007).

[KoBe03] K. Kouzakov, J. Berakdar, Photoinduced Emission of Cooper Pairs from Superconductors. *Phys. Rev. Lett.* **91**, 257007 (2003).

[KrPi88] H. Krakauer, W. Pickett, Effect of bismuth on high-T_{c} cuprate superconductors: Electronic structure of Bi_{2}Sr_{2}CaCu_{2}O_{8}. *Phys. Rev. Lett.* **60**, 1665–1667 (1988).

[LSMB08] H. Lin, S. Sahrakorpi, R. S. Markiewicz, A. Bansil, Raising Bi-O bands above the Fermi energy level of hole-doped Bi 2 Sr 2 CaCu 2 O 8+. **1**, 2–5 (2008).

[LiNM13] X. Liu, C. Nicolas, C. Miron, Design of a lens table for a double toroidal electron spectrometer Design of a lens table for a double toroidal electron spectrometer. **033105** (2013), doi:10.1063/1.4794440.

[LSDS94] A. G. Loeser, Z.-X. Shen, D. S. Dessau, W. E. Spicer, Photoemission studies of the Bi2Sr2Ca1Cu2O valence band. *J. Electron Spectros. Relat. Phenomena*. **66**, 359–385 (1994).

[LoLo35] F. London, H. London, The Electromagnetic Equations of the Supraconductor. *Proc. R. Soc. A Math. Phys. Eng. Sci.* **149**, 71–88 (1935).

[MagShield] Magnetic Shields Ltd., (http://www.magneticshields.co.uk/de/).

[LGSS10] Y. Lubashevsky, a. Garg, Y. Sassa, M. Shi, a. Kanigel, Insensitivity of the superconducting gap to variation in Tc in Zn-substituted Bi2212, 8–11 (2010).

[LuMa90] H. L. Luo, Y. Mai, Thin Films of the High-Tc Bi-Sr-Ca-Cu Oxide System -A Brief Review. *Chinese J. Phys.* **28**, 443–452 (1990).

[LyOl05] D. W. Lynch, C. G. Olson, *Photoemission Studies of High-Temperature Superconductors* (Cambridge University Press, 2005).

[LKDE90] K. Lyons, J. Kwo, J. Dillon, G. Espinosa, M. McGlashan-Powell, A. Ramirez, L. Schneemeyer, Search for circular dichroism in high-T_{c} superconductors. *Phys. Rev. Lett.* **64**, 2949–2952 (1990).

[MNDX10] S. Machida, Y. Nakayama, S. Duhm, Q. Xin, A. Funakoshi, N. Ogawa, S. Kera, N. Ueno, H. Ishii, Highest-Occupied-Molecular-Orbital Band Dispersion of Rubrene Single Crystals as Observed by Angle-Resolved Ultraviolet Photoelectron Spectroscopy. *Phys. Rev. Lett.* **104**, 156401 (2010).

[MSHS00] A. Mans *et al.*, Experimental proof of a structural origin for the shadow Fermi surface in Bi 2 Sr 2 CaCu 2 O 8+. **1**, 1–5 arXiv:cond-mat/0508127v2.

[MSLL05] R. S. Markiewicz, S. Sahrakorpi, M. Lindroos, H. Lin, a. Bansil, One-band tight-binding model parametrization of the high- T_{c} cuprates including the effect of k_{z} dispersion. *Phys. Rev. B*. **72**, 054519 (2005).

[MaYF88] S. Massidda, J. Yu, A. J. Freeman, Electronic structure and properties of Bi2Sr2CaCu2O8, the third high-Tc superconductor. *Phys. C Supercond.* **152**, 251–258 (1988).

[MDKK05] H. Matsuda, H. Daimon, M. Kato, M. Kudo, Approach for simultaneous measurement of two-dimensional angular distribution of charged particles: Spherical aberration correction using an ellipsoidal mesh. *Phys. Rev. E*. **71**, 066503 (2005).

[Maxw50] E. Maxwell, Isotope Effect in the Superconductivity of Mercury. *Phys. Rev.* **78**, 477–477 (1950).

[MMCM82] R. G. Musket, W. McLean, C. A. Colmenares, D. M. Makowiecki, W. J. Siekhaus, Preparation of atomically clean surfaces of selected elements: A review. *Appl. Surf. Sci.* **10**, 143–207 (1982).

[Nobel] Nobel Prize, (http://www.nobelprize.org).

[NoPé03] M. R. Norman, C. Pépin, The electronic nature of high temperature cuprate superconductors. *Reports Prog. Phys.* **66**, 1547–1610 (2003).

[NRDC95] M. Norman, M. Randeria, H. Ding, J. Campuzano, Phenomenological models for the gap anisotropy of Bi2Sr2CaCu2O8 as measured by angle-resolved photoemission spectroscopy. *Phys. Rev. B*. **52**, 615–622 (1995).

[Ogg46] R. Ogg, Bose-Einstein Condensation of Trapped Electron Pairs. Phase Separation and Superconductivity of Metal-Ammonia Solutions. *Phys. Rev.* **69**, 243–244 (1946).

[Oren00] J. Orenstein, Advances in the Physics of High-Temperature Superconductivity. *Science (80-.).* **288**, 468–474 (2000).

[OKLL13] R. Ovsyannikov, P. Karlsson, M. Lundqvist, C. Lupulescu, W. Eberhardt, a. Föhlisch, S. Svensson, N. Mårtensson, Principles and operation of a new type of electron spectrometer – ArTOF. *J. Electron Spectros. Relat. Phenomena*. **191**, 92–103 (2013).

[PeMa94] J. Pendry, L. Martín-Moreno, Energy loss by charged particles in complex media. *Phys. Rev. B*. **50**, 5062–5073 (1994).

[Pfei13] Pfeiffer Vacuum, *Vacuum Technology Book* (Pfeiffer V., 2013).

[Pléiades] Beamline PLÉIADES Soleil - Private Kommunikation, (http://www.synchrotron-soleil.fr/Recherche/LignesLumiere/PLEIADES).

[PTBL91] M. R. Presland, J. L. Tallon, R. G. Buckley, R. S. Liu, N. E. Flower, General trends in oxygen stoichiometry effects on Tc in Bi and Tl superconductors. *Phys. C Supercond.* **176**, 95–105 (1991).

[RDCB95] M. Randeria *et al.*, Momentum Distribution Sum Rule for Angle-Resolved Photoemission. *Phys. Rev. Lett.* **74**, 4951–4954 (1995).

[RSWN50] C. Reynolds, B. Serin, W. Wright, L. Nesbitt, Superconductivity of Isotopes of Mercury. *Phys. Rev.* **78**, 487–487 (1950).

[RWDW10] G. van Riessen, Z. Wei, R. S. Dhaka, C. Winkler, F. O. Schumann, J. Kirschner, Direct and core-resonant double photoemission from Cu(001). *J. Phys. Condens. Matter*. **22**, 092201 (2010).

[RoentDek] RoentDek Handels GmbH, (http://www.roentdek.com/publications/detectors/).

[ROOT] ROOT - Data Analysis Framework, (https://root.cern.ch).

[Saxe12] A. K. Saxena, *High-Temperature Superconductors* (Springer, Dordrecht, 2012).

[Scha54] M. Schafroth, Superconductivity of a Charged Boson Gas. *Phys. Rev.* **96**, 1149–1149 (1954).

[Sche36] O. Scherzer, Über einige Fehler von Elektronenlinsen. *Zeitschrift für Phys.* **101**, 593–603 (1936).

[SKRO94] H. Shaked, P. M. Keane, J. C. Rodriguez, F. F. Owen, R. L. Hitterman, J. D. Jorgensen, *Crystal Structures of the High-Tc Superconducting Copper-Oxides* (1994).

[SDWK93] Z.-X. Shen *et al.*, Anomalously large gap anisotropy in the a-b plane of Bi2Sr2CaCu2O8+δ. *Phys. Rev. Lett.* **70**, 1553–1556 (1993).

[ShDe95] Z.-X. Shen, D. S. Dessau, Electronic structure and photoemission studies of late transition-metal oxides — Mott insulators and high-temperature superconductors. *Phys. Rep.* **253**, 1–162 (1995).

[SIMDALEE2] SIMDALEE2 - Sources, Interaction with Matter, Detection and Analysis of Low Energy Electrons, (http://www.simdalee2.net/).

[SIMION] SIMION® Ion and Electron Optics Simulator, (http://simion.com/).

[SOLEIL] Source optimisée de lumière d'énergie intermédiaire du LURE - Synchrotron SOLEIL, (http://www.synchrotron-soleil.fr/).

[SPECS] SPECS Surface Nano Analysis GmbH: Sven Mähl - Private Kommunikation, (http://www.specs.de).

[StMP90] M. Di Stasio, K. Müller, L. Pietronero, Nonhomogeneous charge distribution in layered high-T_{c} superconductors. *Phys. Rev. Lett.* **64**, 2827–2830 (1990).

[XRay] Filter Transmission, (http://henke.lbl.gov/optical_constants/filter2.html).

[ThVa09] A. Thompson, D. Vaughan, X-ray Data Booklet. *J. Synchrotron Radiat.* **8** (2009), , doi:10.1107/S090904950100807X.

[Time87] Time Magazine, Time Magazine - Wiring the Future The Superconductivity Revolution (1987).

[TAIM97] J. Tranquada, J. Axe, N. Ichikawa, A. Moodenbaugh, Y. Nakamura, S. Uchida, Coexistence of, and Competition between, Superconductivity and Charge-Stripe Order in La1.6-xNd0.4SrxCuO4. *Phys. Rev. Lett.* **78**, 338–341 (1997).

[Vojt02] M. Vojta, Quantenphasenübergänge – „Schmelzen" am Temperaturnullpunkt. *Phys. J.*, 55–60 (2002).

[Voss11] S. Voss, *Koinzidente Photoelektronenspektroskopie an Supraleitern* (2011).

[Wall11] R. Wallauer, *Untersuchung von Korrelationseffekten in der Doppelphotoemission von normal-und supraleitendem Blei* (2011).

[WVFB12] R. Wallauer *et al.*, Momentum spectrometer for electron-electron coincidence studies on superconductors. *Rev. Sci. Instrum.* **83**, 103905 (2012).

[ZhRi88] F. Zhang, T. Rice, Effective Hamiltonian for the superconducting Cu oxides. *Phys. Rev. B*. **37**, 3759–3761 (1988).

[ZWYB05] X. J. Zhou, B. Wannberg, W. L. Yang, V. Brouet, Z. Sun, J. F. Douglas, D. Dessau, Z. Hussain, Z.-X. Shen, Space charge effect and mirror charge effect in photoemission spectroscopy. *J. Electron Spectros. Relat. Phenomena*. **142**, 27–38 (2005).

B.2 Tabellenverzeichnis

Tabelle 2.1 *Probenparameter der Kuprat-Hochtemperatursupraleiter und Blei.* Seite 21
Tabelle 2.2 *Auflistung mit Hochtemperatursupraleitung verbundener Theorien.* Seite 24
Tabelle 3.1 *Vakuumsystem der Streukammer* Seite 44
Tabelle 3.2 *Probenpräparations-Prozeduren.* Seite 50
Tabelle 3.3 *Parameter der Synchrotronanlagen (BESSY II und SOLEIL)* Seite 55
Tabelle 3.4 *Flugzeitauflösung des Experiments.* Seite 75
Tabelle 4.1 *Übersicht der eingesetzten Doppelfilter.* Seite 81
Tabelle 4.2 *Übersicht der Rekonstruktionsmethoden.* Seite 83
Tabelle 4.3 *Geschwindigkeiten der verschiedenen Konvertierungen.* Seite 90
Tabelle 5.1 *Zahlenbeispiele zum Nachweis der DPE-Fermikante.* Seite 145

B.3 Verwendete Abkürzungen (Glossar)

ADC	*Analog-to-Digital-Converter* – Transientenrekorder
ARPES	*Angle-resolved photoemission spectroscopy* – Winkelaufgelöste Photoemissionsspektroskopie
BESSY	Berliner Elektronen-Speicherring Gesellschaft für Synchrotronstrahlung - (Synchrotron BESSY II)
CFD	Constant Fraction Diskriminator
DOS	*Density Of States* - Zustandsdichte
DPE	Double Photo emission – Doppelphotoemission
EDC	Energy Distribution Curves
FAMP	*Fast-Amplifier* – Schneller Verstärker
FWHM	*Full width at half maximum* – Halbwertsbreite
IKF	Institut für Kernphysik Frankfurt
LDA	*Local Density Approximation* - lokale Dichtenäherung
LEED	*Low Energy Electron Diffraction*
MCP	*Microchannel plate* - Mikrokanalplatte
MDC	*Momentum Distribution Curves*
NEG	*Non-Evaporable Getter*
PC	Personal Computer
PES	*Photoemission spectroscopy* – Photoemissionsspektroskopie
PT	Pulstransformator
RGA	*Residual Gas Analyser* - Restgas Analysator
SOLEIL	Source optimisée de lumière d'énergie intermédiaire du LURE - (Synchrotron SOLEIL)
SPE	*Single Photo emission* – Einfachphotoemission
STM	*Scanning Tunneling Microscope* - Rastertunnelmikroskop
TDC	*Time-to-Digital-Converter*
TSP	Titan-Sublimationspumpe
UHV	Ultrahochvakuum (10^{-12} < UHV < 10^{-7} mBar)

C. Lebenslauf

Tobias Benjamin Bauer

Geboren am	30. Mai 1986 in Frankfurt am Main

Schulbildung

1992 – 1996	Grundschule Biebertal, Biebergemünd
1996 – 2002	Realschule Alteburg, Biebergemünd
2002 – 2005	Berufliches Gymnasium Gelnhausen (Schwerpunkt Datenverarbeitung) Abitur - Gesamtnote: 2,3

Hochschulausbildung

2006	Beginn des Physik-Studiums an der JWG Universität Frankfurt am Main
2010	Bachelor in Physik, Bachelorarbeit: 1,0 / Gesamtnote: 2,3
2011	Master in Physik, Masterarbeit: 1,0 / Gesamtnote 1,3
09 / 2011	Beginn der Promotion

Hochschullehrer

Prof. Dr. H. Appelshäuser, Prof. Dr. C. Blume, Priv. Doz. Dr. G. Bruls, Prof. Dr. H. Büsching, Prof. Dr. R. Dörner, Dr. G. Franchetti, Dr. I. Fröhlich, Prof. Dr. C. Greiner, Prof. Dr. L. Habermann, Prof. Dr. W. Hofstetter, Prof. Dr. M. Huth, Priv. Doz. Dr. T. Jahnke, Priv. Doz. Dr. I. Kath, Prof. Dr. M. Lang, Prof. Dr. J. Maruhn, Prof. Dr. J. Müller, Prof. Dr. H. Podlech, Prof. Dr. U. Ratzinger, Prof. Dr. H. Roskos, Prof. Dr. G. Rümpker, Prof. Dr. U. Schmidt, Prof. Dr. H. Schmidt-Böcking, Prof. Dr. J. Stroth, Prof. Dr. R. Valenti

Forschungsaufenthalte
(Aufenthaltsdauer in Wochen)

ALS (Synchrotron), Berkeley, USA
03/2011 (3), 03/2014 (3)

BESSY II (Synchrotron), Berlin, Deutschland
11/2009 (1), 11/2010 (4), 11/2012 (4), 05/2013 (3), 07/2014 (1)

FLASH (Free-electron Laser), Hamburg, Deutschland
10/2014 (1)

SACLA (Free Electron Laser), Hyogo, Japan
11/2014 (3)

SOLEIL (Synchrotron), Paris, Frankreich
07/2012 (3), 06/2013 (3), 10/2013 (3)

Technion (Prof. Amit Kanigel), Haifa, Isreal
(Minerva Short-Term Reseach Grant)
02/2014 (4)