Universität Frankfurt - Institut für Kernphysik

Photoelektronen Spektroskopie mit ultrakurzen Laserpulsen an supraleitendem Blei (111)

Bachelor-Arbeit

Tobias Benjamin Bauer Januar 2010

Inhaltsverzeichnis

1	Ein	Einleitung					
2	Phy	/sikali	scher Hintergrund	2			
	2.1	Sup	raleitung	2			
	2.1	.1	BCS-Theorie	3			
	2.1	.2	Signaturen in der Doppelphotoemission	5			
3	Exp	erime	entelle Realisierung	6			
	3.1	Expe	erimenteller Überblick	6			
	3.2 Flu		zeitspektrometer und Detektor (Coltrims)	6			
	3.3	Elek	tronik im Überblick	10			
	3.4	Bere	echnung der Impulse	10			
	3.5	Eich	ung des Detektors	11			
	3.6	Vak	uum	. 12			
	3.6	.1	Vakuum Technik	. 12			
	3.6	.2	Ausheizen	13			
	3.7	Prot	penpräparation	15			
	3.8	Küh	lung	15			
	3.9	Nac	hweis der Supraleitung	15			
	3.9	.1	Motivation	15			
	3.9	.2	Theorie	15			
	3.9	.3	Experimentelle Umsetzung	16			
	3.9	.4	Ergebnisse	18			
	3.10 La		er-System am IKF	20			
	3.1	0.1	Oszillator	20			
3.1		0.2	Verstärker	20			
	3.1	0.3	Laserpulse an der Probe	21			
4	Aus	swerti	ung und Diskussion	22			
	4.1	Auf	genommenen Spektren	22			
	4.2	Ioni	sation in starken Laserfeldern	26			
	4.2	.1	Coulomb Abstoßung	27			
	4.2	.2	Thermische Emission	27			
	4.2	.3	Multiphotonenprozess	28			
	4.2	.4	Tunnelionisation	29			
	4.2	.5	Oberflächenplasmonen und Oberflächen Rauheit	31			
4.2		.6	Thermische Emission durch lokalisierte Oberflächenplasmonen an Störstellen	33			

	4.3	Cooper-Paare	33
5	Zusa	ammenfassung und Ausblick	34
6	Abb	ildungsverzeichnis	35
7	Lite	raturverzeichnis	37
8	Anh	ang	39
	8.1	Quad-Anode	39
	8.2	Photoemission von Oberflächen	40
	8.3	Tests mit dem Oszillator	44
	8.4	Abstract	45

1 Einleitung

Der Photoelektrische Effekt -oder einfach Photoeffekt - zählt zu den wichtigsten Entdeckungen, der modernen Physik. Unter dem Photoeffekt versteht man zunächst das Herauslösen von Elektronen aus einem Material durch die Einstrahlung von Licht. Als Erster beschrieb W. Hallenwachs (1888) dieses Phänomen. Er bestrahlte eine negativ geladene Metallplatte mit ultraviolettem Licht und beobachtete eine langsame Entladung. Weiterführende Experimente zeigten, dass die kinetische Energie der herausgelösten Elektronen nicht von der Lichtintensität, sondern nur von der Frequenz des Lichtes abhängig ist. Diese Beobachtung führte bei Albert Einstein zu der Interpretation von Licht als einzelne Energiequanten [Alb05] mit der Energie E = hv (h: Planksche Wirkungsquantum, v: Frequenz des Lichtes) führte. Für diese Erkenntnis erhielt er 1921 den Nobelpreis.

Nachdem anfangs das Interesse der Wissenschaft vor allem der Natur des Lichtes galt, steht heute vor allem die Energieverteilung der emittierten Elektronen im Mittelpunkt des Untersuchungen. Es hat sich gezeigt, dass die elektronische Struktur der Materialien wesentlichen Einfluss auf die Emissionscharakteristik der Elektronen hat. Somit hat man durch Photoelektronenspektroskopie, einen direkten experimentellen Zugang zur Bandstruktur der Festkörper gefunden. Mit modernen energie- und winkelauflösenden Spektrometern lässt sich heute sogar die Fermioberfläche der Elektronen im Festkörper darstellen.

Frühere Experimente zielten dabei vor allem auf die stationären Eigenschaften wie Energieeigenwerte und Zustandsdichten der Elektronen ab. Heute hingegen spielen dynamische Korrelationseffekte bei der Beschreibung von Photoemissionsspektren eine immer größere Rolle. Da es auf dem Gebiet an einer ähnlich erfolgreichen Messmethode wie der Coltrims-Technik bei Gasphasen-Targets, für die Untersuchung von Korrelationseffekten fehlte, hat Mirko Hattass in seiner Doktorarbeit [Mir04] die von der Frankfurter Atom-Physik Gruppe entwickelte Coltrims-Technik [Dör00], für die Untersuchung von Festkörpern angepasst. Ziel war es, alle Emissionsgeometrien (2π -Raumwinkel) gleichzeitig abzudecken, um gezielt Korrelationseffekte in Zwei-Elektronen-Photon-Prozessen zu untersuchen.

Eine naheliegende Anwendung dieses neuen Aufbaus ist die Untersuchung von Korrelationen in Supraleitern (Cooper-Paare). Theoretisch gestützt von einem Theoriepapier von Beraktar et al. [KAK03], begannen Stefan Voss (2005) und Robert Wallauer (2006) in ihren Doktorarbeiten mit dem Neuaufbau einer ähnlichen Kammer und der gezielten Suche nach Cooper-Paaren. Zur Ionisation wurde hochenergetische Synchrotronstrahlung verwendet.

Seitdem es technisch durch immer kürzere Laserpulse möglich geworden ist, sehr hohe Momentanintensität zu generieren, hat sich gezeigt dass die kinetische Energie der ionisierten Elektronen - im Vergleich zu früheren Annahmen - nicht ausschließlich von der Lichtfrequenz abhängt. So zeigen sich bei hohen Lichtintensitäten neue Effekte, wie Multiphotonen- oder Tunnelionisation, die auch direkt von der Lichtintensität abhängen.

In dieser Bachelor Arbeit wird nun die aktuelle Kammer von Stefan Voss und Robert Wallauer genutzt, und deren Möglichkeiten bei der Untersuchung von Festkörpern mit ultrakurzen Laserpulsen erprobt. Ein Ziel ist es, korrelierte Elektronen bzw. Cooper-Paare aus supraleitendem Blei durch Tunnelionisation (ähnlich dem Tunneln beim Joesephson-Effekt) auszulösen, und anhand ihrer Korrelation zu identifizieren.

Zuerst wird der theoretische Hintergrund zur Supraleitung, sowie eine Erklärung zur technischen Realisierung des Experiments dargestellt und anschließend mit Hilfe der aufgezeichneten Daten versucht, eine theoretische Erklärung zur Ionisation mit ultrakurzen Laserpulsen vorzustellen.

2 Physikalischer Hintergrund

2.1 Supraleitung

Nachdem Kamerlingh Onnes es schaffte, Helium zu verflüssigen [HKa08] und anschließend auch eine Methode entwickelte, Proben bis zu 1,7 K abzukühlen (1911), konnte er den Widerstand von Quecksilber während der Abkühlung in diesen extremen Bereich beobachten [HKa11] . Er bestätigte die theoretische Annahme, dass der Widerstand mit der Temperatur immer weiter abnehmen würde. Jedoch kam es beim Unterschreiten von 4,19 K zu einem unerwarteten, schlagartigen Verlust des gesamten elektrischen Widerstands¹ (siehe Abbildung 1). Woraus er schloss, dass es sich hierbei um einen Phasenübergang handeln muss. Dieses Phänomen der widerstandfreien Leitung, das er auch bei anderen Metallen nachwies, nannte er Supraleitung.



Abbildung 1: Sprunghafter Widerstandsverlust bei Supraleitern und die theoretischen Annahmen vor 1911. (Quelle: [Wer04])

Ein erstes makroskopisches Modell zu Onnes Beobachtungen wurde erst 20 Jahre später von W. Meißner und R. Ochsenfeld [WMe33] entwickelt. Sie entdeckten ebenfalls die fundamentale Eigenschaft der Supraleiter, Magnetfelder aus ihrem Inneren völlig zu verdrängen, was sie zu idealen Diamagneten macht. Dieser Effekt wird als Meißner-Ochsenfeld-Effekt bezeichnet und in diesem Experiment zum Nachweis der Supraleitung verwendet (siehe Abschnitt 3.9 Nachweis der Supraleitung).

Der supraleitende Zustand lässt sich zusammenfassend folgendermaßen charakterisieren:

- Beim Unterschreiten einer kritischen Temperatur T_c verschwindet der gesamte elektrische Widerstand sprunghaft.
- Der Supraleiter verhält sich wie ein idealer Diamagnet. Unterhalb eines kritischen Magnetfeld H_c wird der magnetische Fluss vollständig aus dem Inneren verdrängt.
- Überschreitet der Strom einen kritischen Wert j_c findet ein Übergang zum Normalleiter statt.

¹ Es lässt sich auch mit heutiger Technik nicht mit absoluter Sicherheit feststellen, ob tatsächlich der gesamte elektrische Widerstand verschwindet, da es kein Messinstrument mit absoluter Genauigkeit gibt. Es lässt sich lediglich eine obere Grenze von $4*10^{-13}$ Ω für einen eventuellen Restwiederstand feststellen. (Quelle: [Wer04])

Eine heute noch aktuelle und erfolgreiche mikroskopische Theorie der Supraleitung wurde 1957 von John **B**ardeen, Leon N. **C**ooper und John R. **S**chrieffer (BCS-Theorie) entwickelt. Diese Theorie benötigt die zweite Quantisierung der Quantenmechanik, aus welchem Grund in dieser Arbeit lediglich eine kurze phänomenologische Erklärung vorgestellt wird.

2.1.1 BCS-Theorie

Die Basis der BCS-Theorie [JBa57] gründet auf der Formung zweier Elektronen zu einem sogenannten Cooper-Paar:

Cooper-Theorem (1956):

Der Fermi-See der Elektronen ist instabil gegen die Bildung eines gebundenen Zustands zweier Elektronen (Paar), solange eine beliebig kleine, anziehende Wechselwirkung zwischen ihnen existiert.

Anschaulich kann man sich vorstellen, dass ein Elektron, welches sich im Festkörper bewegt, aufgrund der Coulomb-Wechselwirkung die positiv geladenen Ionenrümpfe anzieht. Während sich das Elektron weiter bewegt, verweilen die Ionenrümpfe wegen ihrer Trägheit noch einen Moment länger in ihrer ausgelenkten Position. Somit entsteht im Gitter eine Art positive Ladung (dynamische Polarisation), die ein zweites Elektron anziehen kann. Aufgrund der Wechselwirkung mit dem Gitter, können sich also zwei Elektronen effektiv anziehen. Solch ein Paar bezeichnet man als Cooper-Paar:

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

$$(0.1)$$

Die Wechselwirkung der beiden Elektronen über das Gitter (ausgelenkte Ionen) wird durch den Austausch virtueller Phononen beschrieben (siehe Abbildung 2).



Abbildung 2: Cooper-Paar dargestellt in einem Feynman-Diagramm (entnommen [Kat99])

Die zwei sich anziehenden Elektronen wandeln durch die Kopplung einen Teil ihrer kinetischen Energie in Bindungsenergie um ($\approx 10^{-3}$ eV), was zu einer Absenkung der Bindungsenergie im Festkörper führt. Cooper-Paare bilden sich nur an der Fermikante und es entsteht der sogenannte Band Gap (Energielücke) der breite E_g (siehe Abbildung 3).

Durch Energiezufuhr, z.B. thermische Energie größer ist als die Bindungsenergie, kann die Bindung wieder aufgebrochen werden und es kommt zum Verlust der Supraleitung.



Abbildung 3: Bändermodell eines Supraleiters (entnommen [Kat99])

Bei normalen Supraleitern sind die Spins der Elektronen eines Cooper-Paars entgegengesetzt und addieren sich so zu einem Gesamtspin von 0. Es handelt sich demnach um Bosonen welche der Bose-Einstein-Statistik unterliegen. Im Vergleich zu Fermionen (einzelne Elektronen) können sich also alle Cooper-Paare gleichzeitig im energetisch günstigsten Zustand befinden. Dies erlaubt die Cooper-Paare mit einer einzigen, den ganzen Festkörper überspannenden Bose-Einstein(BE)-Wellenfunktion zu beschreiben. Diese Wellenfunktion kann von lokalen Hindernissen (Atomkerne und Störstellen des Gitters allgemein) nicht mehr beeinflusst werden. Die Elektronen treten also als Cooper-Paar nicht mehr in Wechselwirkung mit dem Gitter. Der Stromfluss ist also verlustfrei.

Eine für dieses Experiment besonders wichtige Eigenschaft der beiden Elektronen, die ein Cooper-Paar formen ist, dass diese entgegengesetzte Impulse besitzen. Dies folgt aus der Impulserhaltung: Die Wahrscheinlichkeit² für das rechte Bild in Abbildung 4 (Gesamtimpuls Cooper-Paar: $\underline{K} = \underline{0}$) ist am größten, in diesem Fall muss $\underline{k}_1 = -\underline{k}_2$ erfüllt sein ($\underline{K} = \underline{k}_1 + \underline{k}_2 = \underline{0}$).

² Die Wahrscheinlichkeit entspricht der Anzahl von Kombinationen den Gesamtimpuls zu bilden. Links in Abbildung 4 sind die möglichen Kombinationen für einen endlichen Gesamtimpuls \neq 0 dunkel schaffiert (eine sehr geringe Wahrscheinlichkeit). Rechts ist die Anzahl der möglichen Kombinationen, einen Gesamtimpuls = 0 zu bilden, praktisch unendlich.



Abbildung 4: <u>Links</u>: Gesamtimpuls Cooper-Paar K ≠ 0. Die Impulserhaltung ist nur erfüllt wenn die Wellenvektoren der beiden Elektronen innerhalb der dunkel schaffierten Bereiche liegen. <u>Rechts</u>: K = 0. Typischer Streuprozess in einem Cooper-Paar. Die Elektronen ändern zwar ihre einzelnen Impulse, der Gesamtimpuls bleibt aber bei 0.

Anschaulich lässt sich dies auch darstellen, indem man sich das "zweite" Elektron surfend auf der dynamischen Polarisations-Spur des "ersten" Elektrons vorstellt. Dazu müssen die Impulse der beiden Elektronen auf einer gemeinsamen Achse liegen. Fliegen die beiden Elektronen in gleiche Richtung, sind diese über die Beziehung $k_1 = k_2$ korreliert. Eine ebenso eindeutige Korrelation stellt auch die Forderung $k_1 = -k_2$ dar. (Quelle: [Wer04])

Der Schwerpunkt eines Cooper-Paars ruht zwar bei einem Gesamtimpuls von $\underline{K} = \underline{k}_1 + \underline{k}_2 = \underline{0}$, ein Stromfluss (Suprastrom) mit Cooper-Paaren lässt sich aber trotzdem erklären. Dazu muss man die Cooper-Paarung um einen Schwerpunkt <u>S</u> durchführen, der Zustand ist dann gegeben als {<u>S</u> + <u>k</u>, <u>S</u> - <u>k</u>}.

Neben der Zuführung von thermischer Energie, kann die Bindung der Cooper-Paare auch durch ein elektrisches Feld ($\ge E_c$) bzw. einen Stromfluss ($\ge j_c$) aufgebrochen werden. Dies ist gleichbedeutend mit dem Anlegen eines externen Magnetfelds (H_c), welches im Supraleiter Ströme induziert.

2.1.2 Signaturen in der Doppelphotoemission

Für die Experimente mit Synchrotron Strahlung³ haben die Physiker A. Kouzakov und J. Berakdar die Winkelverteilung von Cooper-Paaren, wie sie aus einem normalen Supraleiter (V_3 Si) emittiert werden [KAK03], theoretisch berechnet. Sie sagen eine "back-to-back"-Relation für die Cooper-Paar Elektronen voraus. Das bedeutet dass die Elektronen vom Betrag her gleich, aber mit entgegengesetztem Parallelimpuls zu erwarten sind (siehe Abbildung 5).



Abbildung 5: Theoretische Emissions-Geometrie eines Cooper-Paars (Entnommen: [KAK03])

³ Benutzt wurden einzelne Photonen mit hv=25-40eV.

Zum Nachweis von Cooper-Paaren mit Hilfe eines starken Laserfeldes hingegen, gibt es noch kein solches theoretisches Modell.

Die Idee hinter dieser Arbeit stützt sich auf den Josephson-Effekt. Dieser beschreibt, das Elektronen, welche ein Cooper-Paar bilden, immer gemeinsam tunneln (bzw. die gekoppelten Wellenfunktionen). Sollten Cooper-Paare auch ins Vakuum tunneln können, so sollten die beiden Elektronen eines Cooper-Paars auch ihre relativen Impulse zueinander beibehalten.

Im Vergleich von Spektren im normal- und supraleitenden Zustand, ist aufgrund der unterschiedlichen Tunnelwahrscheinlichkeit für einzelne-, zwei einzelne- und Cooper-Paar-Elektronen ein Unterschied in den Spektren zu erwarten.

3 Experimentelle Realisierung

3.1 Experimenteller Überblick

In diesem Experiment bestrahlen wir einen Bleikristall (111) im normal- und supraleitenden Zustand mit ultrakurzen Laserpulsen (Pulslänge ~150fs, hv=1,57eV), die unter einem 70° Winkel zur Oberflächennormalen eingestrahlt werden (siehe Abbildung 6). Von Laserpulsen ausgelöste Elektronen, werden mit Hilfe eines Flugzeitspektrometers an dessen Ende sich ein ortsauflösender Detektor befindet, Spektroskopiert [Dör00].



Abbildung 6: Das aktuelle Experimentierkammer im Überblick

3.2 Flugzeitspektrometer und Detektor (Coltrims)

Um die aus der Oberfläche ausgelösten Elektronen zu detektieren, müssen diese zuerst mit Hilfe eines Flugzeitspektrometers zum Detektor geleitet werden. Dazu wird ein möglichst homogenes elektrisches Feld angelegt, welches durch hintereinander angeordnete, hohle Kupferringelektroden, abgeschlossen durch ein Gitter (siehe Abbildung 7) erzeugt wird.



Abbildung 7: Links: Flugbahn der Elektronen mit unterschiedlichen Startimpulsen. Rechts: 3D-Modell des verwendeten Flugzeitspektrometers inklusive der 2 Gitter.

Kurz hinter dem Abschlussgitter (von nun an Gitter 1 genannt) des Flugzeitspektrometers befindet sich ein zweites Gitter (von nun an Gitter 2 genannt), das auf einem etwas niedrigeren Potential als Gitter 1 liegt. Damit lassen sich Elektronen die mit Gitter 1 kollidieren, dadurch später auf dem Detektor landen und die Messung verfälschen, sich ablenken bevor sie den Detektor erreichen bzw. sehr stark verzögern, bevor sie detektiert werden (siehe Abbildung 8). Auf diese Weise ist es möglich, sich ausschließlich auf nicht verfälschte Elektronen zu beschränken⁴.



Abbildung 8: a) Elektron passiert Gitter 1 ohne zu kollidieren. b) Elektron kollidiert mit Gitter 1 und wird von diesem zurückgesaugt. c) Elektron kollidiert mit Gitter 1 und wird stark verzögert.

Die erste Stufe des Detektors befindet sich direkt hinter Gitter 2, bestehend aus einer Vielkanalplatte ("multi channel plate", MCP) zur Elektronenvervielfachung (siehe Abbildung 9). Aufgebaut ist das MCP aus einer Vielzahl von ca. 25 μ m breiten Kanälen, über welche eine Hochspannung von ca. 1000V angelegt ist. Trifft ein Elektron in einen dieser Kanäle, werden Sekundärelektronen ausgelöst, welche wiederum selbst weitere Sekundärelektronen auslösen, was zu einer Elektronenlawine führt. In diesem Experiment sind 3 MCP in der sogenannten "Z-Stack"-Anordnung hintereinander geschaltet und erreichen so einen Verstärkungsfaktor von 10⁶ bis 10⁷.

⁴ Kollidierte Elektronen lassen sich so stark verzögern (Spannungsabhängig), so dass diese deutlich im Flugzeitspektrum zu erkennen sind (siehe Abbildung 14).



Abbildung 9: Links: MCP und seine Funktionsweise Rechts: 3 MCPs in "Z-Stack"-Anordnung

Die erzeugten Elektronenlawinen verlassen das MCP auf der Rückseite. Durch diesen Ladungsentzug kommt es kurzzeitig zu einem Stromfluss, was zu einem kurzen Spannungspuls führt. Dieser Spannungspuls kann kapazitiv ausgekoppelt werden (das sogenannte MCP-Signal) und zur Flugzeitmessung genutzt werden.

Die ausgetretene Elektronenlawine wird von dahinter liegenden Delay-line Anoden aufgesammelt (siehe Abbildung 10). Diese bestehen je aus zwei parallel gewickelten, voneinander isolierten Drähten (Signal- und Referenz-Draht), was zu einem verlustarmen Transport nach dem Prinzip der Lecher-Leitung, sowie zu einer Rauschunterdrückung führt. Dazu legt man die beiden Drähte auf unterschiedliche Potentiale (ca. 20-40V Spannungsunterschied), sodass der Draht mit dem größeren Potential die meisten Elektronen einsammelt. Dadurch bildet sich im anderen Draht eine entgegengesetzte Bildladung. Signal- und Referenz-Draht führen also entgegengesetzt gepolte Spannungspulse, wohingegen eingekoppelte Störungen auf beiden Drähten gleich sind. Wenn man sich nun die Differenz der beiden Drähte anschaut, wird der Störhintergrund praktisch vollständig beseitigt, da die Differenz der Störungen Null beträgt. Technisch nutzt man dazu Pulstransformatoren (PT), welche gleichzeitig dazu dienen, die restliche Elektronik von den hohen Spannungen der Delay-line Anoden (ca. 3000V) abzukoppeln. Die Signale werden anschließend noch durch einen schnellen Vorverstärker ("Fast Amplifier", FA) und CFDs (Constant Fraction Discriminators) geschickt, bevor sie von einer TDC ("Time to Digital Converter") Karte des PCs eingelesen und aufgezeichnet werden.



Abbildung 10: Eine Elektronen-Lawine trifft auf die Delay-Line Anoden

Die Position der aufgetroffenen Elektronen ergibt sich aus den Laufzeiten der Signale. Vom Auftreffpunkt laufen zwei Signale mit konstanter Ausbreitungsgeschwindigkeit c (Geschwindigkeit entlang der x-Achse) auseinander. Die Position in einer Dimension (x-Achse) berechnet sich nun einfach durch:

$$x = c(t_1 - t_2) \tag{0.2}$$

Dabei sind t₁ und t₂ die Pulsankunftszeiten an den beiden Enden der Anode.

Um ein zweidimensionales Ortsbild zu erhalten, sind mindestens zwei Anodenlayer mit unterschiedlicher Orientierung nötig. In diesem Experiment kommt aufgrund der besonders wichtigen Multi-Hit⁵ Ereignisse eine Hex-Anode (siehe Abbildung 11: Aufbau einer Hex-Anode) zum Einsatz⁶. Eine Hex-Anode besteht aus drei Anoden-Draht-Wicklungen, die jeweils um 60° Grad gegeneinander verdreht sind.



Abbildung 11: Aufbau einer Hex-Anode

Mit dem bisher beschrieben Aufbau lässt sich ein 2D-Ortsbild der Elektronen erfassen. Um auch deren Impulse zu erhalten, ist es noch nötig, die Flugzeit zu bestimmen. Dazu wird eine Photodiode eingesetzt, welche auf eine Blende gerichtet ist, welche einen Bruchteil jedes Laserpulses reflektiert. Die Photodiode sendet somit für jeden Laserpuls ein Signal aus, welches nach einem CFD ebenfalls von der TDC Karte aufgezeichnet wird. Um die Flugzeit der Elektronen zu bestimmen, misst man nachdem das MCP auslöst wurde, die Zeit bis zum nächsten Impuls der Photodiode (Erklärung siehe Abbildung 12). Durch dieses Verfahren muss der Detektor nicht alle Photodioden-Signale aufzeichnen (8 kHz), sondern nur Events, in denen wirklich Elektronen auslöst werden.

⁵ Zwei Elektronenlawinen treffen zeitgleich (bzw. zeitlich nahe beieinander) irgendwo auf der Delay-Line Anode auf.

⁶ Erklärung im Anhang



Abbildung 12: Prinzip der Flugzeit Messung

3.3 Elektronik im Überblick



Abbildung 13: Schematischer Überblick über die verwendete Elektronik (PT: Pulstransformator, FA: Schneller Verstärker, IA: Invertierender Verstärker, CFD: Constant Fraction Discriminator)

Nachdem die Signale der Anoden-Drähte, des MCPs und der Photodiode durch eine schnelle Elektronik (siehe Abbildung 13), in NIM-Standard konforme Signale (0: 0V, 1: -0,8V) umgewandelt wurden, werden diese von einer 8 Kanal TDC (*time to digital*) Karte (*RoentDek TDC8PCl2*) aufgezeichnet. Die TCD Karte wird dabei durch das MCP Signal getriggert und die spezielle TDC Karten-Technik, erlaubt es alle Signale in einem Zeitraum von 500 ns um das Triggersignal aufzuzeichnen. Die Daten werden pro Event (MCP Signal) einzeln weggeschrieben, was es später in der Auswertung erlaubt die aufgezeichneten Daten durch beliebige Bedingungen zu sortieren.

3.4 Berechnung der Impulse

Durch das homogene elektrische Feld bleiben Informationen über die Impulse der Elektronen erhalten, da das elektrische Feld die Elektronen nur in eine Richtung beschleunigt und diese bekannt ist:

$$F_z = m_e \ddot{z} = eE_z \tag{0.3}$$

Innerhalb des Spektrometers (Länge s) gelten also folgende Bewegungsgleichungen.

$$s = \frac{1}{2}\ddot{z}t^{2} + v_{z}t$$
 (0.4)

$$t = -\frac{v_z}{\ddot{z}} \pm \sqrt{\frac{v_z^2}{\ddot{z}^2} + \frac{2s}{\ddot{z}}}$$
(0.5)

In dem Versuchsaufbau werden die Startenergien über die Impulse berechnet. Diese lassen sich aus dem Auftreffort (Abstand x und y vom Mittelpunkt) und der Flugzeit (ToF) berechnen (in atomaren Einheiten):

$$p_x = \frac{x \cdot m_e}{ToF} \tag{0.6}$$

$$p_{y} = \frac{y \cdot m_{e}}{ToF} \tag{0.7}$$

$$p_z = m_e \frac{s}{ToF} - \frac{e \cdot E_z}{2} \cdot ToF$$
(0.8)

3.5 Eichung des Detektors

Bei einer sauberen Probe lässt sich das Verfahren einfach über reflektierte Photonen eichen, welche das MCP auslösen. Dabei wird die Flugzeit so verschoben, dass der sogenannte Photonen-Peak im Flugzeit-Plot ungefähr auf Null liegt (Flugzeit der Photonen ca. 0,1ns). Ist das Photonen-Peak nicht zu erkennen, so wie es bei der schmutzigen Bleiprobe der Fall war, lässt sich die Flugzeit alternativ auch über die theoretische Flugzeit der langsamsten Elektronen (0 Impuls nach Austritt) eichen. Dabei wird die Kante der langsamsten Elektronen im Flugzeitspektrum auf den theoretisch berechneten Wert verschoben (siehe Abbildung 14).



Abbildung 14: Flugzeit Spektren aufgenommen an einer Schmutzigen und Sauberen (gespottert) Bleiprobe

3.6 Vakuum

3.6.1 Vakuum Technik

Bei der Spektroskopie von Festkörpern ist eine extrem saubere Oberfläche nötig, da sonst Verunreinigungen auf der Probe (z.B. Sauerstoff- oder Stickstoffatome) die Messung stören und auch nicht anschließend heraus gerechnet werden können.

Um eine Probe nach dem Sputtern (siehe 3.7 Probenpräparation) möglichst lange stabil zu halten, also eine Oberflächenspektroskopie möglich ist, benötigt man ein möglichst hohes Vakuum in der Kammer.

Das Vakuum bzw. der Druck in der Kamer ist proportional zur Anzahl der Teilchen, welche in einer Zeit Δt auf eine Fläche A auftreffen. Diese auftreffenden Teilchen können mit einer gewissen Wahrscheinlichkeit (Haftungskoeffizient) auf der Probe haften bleiben. Ist ein bestimmter Bedeckungsgrad überschritten, ist die Probe nicht mehr sauber und eine Oberflächenspektroskopie nicht mehr möglich. Eine Faustregel (siehe [SHü95]) besagt, dass bei einem Druck von ungefähr 10⁻⁶ mBar eine Probe nach etwa 1 Sekunde mit einer Monolage bedeckt ist (schmutzig) und dass diese Zeit mit jeder Druckverringerung um eine Zehnerpotenz um den Faktor 10 anwächst. Dies bedeutet: Möchte man eine Probe 3 Stunden spektroskopieren, so ist ein Vakuum von besser als 10⁻¹⁰ mBar nötig. (Bei dieser Faustregel wird ein Haftungskoeffizient von 1 angenommen. Dieser liegt für Blei allerdings deutlich unter 1. Die Lebendauer der Probe ist also auch deutlich länger als nach dieser Faustregel.)

Um eine solches Vakuum zu erzeugen und aufrechtzuerhalten ist ein komplexer Aufbau von verschiedene Pumpen (-typen) nötig (siehe Abbildung 15). Die äußerste Membranpumpe⁷ dient zur Erzeugung eines Vorvakuums für die dahinter folgende kleine Turbomolekularpumpe⁸ (Pfeiffer TMU070 70l/s), welche wiederum ein Vorvakuum für die dahinter angebrachte große Turbomolekularpumpe (Pfeiffer TMU520 520l/s) erzeugt. Im Kammerinneren selbst befinden sich eine Getterpumpe sowie eine Titan-Sublimationspumpe⁹.



Abbildung 15: Das Vakuum-System der Kammer

Zum Erreichen eines Ultra-Hoch-Vakuums wäre, falls nur die Turbomolekularpumpen angestellt werden, mehrere Wochen wenn nicht sogar Monate nötig. Beschleunigen lässt sich der Prozess durch Ausheizen der Kammer. Dies ist eine Prozedur, bei der die gesamte Kammer erhitzt wird, um damit Wasser und andere Verunreinigungen schneller von den Wänden der Kammer zu lösen, um diese absaugen zu können. Man verschiebt dadurch also das Verhältnis zwischen den auf der Wand haften bleibenden Teilchen zu den von der Wand sich lösende Teilchen. Desweiteren werden die drei Filamente der Titan-Sublimationspumpe und die Getterpumpe in dieser Prozedur durch eigene interne Heizelemente kurz erhitzt und dadurch gereinigt (degased), um somit die Aufnahme bzw. Pumpfähigkeit der Pumpen herzustellen. Die Drucksensoren verfügen ebenfalls über intern eingebaute Heizelemente und werden in diesem Prozess ebenfalls degased.

3.6.2 Ausheizen

Um ein besseres Gefühl für das Vakuum während des Ausheizens zu bekommen wurden über knapp 5 Tage verschiedene Parameter der Kammer kontinuierlich aufgezeichnet. Dabei wurden die Außenund Innen-Temperatur der Kammer, sowie der Druck erfasst. Um die Temperaturen zu bestimmen wurde ein PT-1000 Temperaturwiderstand für die äußere Kammertemperatur und die bereits vorhandene Silizium-Diode an der Probe für die innere Kammertemperatur benutzt. Der Druck wurde über den analogen Ausgang des RontDek Vakuummeters ausgelesen. Die Spannungswerte der verschiedenen Sensoren und des Temperaturwiderstands (PT-1000) wurden mit Hilfe eines

⁷ Die Funktionsweise ähnelt einer Kolbenpumpe. Gasteilchen können die Pumpe nur in Pumprichtung passieren. Die Pumpe hält das Vakuum selbst bei Stromausfall.

⁸ Schnell rotierende Turbinenschaufeln (830Hz Groß, 1350 Hz Klein) geben Gasteilchen, die zufällig auf diese treffen, einen zusätzlichen Impuls in Förderrichtung. Das Vorvakuum ist nötig, damit nicht zu viele Gasteilchen auf die Turbinenschaufeln stoßen, um Hitzeentwicklung zu vermeiden (Schädigung der Pumpe).

⁹ Sauberes Titan ist höchst reaktiv. Ist die Pumpe einmal gereinigt (degased), fängt sie Gasteilchen ein und bindet diese.

Analog/Digital-Wandlers (ME-RedLab 1208LS) in den Computer eingelesen und mit LabView direkt passend umgewandelt¹⁰ und aufgezeichnet.

Die erfassten Daten sind in Abbildung 16 geplottet. Anhand dieser Daten lassen sich für spätere Ausheizvorgänge Hinweise für die Bedienung ziehen.



Abbildung 16: Zeitlicher Verlauf der Temperaturn und des Drucks

- 1. <u>Einschalten der beiden Turbomolekularpumpen:</u> Der Druck in der Kammer fällt exponentiell ab.
- Einschalten der um die Kammer angebrachten Heizschlangen: Wasser und andere Verunreinigungen lösen sich von den Wänden (der Druck steigt) und werden von der Turbomolekularpumpe wieder abgesaugt.
- 3. <u>Weiteres Hochregeln der Temperatur (Heizschlangen):</u> Kaum noch Wasser oder andere Verunreinigungen lösen sich von den Wänden.
- <u>Degasen der Drucksensoren, erhitzen der 3 Filamente der Titan-Sublimations Pumpe, sowie</u> <u>ausheißen der Gatter-Pumpe:</u> Der Druck in der Kammer steigt kurzzeitig an.
- 5. <u>Erhitzen des Probenkopfes:</u> Der Druck steigt kaum noch.
- 6. Ausschalten der Heizschlangen:

Der Druck fällt ebenso wie die Kammertemperatur exponentiell ab auf ein Niveau von unter 10⁻¹⁰ mBar (Der genutzte Drucksensor liefert nur bis ca. 10⁻⁸ mBar verlässliche Ergebnisse).

¹⁰ Spannung in den jeweiligen physikalischen Parameter.

3.7 Probenpräparation

Um die Probe vor einer Messung zu reinigen, muss die Bleiprobe gesputtert werden. Sputtern bezeichnet ein physikalisches Verfahren bei dem Atome durch energiereichen Ionenbeschuss von der Oberfläche eines Festkörpers gelöst werden, um abgesaugt werden zu können. In diesem Experiment wird eine alte Sputterkanone der Firma Ion Tech Ltd. verwendet, welche mit dem Edelgas Argon arbeitet. Nach jedem Sputter-Zyklus (ca. 20 Minuten) wird die Bleiprobe aufgeheizt auf ca. 140 C°. Dies führt zur Energieaufnahme und somit zu Gitterbewegungen in dem Festkörper (Bleiprobe). Kühlt man diesen nach ca. 2 Stunden wieder ab, nehmen die Atome im Festkörper die energetisch günstigste Position ein, welche einem (111) Kristallgitter bei der verwendeten Bleiprobe entspricht.

3.8 Kühlung

Um die Bleiprobe unter die Sprungtemperatur von 7,2K abzukühlen, wird eine Helium-Durchfluss-Kryostat eingesetzt. Bei diesem wird flüssiges Helium in die Nähe der Probe transportiert und siedet dort. Bei diesem Phasenübergang von der flüssigen in die gasförmige Phase, entzieht das Helium der Umgebung Wärme (bis zum seinem Siedepunkt von 4,22K). Die Funktionsweise ist in Abbildung 17 dargestellt. Die Probe sitzt am Ende einem L-förmigen Kupferblock, welcher für eine gute Wärmeleitfähigkeit sorgt. Zusätzlich ist das Kryostat von einem aus Kupfer bestehen Wärmeschild umschlossen, welches zusätzlich dazu dient, mit der Probenoberfläche zusammen einen sauberen Abschluss für das Spektrometer zur bilden.



Abbildung 17: Schematischer Aufbau der Kühlung. Mit dem Ventil lässt sich der Fluss des Heliums steuern und dadurch der Ort des Phasenübergangs verschieben.

3.9 Nachweis der Supraleitung

3.9.1 Motivation

Im ursprünglichen Versuchsaufbau wurde auf das Erreichen der supraleitenden Phase der Bleiprobe nur indirekt über eine Temperaturmessung an dem aus Kupfer bestehendem Kühlkopf geschlossen (siehe Abbildung 17). Diese Methode ist aufgrund der erreichten Temperatur des Kupfers von 4,2 Kelvin, welche deutlich unter der Sprungtemperatur von Blei (7,2K) liegt und der guten spezifischen Wärmeleitfähigkeit von Blei (35 W/(m*K)) und Kupfer (393 W/(m*K)), gerechtfertigt. Doch liefert diese Methode keinen absoluten Beweis, ob die Bleiprobe die supraleitende Phase tatsächlich erreicht hat. Um absolut sicher zu gehen und damit auch die indirekte Methode abzusichern, kann man den Meißner-Ochsenfeld-Effekt nutzen, eine direkte Nachweismethode zu entwickeln.

3.9.2 Theorie

Im Jahr 1933 wurde von Walther Meißner und Robert Ochsenfeld die völlige Verdrängung des magnetischen Feldes aus dem Inneren von Supraleitern unterhalb der Sprungtemperatur beobachtet

[WMe33] . Physikalisch lässt sich dieser Effekt durch die magnetische Permeabilität ($\mu_r = 0$) bzw. die magnetisches Suszeptibilität ($\chi_m = -1$) ausdrücken. Für das Magnetfeld innerhalb der Bleiprobe gilt:

$$B = \mu_0(M+H) = \mu_0(\chi_m + 1)H = \mu_0\mu_r H$$
(0.9)

Blei hat im normalleitenden Zustand eine magnetische Permeabilität von $\mu_r \approx 0,9999$ bzw. eine magnetische Suszeptibilität von $\chi_m = -10^{-5}$. Beobachtet man nun das Magnetfeld in der Bleiprobe, sieht man einen deutlichen Sprung beim Erreichen der supraleitenden Phase:



Abbildung 18: Magnetische Induktion (B) im Supraleiter (Blei) abhängig von der Temperatur

3.9.3 Experimentelle Umsetzung

Um das Magnetfeld im Inneren der Probe zu erfassen, erzeugt man zunächst ein sich zeitlich änderndes Magnetfeld in der Probe (Primär-Spule – 20 Wicklungen), welches eine Spannung in einer dicht um die Probe gewickelten Spule (Pick-Up-Spule – 20 Wicklungen) induziert (siehe Abbildung 19). Sobald die supraleitende Phase erreicht ist, wird das Magnetfeld aus der Probe verdrängt und kann somit auch keine Spannung mehr in der Pick-Up Spule induzieren.



Abbildung 19: Aufbau der Primär- und Pick-Up- Spule

Zur Erzeugung des zeitlich ändernden Magnetfelds dient eine um die Probe gewickelte Spule (Primär-Spule), durch welche ein Wechselstrom geschickt wird.

$$I(t) = I_0 sin(\omega t) \tag{0.10}$$

Dieser Strom erzeugt im Abstand x vom Spulenmittelpunkt auf der Symmetrieachse ein magnetisches Feld¹¹:

$$H(x,t) = H_{x,0} sin(\omega t)$$

$$H_{x,0} = N_{\text{Prim.}} \frac{I_0}{2} \frac{r^2}{(r^2 + x^2)^{\frac{2}{3}}}$$
(0.11)

(r: Spulenradius, I₀: Stromamplitude, N_{Prim}: Wicklungen der Primärspule)

Das verändernde Feld induziert in der Pick-Up Spule eine Wechselspannung:

$$U_{ind}(t) = -N_{Pick-Up} \frac{d\phi}{dt} = -N_{Pick-Up} A\mu_0 \frac{dH(x,t)}{dt}$$

= $-N_{Pick-Up} \cdot N_{Prim.} \cdot A \cdot \frac{I_0}{2} \frac{r^2}{(r^2 + x^2)^{2/3}} \cdot \mu_0 \cdot (\chi_m + 1) \cdot \cos(\omega t)$ (0.12)

Die maximale Amplitude der induzierten Spannung (0.12) beträgt:

$$U_{0,ind} = -N_{Pick-Up} \cdot N_{Prim.} \cdot A \cdot \frac{I_0}{2} \frac{r^2}{(r^2 + x^2)^{\frac{2}{3}}} \cdot \mu_0 \cdot (\chi_m + 1)$$

$$\approx 10.9 \text{ pV}$$
(0.13)

(mit: $N_{Pick-Up} = 20$, $N_{Prim} = 20$, $A = 3.14 \cdot 10^{-4} m^2$, $I_0 = 4,76 \cdot 10^{-3} A$, r = 0,005m und x = 0)

Diese Rechnung enthält nicht die im Kupfer entstehenden Oberflächenströme (Skin-Effekt), die abschwächend auf das Magnetfeld in der Bleiprobe wirken.

Diese Spannungsamplitude ist mit dem bloßen Auge auf dem Oszilloskop aufgrund des Hintergrundrauschens nicht mehr zu erkennen. Deshalb wird der Einsatz eines Lock-In Verstärkers nötig. Die Frequenz der Induzierten Spannung ist bekannt, da sie durch den Wechselstrom (0.10) selbst vom Lock-In Verstärker vorgegeben wird (eine bekannte Frequenz ist eine Voraussetzung um den Lock-In Verstärker überhaupt nutzen zu können).

Lock-In Verstärker

Ein Lock-In Verstärker ist im Prinzip ein extrem schmaler Bandpassfilter, welcher nur Frequenzen durchlässt, die als Referenz vorgegeben werden. Die durchgelassenen Signalanteile **(a)** werden intern mit dem Referenzsignal **(b)** multipliziert, was mit der richtigen Phaseneinstellung zu einem periodischen Signal \geq OV **(c)** führt (siehe Abbildung 20).

¹¹ Vereinfachend wurde angenommen, dass das Magnetfeld in der Y-Z-Ebene in der Nähe der X-Achse konstant ist.



Abbildung 20: Funktionsweise eines Lock-In Verstärkers (Erklärung siehe Text)

Über das entstandene Signal **(c)** wird vor dem endgültigen Ausgeben noch einmal zeitlich integriert (einstellbar) und die dadurch entstehende Gleichspannung vom Lock-In-Verstärker ausgegeben.

Aus dem Gleichspannungswert lässt sich theoretisch die magnetische Suszepbilität genau berechnen. Dazu wäre allerdings noch eine zusätzliche Referenzmessung nötig, welche in diesem Versuchsaufbau aber nur schwer zu realisieren ist.

Eine genaue Bestimmung der magnetischen Suszeptibilität ist in diesem Experiment allerdings nicht nötig. Da nur die supraleitende Phase nachgewiesen werden soll, reicht es, den deutlichen Sprung der magnetischen Suszeptibilität von $\chi_m = -10^{-5}$ (Normalleitend) auf $\chi_m = -1$ (Supraleitend) zu beobachten. Dieser Sprung äußert sich in Gleichung (0.13) in einem Abfall der Induzierten Spannung, was im Lock-In Verstärker zu einem Abfallen der Gleichspannung führt.

Nach Meißner und Ochsenfeld sollte ein Supraleiter das Magnetfeld vollständig aus seinem Inneren verdrängen. Die makroskopische Beschreibung über die London-Gleichung zeigt jedoch in Wirklichkeit einen exponentiellen Abklang des Magnetfeldes in den Supraleiter:

$$B_{z}(x) = B_{0} \cdot e^{-x/\lambda_{L}}$$

$$\lambda_{L} = \sqrt{\frac{m}{\mu_{0} n q^{2}}}$$

$$\lambda_{L,B|e|} = 37 \ nm \tag{0.14}$$

Das eindringende magnetische Feld und die Tatsache dass die Pick-Up Spule nicht absolut dicht um die Probe gewickelt werden kann¹², und sich zwangsläufig ergebende Schleifen in den Zuleitungen, sind Gründe weshalb kein totaler Abfall der induzierten Spannung (0.13) auf 0 V zu erwarten ist.

3.9.4 Ergebnisse

Erfolgreich gemessen wurde bei einer Stromfrequenz (0.10) von 23 Hz (Einer Primzahl für die bessere Funktion des Lock-In Verstärkers.).

¹² Abstand der innersten zur äußersten Wicklung.



 $f_{_{Ref}}$ = 40 Hz, TimeConstant = 0,01 Hz, Sensitivity = 0,01 μ V

Abbildung 21: Das Signal der Pick-Up Spule bei einem Phasenwechsel: Supraleitend - Normalleitend - Supraleitend

In Abbildung 21 ist der Verlauf des Ausgangssignals vom Lock-In Verstärker (Pick-Up Signal) abhängig von der Temperatur in Kelvin geplottet. Man kann gut einen Einbruch des Pick-Up Signals beobachten, welcher allerdings nicht direkt bei einer Temperatur von 7,196 Kelvin (Sprungtemperatur Blei) liegt, sondern leicht verzögert. Diese Verzögerung liegt daran, dass die Temperaturdiode nicht direkt an der Bleiprobe, sondern ein Stück entfernt am Kaltkopf misst. Diese Stelle erreicht schneller tiefe Temperaturen, als die Bleiprobe.

Durch diese Messung konnte also die Supraleitung der Bleiprobe sicher festgestellt werden. Wenn die Temperaturdiode eine Temperatur von ca. 4 Kelvin anzeigt (also deutlich unter der Sprungtemperatur), befindet sich die Bleiprobe also sicher in der supraleitenden Phase.

3.10 Laser-System am IKF

Das eingesetzte Laser-System am IKF besteht aus zwei Hauptkomponenten: Einem Oszillator zur Erzeugung kurzer Laser-Pulse im Femto Sekundenbereich und einem geeignetem Verstärker. Diese beiden Komponenten sollen in diesem Kapitel kurz beschrieben werden.



Abbildung 22 Schematischer Aufbau des Laser-Systems

3.10.1 Oszillator

Der eingesetzte Oszillator basiert auf der sogenannten Kerr-Linsen-Modenkopplung (KLM) bzw. "Selbst-Modenkopplung". Als Lasermedium wird ein Titan-Saphir-Kristall (Ti:Sa - Titan-Ionen dotierte Al_2O_3 -Matrix) verwendet. Dieser besitzt ein besonders breites Emissionsspektrum, was für die Erzeugung kurzer Pulse nötig ist.

Die nötige Besetzungsinversion im Oszillator wird mit einem kontinuierlichen Laser (Neodym-YAG-Laser mit 5W Leistung bei 532nm Wellenlänge) gepumpt.

Da der Ti:Sa-Kristall ein breites Emissionsspektrum emittiert, führt dies auch zu einer großen Anzahl von Moden, welche allerdings in einer willkürlichen Phasenbeziehung zueinander stehen, wodurch die Intensität räumlich und zeitlich beliebig verteilt ist. Dies ändert sich allerdings, sobald sich entweder von selbst eine zufällige konstruktive Überlagerung bildet, oder durch eine mechanische Manipulation (leichtes antippen der Spiegel) von außen.

Nun sorgt die sogenannte Selbstfokussierung dafür, dass der Oszillator dauerhaft diese konstruktiven Überlagerungen hält bzw. in einem gepulsten Zustand bleibt. Dazu stellt sich in der Kavität bei höheren Intensitäten ein größerer Brechungsindex ein, was zu einer Fokussierung des Pulses führt. Dieser Effekt führt in jedem Durchlauf zu einer Verstärkung des Pulses, da die Flanken des Pulses eine geringere Momentanintensität als der Peak haben und werden somit weniger stark fokussiert, was zu einer geringeren Verstärkung führt. Es kommt also mit jedem Durchlauf durch die Kavität zu einer Schärfung der Kanten und somit auch zu einer Pulsverkürzung.

Die Pulse verlassen den Oszillator nun mit einer Repetitionsrate von ca. 80MHz und einer Pulsenergie von einigen Nanojoule. Um diese Pulse nun für das Experiment nutzen zu können, müssen diese im nächsten Schritt verstärkt werden.

3.10.2 Verstärker

Zur Verstärkung wird das Prinzip der "Chirped-Pulse-Verstärkung" (CPA) angewendet, um Beschädigungen am Verstärkermedium durch zu hohe Lichtintensitäten zu verhindern.

Dazu werden die Pulse aus dem Oszillator zunächst mit zwei Gittern (*Strecher*) zeitlich auseinandergezogen (auf ca. 100ps).

Im nächsten Schritt muss der Laserstrahl eine *Pockels Cell* (PC) passieren. Eine PC besteht aus einem elektro-optischen Kristall, der abhängig von der angelegten Spannung, die Polarisationsachse der linear polarisierten Laserpulse drehen kann. In Kombination mit einem Polarisator lassen sich also

abhängig von der angelegten Spannung Pulse selektieren. Der PC wird am IKF mit einer 8kHz Rechteckspannung angesteuert, richtig eingestellt, lässt sie gestreckte Pulse aus dem Oszillator mit einer Rate von 8kHz passieren.

Die Verstärkung erfolgt nun mit Hilfe eines Multipass-Verstärkers (Modell "Dragon" der Firma KMLabs), in dem ein zweiter Ti:Sa-Kristall arbeitet. Dieser wird hier allerdings gepulst gepumpt (Modell "Eagle" der Firma Quantronix) mit derselben Frequenz wie die PC (8kHz: verwenden denselben Trigger). Die Pulslänge des gepulsten Pumplasers ist so eingestellt, das ein Laserpuls aus dem Oszillator den Ti:Sa-Kristall genau 13 mal passieren kann (mit Hilfe von Hohlspiegeln). Dabei verstärkt sich die Intensität pro Durchlauf um den Faktor 10 durch induzierte Emission.

Der verstärkte Puls kann nun wieder mit einem Gitter-Paar komprimiert werden. Pulse die dem Experiment nun zur Verfügung stehen, besitzen eine Pulslänge von ca. 30fs und Pulsenergie von rund 800µJ bei einer Wiederholrate von 8kHz¹³.



Abbildung 23: Schematischer Aufbau des Lasersystems (Vorlage entnommen von Kanses-Light-Source, KLS)

3.10.3 Laserpulse an der Probe

Der Laserstrahl wurde während des Experiments mit einem benachbarten Experiment geteilt, dazu wurden 3% der Laserintensität durch einen sogenannten Split Mirror abgezweigt. Der Laserstahl wird mit Hilfe mehrerer Spiegel zur Experimentierkammer geleitet und vor der Kammer mit Hilfe einer Sammellinse (Brennweite 40 cm) auf die Probe fokussiert.

Vor der Sammellinse befindet sich noch eine Iris, welche einen Teil des Laserstahls reflektiert, um somit eine Photodiode anzusprechen.

Um zur Probe zu gelangen muss der Laserstahl einen Glasflansch passieren, dadurch verlängert sich ein Laserpuls aufgrund der Dispersion von Glas. Die Pulslänge an der Probe beträgt dann ungefähr 100 fs (Basierend auf Erfahrungen in vergleichbaren Aufbauten: [Gia03], [MAe95]).

Mit einer Spotgröße¹⁴ von 0,01 cm² und eine Pulsenergie¹⁵ von 0,02mJ folgt für die Intensität an der Probe:

¹³ Der Verstärker (ink. PC) lässt sich mit Wiederholraten von 1 bis 20 kHz fahren, wobei die Pulsenergie zwischen 0,25 und 2,5 mJ variiert (gepulste Pumplaser mit 5Watt).

¹⁴ Eine Abschätzung mit Hilfe einer auf die Probe gerichteten CCD Kamera.

$$\frac{Pulsenergie}{Spotgröße} = \frac{0,02mJ}{0,01cm^2 \cdot 100\,fs} \approx 2 \cdot 10^{10} \frac{W}{cm^2}$$
(0.15)

Dieser Wert ist allerdings aufgrund dessen, dass sämtliche Zahlenwerte nur Schätzungen sind, extrem fehlerbehaftet. Bei Vergleichen der Ergebnisse mit anderen Experimenten ([MAe95] , [Gia03]) zeigt sich jedoch, das diese Abschätzung der Intensität realistisch ist.

4 Auswertung und Diskussion

4.1 Aufgenommenen Spektren



Abbildung 24: Energiespektrum eines einzelnen Elektrons - Bleiprobe Supraleitend



Abbildung 25: Energiespektrum eines "zweiten" Elektrons - Gleicher Datensatz wie in Abbildung 22

¹⁵ Pulsenergie: 0,9 (Verluste an Iris) x 0,03 (3% der Pulsenergie) x 0,8 mJ (Pulsenergie) = 0,02 mJ



Abbildung 26: Position auf dem Detektor abhängig von der kinetischen Energie - Gleicher Datensatz wie in Abbildung 22 und 23



Abbildung 27: Das Ortsbild auf dem Detektor abhängig von der kinetischen Energie (Energiefenster jeweils angegeben) -Probe Supraleitend



Abbildung 28: Die Parallelimpuls Komponenten abhängig vom senkrechten Impuls Abteil [x- und y-Achsen Skala in atomaren Einheiten] – Probe Supraleitend

An den letzen drei Abbildungen (24, 25 und 26) erkennt man, das Elektronen mit großen kinetischen Energien (> 5 eV) nur relativ kleine parallele Impulse besitzen.

Man erkennt besonders gut in Abbildung 25, dass die Elektronen nicht völlig kugelsymetisch auf dem Detektor verteilt sind. Elektronen mit größeren Parallelimpuls Komponenten, fliegen bevorzugt in eine Richtung (markiert in Abbildung 26 Mitte). Diese Emissionsgeometrie ist unabhängig von der Laserpolarisation. Ein möglicher Auslöser für eine solche Emissionsgeometrie könnte die Lage des Kristallgitters sein. Der Grund für diese Emissionsgeometrie konnte in diesem Experiment nicht geklärt werden.

In dem Energiespektrum (Abbildung 24) sieht man, das Elektronen eine kinetische Energie von über 10 eV erreichen können. Eine solch hohe Energie, entspricht im Multiphotonen-Bild der Absorption von über 9 Photonen. Dies scheint aber bei den verwendeten Intensitäten und der Tatsache das nur einzelne Elektronen ausgelöst werden sehr unwahrscheinlich. Es stellt sich also die Frage nach einem theoretischen Modell, welches diese hohen kinetischen Energien erklären kann. Dieser Frage soll im nächsten Abschnitt nachgegangen werden.

4.2 Ionisation in starken Laserfeldern

Die Austrittsarbeit von Blei liegt bei W_{ϕ} =4,4 eV, ein einzelnes Photon mit hv =1,57 eV kann also alleine kein Elektron auslösen. Wie jedoch in der Einleitung bereits erwähnt, führen die verwendeten hohen Laserintensitäten zu weiteren möglichen Prozessen, welche für das Emittieren von Elektronen verantwortlich sein können. Darunter der Multiphotonenprozess, welcher die Kopplung mehrerer Photonen an ein einzelnes Elektron beschreibt (siehe Abbildung 29).



Abbildung 29: Schematische Darstellung eines ein-, zwei-, und Multiphotonenprozess bei Kupfer. Die Grundenergie des Lasers ist hv_1 , die nächsten höher harmonischen Energien sind hv_2 und hv_3 . Entnommen aus [MAe95].



Abbildung 30: Ein-Photon-, Zwei-Photonen- und Multiphotonen- Emissionsspektrum für Cu(110). (a), (b) und (c) wurden mit den Photonenenergien hv_3 , hv_2 und hv_1 gemessen. Die Maximalen Laserintensitäten lagen bei $1x10^4$ W/cm², $1x10^7$ W/cm² und $1x10^7$ W/cm². Entnommen aus [MAe95].

In Abbildung 30 sind ein Ein-Photon-, Zwei-Photonen- und ein Multiphotonen-Emissionsspektrum für Cu(110) abgebildet. Im Ein-Photon- und Zwei-Photonen-Emissionsspektrum ist jeweils klar die Fermikante zu erkennen, die maximale kinetische Energie entspricht also $hv_3 - W_{\phi}$ bzw. 2 x $hv_2 - W_{\phi}$. Im Multiphotonen-Emissionsspektrum hingegen, bei dem theoretisch mindestens 3 Photonen absorbiert wurden, zeigt jedoch ein völlig anderes Verhalten. Es ist weder die Fermikante noch eine Darstellung der Bandstruktur zu erkennen.

Für dieses Verhalten gibt es noch keine allgemein anerkannte Theorie, welche die Photoemission durch ultrakurze Laserpulse an Oberflächen beschreibt. Es wurden allerdings schon einige theoretische Modelle zur Erklärung der hohen kinetischen Energien vorgeschlagen. Diese werden in nächsten Teil der Arbeit einzeln im Bezug auf unsere aufgezeichneten Daten diskutiert.

4.2.1 Coulomb Abstoßung

Eine mögliche Erklärung der hohen kinetischen Energie ist eine von G. Petite et al. [GPe92] vorgeschlagene Coulomb-Abstoßung der Elektronen in einem emittierten Elektronenhaufen untereinander. Dieser Mechanismus sollte bei Pulsbetrieb berücksichtigt werden, da die Ladungsdichte aufgrund der kurzen Zeitskalen (Pulsdauer) in welcher die Emission stattfindet, sehr groß werden könnte.

Banfi at al. schließen diesen Mechanismus in ihrem Experiment aus. Ihre Argumente für diesen Ausschluss sind:

- Große kinetische Energien (> 3eV) treten unabhängig von der Laserintensität und damit auch von der Anzahl der Elektronen, die pro Schuss ausgelöst werden auf.
- Für Photonenenergien hv=6,28eV (1PPE) sind keine großen kinetischen Energien zu beobachten, bei gleicher Laserintensität.

In unserem Experiment ließ sich dieser Mechanismus völlig ausschließen. Falls ein Elektronenhaufen emittiert werden sollte, müssten pro Laserpuls stets mehrere Elektronen detektiert werden. Dies wurde nicht beobachtet. Die meisten Laserpulse lösen nur ein einzelnes Elektronen aus (nur 0,63 \pm 0,12 % der Laserpulse lösten zwei Elektronen aus).

In Abbildung 31 und Abbildung 25 erkennt man, das falls zwei Elektronen pro Puls ausgelöst werden, die kinetische Energie der beteiligen Elektronen tendenziell sogar niedriger liegt, als wenn nur ein einzelnes Elektron ausgelöst wurde Abbildung 24.



Abbildung 31: Die Energie von zwei Elektronen die vom gleichen Laserpuls ausgelöst wurden. (x- und y-Achse in eV)

4.2.2 Thermische Emission

Eine Aufheizung der Elektronen durch den Laser und die daraus folgende mögliche thermische Emission wurde in der Arbeit von Banfi et al. [Gia03] für Silber diskutiert. Als Ergebnis einer theoretischen Rechnung (Richardson Gleichung) für Silber hat sich gezeigt, dass die thermische Emission bei den in unserem Experiment verwendeten Laserintensitäten (<1 GW/cm²) vernachlässigbar ist. Die theoretische Temperatur an der Oberfläche für Silber, hat sich bei hv = 1,57 eV und I=1 GW/cm² nur bis zu 330 K ergeben. Zudem lassen sich mit diesem Mechanismus nicht die hohen kinetischen Energien der Elektronen erklären.

In dieser Arbeit wird auf eine eigene Rechnung für Blei verzichtet, was gerechtfertigt ist, da Silber eine ähnliche Wärmeleitfähigkeit wie Blei besitzt und die von Banfi et al. [Gia03] in der Rechnung

verwendeten Parameter wie Photonenenergien und Intensität mit unserem Experiment gut übereinstimmen.

Ein weiteres Argument gegen die thermische Emission, lässt sich direkt aus den gemessenen Energiespektren ziehen. Falls thermische Emission stattfindet, muss die Energieverteilung der emittierten Elektronen der Fermi-Dirac Verteilung entsprechen, also proportional $e^{-E/kT}$ sein.



Abbildung 32: Exponentieller Fit an die Energie Verteilung der emittierten Elektronen - Blei Supraleitend

Aus dem Fit in Abbildung 32 ergibt sich eine Elektronentemperatur von ca. 6500K an der Oberfläche, diese liegt weit über den theoretisch erreichbaren Temperaturen (siehe Oben). Thermische Emission kann somit ausgeschlossen werden.

4.2.3 Multiphotonenprozess

Unter einem Multiphotonenprozess versteht man die Kopplung mehrerer Photonen an ein einzelnes Elektron. Der Mechanismus funktioniert dabei wie die normale Photoemission von Oberflächen mit einem einzelnen Photon, nur dass die Anregungsenergie sich dabei aus der Energie mehrerer Photonen zusammen setzt. (Für eine genauere Beschreibung siehe Photoemission von Oberflächen 8.2 im Anhang)

Multiphotonenionisation bei Atomen, lässt sich an bestimmten Charakteristiken im Energiespektrum erkennen (siehe Abbildung 33). Bei Festkörpern sind aufgrund der Bandstruktur keine solchen scharfen Kanten im Spektrum zu erwarten. Nur mit der Annahme dass die gesamten emittierten Elektronen von der Fermi-Kante stammen, könnte ein scharfes, stufiges Energiespektrum erwartet werden. In den Energiespektren (Abbildung 24) sind allerdings keine Merkmale mit dem Energie-Abstand eines Photons (hv = 1,56 eV) zu erkennen.



Abbildung 33: Energiespektrum für Xenon mit 100ps langen, linear polarisierten Pulsen (λ =1064 nm, hv = 1,17 eV, I_{peak}=2x10¹³ W/cm²). Der Abstand der Peaks entspricht der Energie eines Photons. (entnommen aus [PHB86])

Eine andere Methode einen Multiphotonenprozess zu erkennen, ist wie bei Banfi et al. [Gia03] die Laserintensität durchzufahren und die Emissionsspektren zu vergleichen. Falls ein Multiphotonenprozess stattfindet, wäre die Abhängigkeit

$$\Gamma_{n_{ph}} \propto I^{n_{ph}} \tag{0.16}$$

($\Gamma_{n_{ph}}$: Wirkunsquerschnitt für einen nPPE Prozess, $oldsymbol{I}$: Laserintensität)

für die einzelnen Abschnitte im Energiespektrum, wo die verschiedenen nPPE Prozesse zu erwarten sind (siehe Abbildung 34), zu beobachten. Diese Methode ist mit dem benutzen Spektrometer nicht zugänglich¹⁶. Banfi at al. ist diese Methode in Ihren Experimenten jedoch zugänglich und es zeigt sich, dass es sich danach um keinen Multiphotonen Prozess handelt.



Abbildung 34: Zuordnung der nPPE Prozesse zu ihren jeweiligen Abschnitten im Energiespektrum.

Ein Multiphotonenprozess kann jedoch nicht völlig ausgeschlossen werden, da es eine Vielzahl von Effekten gibt, die die beide Argumente (Strukturen im Energiespektrum und die Skalierung mit $\Gamma_{n_{ph}} \propto I^{n_{ph}}$) relativieren könnten. Dazu zählen zum einen bestimmte Oberflächenstrukturen und Verschmutzungen, sowie mögliche Resonanzen in der der Bandstruktur von Blei.

4.2.4 Tunnelionisation

Bei Atomen kann für Laserintensitäten, bei denen das elektrische Feld in der Größenordnung der Bindungsenergie liegt und die Wellenlänge des Lasers im Vergleich zu den Atomabmessungen groß ist, zu einer klassischen Beschreibung des Laserfeldes übergegangen werden. Dabei lässt sich für eine kurze Zeit, über die Dimensionen des Atoms, ein konstantes felderzeugendes Potential annehmen, welches sich zum Kernpotential addiert.

¹⁶ Die möglichen Intensitätseinstellungen sind zu schmal aufgrund der maximal verträglichen Eventrate.

Durch Superposition entsteht eine Potentialbarriere (siehe Abbildung 35), die es einem Elektron mit einer gewissen Wahrscheinlichkeit erlaubt, hindurch zu tunneln. Das getunnelte Elektron nimmt anschließend im Laserfeld kinetische Energie auf.



Abbildung 35: Links: Eindimensionales Modell eines gebundenen Elektrons | Rechts: Tunnelionisation (Blau: Ein gebundener Zustand, Schwarz: Kern Potential, Rot: potentielle Energie des Laserfeldes)

4.2.4.1 Keldysh-Parameter

Der sogenannte Keldysh-Parameter gibt einen Hinweis darauf, ob sich der Photonenprozess für ein gegebenes Atom, abhängig von der Lichtintensität, besser mit einem Multiphotonen-Modell oder mit einem Tunnel-Modell beschreiben lässt. Der Keldysh-Parameter ist definiert durch

$$\gamma = \sqrt{\frac{I_p}{2U_p}} = \frac{2\pi}{e\lambda} \sqrt{m_e \varepsilon_0 c^3 \frac{I_p}{I}}$$
(0.17)

mit I_p : Ionisationspotential des Atoms, U_p : ponderomotiven Energie, I: der Maximalintensität im Laserfokus, λ : Wellenlänge des Lasers sowie einiger Fundamentalkonstanten.

Für $\gamma > 1$ lässt dich das System besser mit einem Multiphotonen-Modell beschreiben, für $\gamma < 1$ ist eine klassische Beschreibung (Tunnel-Modell) besser. Der Übergang zwischen den beiden Regimen ist fließend d.h. für Werte nahe Eins sind beide Betrachtungen adäquat.

Unter der Annahme dieses Prinzip ließe sich auf den Photonenprozess an Oberflächen übertragen, lässt sich mit Hilfe des Keldysh-Parameters abschätzen, ob es sich tatsächlich um einen Tunnelprozess handeln kann.

Nimmt man als Ionisationspotental die Austrittsarbeit von Blei (W_{Blei}=4,4 eV) und eine Laserintensität von $I = 1 \cdot 10^9 \frac{W}{cm^2}$ bei der Laserwellenlänge $\lambda = 780nm$, ergibt sich der Keldysh-Parameter zu ungefähr 200. Es ist also keine Beschreibung in einem Tunnel-Modell angebracht.



Abbildung 36: Der Keldysh-Parameter von Blei gegen die Laser-Intensität.

In der obigen Abbildung 36 erkennt man, das eine Beschreibung mit dem Tunnel-Modell erst ab einer Laserintensität von über $1 \cdot 10^{13} \frac{W}{cm^2}$ angebracht ist, welche weit über den erreichbaren Laserintensitäten in diesem Experiment liegt.

4.2.5 Oberflächenplasmonen und Oberflächen Rauheit

Im vorherigen Abschnitt hat man sehen, dass Tunnelionisation bei den verwendeten Laserintensitäten im Prinzip nicht möglich ist. Es ist allerdings bekannt, dass es zu einer enormen Verstärkung des elektrischen Feldes, bei rauen Oberflächen, durch die Anregung von Oberflächenplasmonen kommen kann (beschrieben in [Hei88]). Auch wenn dies bei Blei sehr unwahrscheinlich ist, da die nötigen Anregungsenergien über den Pulsenergien liegen, sind andere feldverstärkende Effekte nicht gänzlich auszuschließen.

Um eine Abschätzung für die nötige Feldverstärkung zu erhalten, lässt sich der zuvor eingeführte Keldysh-Parameter auch direkt abhängig vom elektrischen Feld darstellen:



31

Abbildung 37: Der Keldysh-Parameter und die maximale kinetische Energie der Elektronen gegen das elektrische Feld geplottet.

Das elektrische Feld (im Vakuum) des verwendeten Lasers (Intensität $I = 1 \cdot 10^9 \frac{W}{cm^2}$ und Wellenlänge $\lambda = 780 nm$) ergibt sich zu:

$$E = \sqrt{\frac{2 \cdot I}{\varepsilon_0 \cdot c}} = 8,68 \cdot 10^7 \frac{V}{m}$$
(0.19)

Am Keldysh-Parameter in Abbildung 37 kann man ablesen, dass ein elektrisches Feld von $\approx 2 \cdot 10^{10}$ V/m für Tunnelionisation nötig wäre. Daraus folgt das in diesem Versuch eine elektrische Feldverstärkung um 2 bis 3 Größenordnungen stattfinden müsste.

Die theoretisch maximale kinetische Energie der ausgelösten Elektronen ist ebenfalls in Abbildung 37 geplottet. Man erkennt, dass sobald Tunnelionisation bei Blei möglich ist, die Elektronen eine kinetische Energie größer als \approx 4 eV besitzen. Durch dieses Modell lassen sich also die hohen gemessenen Energien der Elektronen (bis 13 eV) erklären.

Dieses Modell (bei Silber [MAe95]) hängt durch die lokalen Oberflächenplasmonen direkt mit der Oberflächenrauheit der Probe zusammen. Von Banfi et al. wurde diese Abhängigkeit gezielt Untersucht [Gia03] und es konnte keine Anhängigkeit feststellen werden.

4.2.5.1 Anhängigkeit von der Laser Polarisation

Um eine mögliche Abhängigkeit von der P- und S- Polarisation des Lichtes zu untersuchen, wurde das Laserlicht mit einem $\lambda/2$ -Plättchens gedreht. Für eine Definition von P- und S- Polarisation siehe Abbildung 38.



Abbildung 38: P- und S- Polarisiertes Licht (P: e-Feld parallel zur Einfallsebene, S: e-Feld senkrecht zur Einfallsebene)

Im Experiment hat sich eine sehr starke Abhängigkeit der Eventrate¹⁷ von der Polarisation gezeigt. Bei gleicher Laserintensität und Spotposition, war die Eventrate für S- Polarisiertes Licht ungefähr um den Faktor 3,5 größer, als für P- Polarisiertes Licht. Eine mögliche Erklärung sind mögliche Resonanzen in der Bandstruktur (oder besondere Obenflächenstrukturen), entlang bestimmter Richtungen im Kristall, die nur S-Polarisierten Licht bzw. den Feldern zugänglich sind.

In Abbildung 39 sind die Parallelimpulse der Elektronen für feste Bereiche der kinetischen Energie dargestellt. Die beiden Bilderreihen enthalten die gleiche Anzahlt von gültigen Events. Man erkennt dass S-polarisiertes Licht nominal zu größeren kinetischen Energien führt.



Abbildung 39: Vergleich zwischen der Parallelimpuls Komponenten für P- und S- Polarisiertes Licht, abhängig von der Elektronen Energie (Energie-Schrittgröße 1,1eV)

4.2.6 Thermische Emission durch lokalisierte Oberflächenplasmonen an Störstellen

Banfi et al. schlagen als Erklärung vor, dass durch die Kopplung des Laserfeldes nur an lokalisierte Oberflächenplasmonen an sogenannten Hot Spots (kleine Störstellen an der Oberfläche im Nanometer-Bereich), eine Feldverstärkung um den Faktor 30 bis 40 erreicht wird. In dieser Situation ist es möglich, Oberflächen-Elektronen-Temperaturen an diesen Hot Spots von $T_s \approx 0,5$ eV (bei hv =

1,57 eV und eine Laserintensität von $I = 1 \cdot 10^9 \frac{W}{cm^2}$) zu erreichen, was zu einer thermischen

Emission führen würde.

Auf die Winkelverteilung der emittierten Elektronen, wird in der Arbeit [Gia03] leider nicht eingegangen. Da aber eine thermische Emission auf den ersten Blick homogen verteilt sein sollte, steht diese Erklärung im Widerspruch zu den in diesem Experiment aufgezeichneten Daten.

4.3 Cooper-Paare

In den Spektren hat sich kein Hinweis auf Cooper-Paare gezeigt. Nachdem mögliche Mechanismen in Kapitel 4.2 diskutiert wurden, stellt sich also Frage ob Cooper-Paare in diesem Experiment zukünftig überhaupt nachweisbar sein werden. Gründe weshalb der Nachweis nicht möglich sein könnte:

¹⁷ Aufgezeichnete Events (Elektronen) pro Sekunde

- Die zugeführte thermische Energie durch den Laser führt zu einem der Cooper-Paare (siehe 4.2.2 Thermische Emission).
- Existieren Oberflächenplasmonen in der Probe (4.2.5 Oberflächenplasmonen und Oberflächen Rauheit), kann dies zu einem Verlust der Supraleitung bzw. Aufbrechen der Cooper-Paare führen [TMM91].
- Handelt es sich um eine raue Oberfläche, ist fraglich ob in dem "Gebiet" von welchem aus Elektronen tunneln, überhaupt Cooper-Paare existieren.

In diesem Experiment ist der Zeitpunkt des Aufbrechens entscheidend. Bricht das Cooper-Paar auf, bevor es als solches tunnelt, unterscheiden sich die beiden Elektronen nicht mehr von zwei "normalen" Elektronen, ein Nachweis ist wäre also nicht mehr möglich.

5 Zusammenfassung und Ausblick

Im dieser Arbeit ist es gelungen die Coltrims-Technik erfolgreich für die Untersuchen an Oberflächen mir ultrakurzen Laserpulsen einzusetzen. Die gesammelten Daten stimmen qualitativ mit vergleichbaren Experimenten ([MAe95] , [MAe94] , [Gia03]) überein.

Bei den in diesem Experiment verwendeten geringen Laserintensitäten und den damit verbundenen geringen Zählraten, ist die Coltrims-Technik aufgrund des großen abgedeckten Raumwinkels, sehr gut geeignet. Eine sehr interessante Aufgabenstellung für die Zukunft, die anderen Detektorsystemen nur schwer zugänglich ist, ist die Untersuchung ab welchen Laserintensitäten Elektronen mit hohen kinetischen Energien ausgelöst werden, sowie die Abhängigkeit der Energieverteilung von der Laserintensität.

Die wesentlichen Ergebnisse im Überblick:

- Es ist tatsächlich möglich, die Laserintensität soweit zu verringern, dass pro Laserpuls nur wenige Elektronen emittiert werden (im Schnitt weniger als ein Elektron pro Laserpuls).
- Die erreichte kinetische Energie der emittierten Elektronen reichte bis zu 16eV.
- Schnelle Elektronen (> 4 eV) verlassen die Probe fast senkrecht zur Oberfläche.
- Elektrische Felder parallel zur Oberfläche (s-Polarisiert) waren viel effektiver, als ein senkrechtes elektrisches Feld (p-Polarisiert).

Vor allem für zukünftige Experimente, wurden mit dieser Arbeit wichtige Erfahrungen gesammelt. Für spätere Experimente zu beachtende Details:

- Die Parameter: Laserintensität, Spotgröße und Pulsdauer müssen sehr viel genauer bestimmt werden.
- Mit einem LEED-System könnten die Lage und Qualität des Kristallgitters kontrolliert werden.
- Photoemission wurde auch schon direkt mit dem Oszillator (also nicht verstärkte Pulse) beobachtet. Das System lässt sich also um eine bessere Statistik zu erreichen mit 80 MHz Repititionsrate des Lasers fahren, allerdings auf Kosten der Energieauflösung.

Abschließend ist zu sagen, dass die Coltrims-Technik auf dem Gebiet der Oberflächenphysik mit ultrakurzen Laserpulsen eine vielversprechende Ergänzung zur bisherigen Methoden darstellt, insbesondere die Möglichkeit durch Koinzidenzmessungen direkt Korrelationseffekte zu beobachten.

6 Abbildungsverzeichnis

Abbildung 1: Sprunghafter Widerstandsverlust bei Supraleitern und die theoretischen Annahmen vor 1911.	
(QUELLE: [WER04])	2
Abbildung 2: Cooper-Paar dargestellt in einem Feynman-Diagramm (entnommen [Kat99])	3
Abbildung 3: Bändermodell eines Supraleiters (entnommen [Kat99])	4
Abbildung 4: <i>Links:</i> Gesamtimpuls Cooper-Paar K ≠ 0. Die Impulserhaltung ist nur erfüllt wenn die Wellenvektor	EN
der beiden Elektronen innerhalb der dunkel schaffierten Bereiche liegen. <i>Rechts:</i> K = 0. Typischer Streuproz	ZESS
IN EINEM COOPER-PAAR. DIE ELEKTRONEN ÄNDERN ZWAR IHRE EINZELNEN IMPULSE, DER GESAMTIMPULS BLEIBT ABER BEI	0.5
Abbildung 5: Theoretische Emissions-Geometrie eines Cooper-Paars (Entnommen: [KAK03])	5
Abbildung 6: Das aktuelle Experimentierkammer im Überblick	6
Abbildung 7: Links: Flugbahn der Elektronen mit unterschiedlichen Startimpulsen. Rechts: 3D-Modell des	
VERWENDETEN FLUGZEITSPEKTROMETERS INKLUSIVE DER 2 GITTER.	7
ABBILDUNG 8: A) ELEKTRON PASSIERT GITTER 1 OHNE ZU KOLLIDIEREN. B) ELEKTRON KOLLIDIERT MIT GITTER 1 UND WIRD VON DI	ESEM
ZURÜCKGESAUGT. C) ELEKTRON KOLLIDIERT MIT GITTER 1 UND WIRD STARK VERZÖGERT.	7
Abbildung 9: Links: MCP und seine Funktionsweise Rechts: 3 MCPs in "Z-Stack"-Anordnung	8
Abbildung 10: Eine Elektronen-Lawine trifft auf die Delay-Line Anoden	8
Abbildung 11: Aufbau einer Hex-Anode	9
Abbildung 12: Prinzip der Flugzeit Messung	10
Abbildung 13: Schematischer Überblick über die verwendete Elektronik (PT: Pulstransformator, FA: Schneller	
VERSTÄRKER, IA: INVERTIERENDER VERSTÄRKER, CFD: CONSTANT FRACTION DISCRIMINATOR)	10
Abbildung 14: Flugzeit Spektren aufgenommen an einer Schmutzigen und Sauberen (gespottert) Bleiprobe	12
Abbildung 15: Das Vakuum-System der Kammer	13
Abbildung 16: Zeitlicher Verlauf der Temperaturn und des Drucks	14
Abbildung 17: Schematischer Aufbau der Kühlung. Mit dem Ventil lässt sich der Fluss des Heliums steuern und	
dadurch der Ort des Phasenübergangs verschieben.	15
Abbildung 18: Magnetische Induktion (B) im Supraleiter (Blei) abhängig von der Temperatur	16
Abbildung 19: Aufbau der Primär- und Pick-Up- Spule	16
Abbildung 20: Funktionsweise eines Lock-In Verstärkers (Erklärung siehe Text)	18
ABBILDUNG 21: DAS SIGNAL DER PICK-UP SPULE BEI EINEM PHASENWECHSEL: SUPRALEITEND - NORMALLEITEND - SUPRALEITENI	o 19
Abbildung 22 Schematischer Aufbau des Laser-Systems	20
Abbildung 23: Schematischer Aufbau des Lasersystems (Vorlage entnommen von Kanses-Light-Source, KLS)	21
ABBILDUNG 24: ENERGIESPEKTRUM EINES EINZELNEN ELEKTRONS - BLEIPROBE SUPRALEITEND	22
Abbildung 25: Energiespektrum eines "zweiten" Elektrons - Gleicher Datensatz wie in Abbildung 22	22
ABBILDUNG 26: POSITION AUF DEM DETEKTOR ABHÄNGIG VON DER KINETISCHEN ENERGIE - GLEICHER DATENSATZ WIE IN ABBILD	UNG
22 UND 23	23
Abbildung 27: Das Ortsbild auf dem Detektor abhängig von der kinetischen Energie (Energiefenster jeweils	
angegeben) - Probe Supraleitend	24
ABBILDUNG 28: DIE PARALLELIMPULS KOMPONENTEN ABHÄNGIG VOM SENKRECHTEN IMPULS ABTEIL [X- UND Y-ACHSEN SKALA II	N
atomaren Einheiten] – Probe Supraleitend	25
ABBILDUNG 29: SCHEMATISCHE DARSTELLUNG EINES EIN-, ZWEI-, UND MULTIPHOTONENPROZESS BEI KUPFER. DIE GRUNDENERG	iΕ
des Lasers ist hn ₁ , die nächsten höher harmonischen Energien sind hn ₂ und hn ₃ . Entnommen aus [MAe95] .	26
Abbildung 30: Ein-Photon-, Zwei-Photonen- und Multiphotonen- Emissionsspektrum für Cu(110). (A), (B) und (C)	1
WURDEN MIT DEN PHOTONENENERGIEN HN3, HN2 UND HN1 GEMESSEN. DIE MAXIMALEN LASERINTENSITÄTEN LAGEN BEI 12	x10 ⁴
W/cm ² , 1x10' W/cm ² und 1x10' W/cm ² . Entnommen aus [MAe95] .	26
Abbildung 31: Die Energie von zwei Elektronen die vom gleichen Laserpuls ausgelöst wurden. (x- und y-Achse in e	V)
	27
ABBILDUNG 32: EXPONENTIELLER FIT AN DIE ENERGIE VERTEILUNG DER EMITTIERTEN ELEKTRONEN - BLEI SUPRALEITEND	28
ABBILDUNG 33: ENERGIESPEKTRUM FÜR XENON MIT 100PS LANGEN, LINEAR POLARISIERTEN PULSEN (Λ =1064 nm, HV = 1,17 e ⁻¹	V,
I _{peak} =2x10 ⁺⁺ W/cm ⁺). Der Abstand der Peaks entspricht der Energie eines Photons. (entnommen aus [PHB86))
	29

29
30
31
.D
32
32
33
1
39
41
43
44

7 Literaturverzeichnis

[Dör00] Dörner, Mergel, Jagutzki, Spielberger, Ullrich, Moshammer und Schmidt-Böcking. 2000. Cold Target Recoil Ion Momentum Spectroscopy: A 'Momentum Microscope'.. Uni Frankfurt : s.n., 2000.

[Alb05] Einstein, Albert. 1905. Annalen der Physik 17. 1905.

[GPe92] G. Petite, P. Agostini, R. Trainham, E. Mevel, and P. Martin. 1992. Origin of the high-energy electron emission from metals under laser irradiation. Gif-sur-Yvette, France : Phys. Rev. B 45, 12210–12217, 1992.

[Gia03] GianPiero Banfi, Gabriele Ferrini, Marco Peloi, and Fulvio Parmigiani. 2003. *Anomalous photoemission from Ag(100) in the temtosecond regime.* s.l. : Physical Review, 2003. Physical Review B 67.

[Mir04] Hattaß, Mirko. 2004. Dissertation: Koinzidenz-Spektroskopie an Oberflächen: Zwei-Elektronen-Photoemission von Cu(111). Uni Frankfurt : s.n., 2004.

[SHü95] Hüfner, S. 1995. *Photoelectron spectroscopy: principles ans applications*. Berlin : Springer, 1995.

[JBa57] J. Bardeen, L. N. Cooper, and J. R. Schrieffer. 1957. *Theory of Superconductivity*. Department of Physics, University of Illinois, Urbana, Illinois : Phys. Rev. 108, 1175–1204, 1957.

[KAK03] K. A. Kouzakov, J. Berakdar. 2003. *Photoinduced Emission of Cooper Pairs from*. Max-Planck-Institut für Mikrostrukturphysik, Halle : Phys. Rev. Lett. 91 (257007), 2003.

[HKa11] Kamerlingh-Onnes, H. 1911. s.l. : Comm. Leiden Suppl. Nr. 34, 1911.

[HKa08] —. 1908. s.l. : Proc. Roy. Acad. Amsterdamm 11, 168, 1908.

[MAe95] M. Aeschlimann, C. A. Schmuttenmaer, H. E. Elsayed-Ali and R. J. D. Miller. 1995. *Observation of surface enhanced multiphoton photoemission from metal surfaces.* s.l. : American Institute of Physics, 1995. 102.

[MAe94] M. Aeschlimann, C. A. Schmuttenmaer, H. E. Elsayed-Ali, and R. J. D. Miller. 1994. Observation of surface enhanced multiphoton photoemission from metal surfaces in the short pulse limit. Rochester : Chem. Phys. 102 (21), 1994.

[Kat99] M., Kathke. 1999. *Seminararbeit: Supraleitung - Seminarleitung; Prof. Samm.* Fachhochschule Achen : s.n., 1999.

[TMM91] Mishonov, T. M. 1991. *Predicted plasma oscillations in der Bi2Sr2CaCu2O8 hightemperature superconductor.* Moscow, U.S.S.R. : Physical Review B Volume 44 Number 21, 1991.

[PHB86] P.H. Bucksbaum, M. Bashkansky, R.R. Freeman, T.J. McIlrath, and L.F. Di-Mauro. 1986. 1986, S. Phys. Rev. Lett. 56, 2590.

[WMe33] R.Ochsenfeld, W. Meißner. 1933. s.l. : Naturwissenschaften: 21, 787, 1933.

[Hei88] Raether, Heinz. 1988. Surface plasmons on smooth and rough surfaces and on gratings. Berlin : Springer, 1988.

[Wer04] Werner Buckel, Reinhold Kleiner. 2004. *Supraleitung - Grundlagen und Anwendung.* Tübingen : Wiley-VCH, 2004.

8 Anhang

8.1 Quad-Anode

Eine Anordnung, aus nur zwei Delay-line Anoden (z.B. Quad-Anode), hat Defizite bei gleichzeitig auftreffenden Elektronen, was für dieses Experiment allerdings entscheidend ist. Dies ist Beispielhaft in Abbildung 40 dargestellt: Zwei Elektronen die gleichzeitig in A und B auftreffen lassen sich Anhand der Signale nicht von zwei Elektronen die gleichzeitig in A* und B* auftreffen unterscheiden.

Hinzukommt die größere Totzeit¹⁸ der Anodendrähte, im Vergleich zu einer Hex-Anode, aufgrund der nicht redundanten Signalinformationen.



Abbildung 40: Quad-Anode: Gleichzeitige Elektronenlawinen in A und B lassen sich nicht von Elektronenlawinen in A* und B* unterscheiden.

¹⁸ Signale können nicht beliebig nahe voneinander starten bzw. laufen.

8.2 Photoemission von Oberflächen

Photoemission beschreibt das Auslösen von Elektronen, den sog. Photoelektronen, durch ein Photon. Dabei übertragt das Photon seine gesamte Energie $E_{photon}=\hbar\omega$ auf ein oder mehrere Elektronen. In der Atom- und Festkörper- bzw. Oberflächen Physik lässt sich bei wohlbekannter Energie der Photonen und der gemessenen kinetischen Energie E_{kin} ein Rückschluss auf die Bindungsenergien bzw. Energieeigenwerte ziehen. Beschrieben durch die Gleichung

$$E_{kin} = E_{photon} - E_b \,. \tag{0.20}$$

Die Bindungsenergie E_b bezieht sich hier auf die Fermi-Energie, d.h. die höchste besetzte Energie im Festkörper. Um freie Elektronen spektroskopieren zu können, müssen diese allerdings das Vakuumlevel erreichen. Die dazu zusätzlich nötige Energie, also der Abstand der Fermienergie zum Vakuumlevel, wird mit der Austrittsarbeit W_{Φ} (engl. "work function") beschrieben. Die tatsächliche beobachtbare Energie der Elektronen, lautet also korrigiert

$$E_{kin} = E_{photon} - E_b - W_{\Phi}. \tag{0.21}$$

Für die Beschreibung der Elektronen im Festkörper ist die Bindungsenergie alleine noch nicht ausreichend, zusätzlich muss der Impuls bzw. der Wellenzahlvektor k des Elektrons im Festkörper berücksichtigt werden. Die Abhängigkeit der Bindungsenergie vom Wellenzahlvektor wird als Bandstruktur bezeichnet. Somit lässt sich die vollständige Gleichung der Photoelektronen schreiben als

$$E_{kin} = E_{photon} - E_b(k) - W_{\Phi}. \tag{0.22}$$

Die Aufnahmen der Photoelektronen, mit beliebigen experimentellen Techniken, wird als Photoelektronenspektroskopie (PES) bezeichnet. Das Konzept ist in Abbildung 41 dargestellt.



Abbildung 41: Das Prinzip der Photoemmision von Festkörpern (entnommen [SHü95]).

Um die winkelaufgelöste Photoelektronenspektroskopie zu interpretieren und theoretisch zu beschreiben, gibt es im Wesentlichen zwei Modelle, die häufig zur Anwendung kommen. Zum einen das Drei-Stufen-Modell der Photoemission, welches die beobachtbaren Effekte auf einer eher phänomenologischen Basis untersucht. Dieses Modell ist besonders hilfreich bei der Interpretation der experimentellen Daten. Für die moderne theoretische Beschreibung hat sich das Ein-Stufen-Modell durchgesetzt, auf welches hier allerdings nicht eingegangen werden wird.

Das Drei-Stufen-Modell der Photoemission:

Phänomenologisch lässt sich die Photoemission bei Festkörpern in drei separate Teilabschnitte unterteilen und wird deshalb in Literatur als das "drei Stufen Modell" bezeichnet. Nach dem Modell erfolgt erst eine Anregung des Elektrons durch ein Photon, anschließend der Transport durch den Festkörper zur Oberfläche und letztlich die Überwindung einer Oberflächenbarriere.

1. Optische Anregung des Elektrons

Der Elektronenzustand im Festkörper wird durch die Bandstruktur (E(k)) beschrieben, was einer Blochwelle entspricht. Vernachlässigt man den Photonenimpuls, entspricht die Elektronenanregung einem direkten, vertikalen Übergang (impulserhaltend) im reduzierten Zonenschema (siehe Abb. Unten). Für die Endzustände werden *bulk*-Zustände gewählt. Für die Interpretation von experimentellen Daten, kann oft der Ansatz einer freien ebenen Welle gewählt werden, wenn die Anregungsenergie deutlich über dem Fermi-Niveau liegt ("free-electron-final-state").

2. Transport zur Oberfläche

Beim Transport des Elektrons zur Oberfläche, kommt es zu elastischen und inelastischen Stößen mit dem Gitter und den Elektronen im Festkörper. Wobei die Elektron-Elektron-Stöße dominieren. Beschrieben wird der Verlust von Elektronen mit Hilfe der mittleren freien Weglänge $\lambda(E,k)$ beschrieben [SHü95]. Wobei angenommen wird, dass die Stoßfrequenz $1/\tau$ (τ = Lebenszeit) lediglich eine Funktion der Energie (E) ist

$$\lambda(E,k) = \tau v_g = \frac{\tau}{\hbar} \frac{dE}{dk}, \qquad (0.23)$$

wobei v_g die Gruppengeschwindigkeit im Endzustand angibt. Mit einer klassischen Betrachtung, findet sich ein Koeffizient d(E,k), welcher den Anteil der Photoelektronen beschreibt, die die Oberfläche erreichen.

$$d(E,k) \Box \frac{\alpha \lambda}{1+\alpha \lambda} \tag{0.24}$$

 $\boldsymbol{\alpha}$ ist der optische Absorptionskoeffizient der Strahlung im Festkörper.

3. Übergang ins Vakuum

Der Übergang der Elektronen ins Vakuum lässt sich analog zur Lichtbrechung beim Übergang in ein Medium mit optisch geringerem Brechungsindex (Snellius-Gesetz) beschreiben. Dabei wird vereinfacht eine 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 noch immer in einem Potential-Topf der Tiefe $V=E_{Fermi}+W_{\Phi}=E_{Vakuum}-E_0$. Deshalb müssen Elektronen die den Festkörper verlassen, die Bedingung

$$\frac{\hbar^2}{2m}K_{\perp}^2 \ge E_{Vakuum} - E_0 \tag{0.25}$$

erfüllen. Elektronen, die nicht genügend kinetische Energie in Richtung der Oberflächennormalen haben, erfahren an der Grenzschicht eine Totalreflektion und verbleiben im Festkörper. Entscheidend für das Experiment ist, dass die Potentialbarriere lediglich auf die senkrechte Bewegungskomponente ($\vec{n} = \vec{e}_z$) wirkt (es gilt $\partial V / \partial z \neq 0$ und $\partial V / \partial x = \partial V / \partial y = 0$) und die Bewegungskomponenten parallel zur Oberfläche erhalten bleiben. Die Wechselwirkung an der Oberfläche führt zu einer Änderung des Emissionswinkels θ der Elektronen (Wellenvektor \vec{p} / \hbar) relativ zum Emissionswinkels θ ' innerhalb des Festkörpers (Wellenvektor \vec{K} '). Für die Parallelkomponente abhängig von der Energie und Winkel gilt:

$$p_{\Box} / \hbar = \sin \theta \sqrt{\frac{2m}{\hbar^2} E_{kin}} = \sin \theta' \sqrt{\frac{2m}{\hbar^2} E_{Fermi} - E_0} = K_{\Box}$$
(0.26)

Mit der Bedingung (0.25) ergibt sich ein kritischer Emissionswinkel, ab welchem Elektronen den Festkörper nicht mehr verlassen können:

$$\theta_{krit} = \arcsin\left(\frac{E_{kin}}{E_f - E_0}\right)^{1/2}$$
(0.27)

Für den Winkelbereich $0 \le \theta' \le \theta_{krit}$ ergibt sich ein Kegel, innerhalb dem das Auslösen von Elektronen aus dem Festkörper möglich ist. Dieser Kegel wird deshalb "Flucht-Kegel" (escape cone) genannt. Zusammengefasst ist der Übergang ins Vakuum in der Abbildung 42 dargestellt.



Abbildung 42: Geometrische Konstruktion des Fluchtkegels (escape cone) für das einfache Modell der Oberfläche. Von der verfügbaren Impuls-Kugel mit Radius |K| wird der Anteil |K| abgeschnitten. Der verbliebene Winkelbereich definiert den Öffnungswinkel des Fluchtkegels. (entnommen aus [Mir04])

Normale Photoelektronenspektroskopie wird mit Photonen im Ultravioletten (5 bis 100eV,UPS), leichten Röntgen (100 bis 1000eV,SXPS) oder Röntgen (> 1000eV,XPS) Bereichen durchgeführt. Dabei reicht schon ein einzelnes Photon um einem Elektron die nötige Energie zu übertragen, um die Austrittsarbeit (Blei: 4,5eV) zu überwinden (Vergleiche Abbildung 41).

In diesem Experiment, werden Photonen mit einer mittleren Energie ca. 1,57 eV verwendet. Diese können in einem "klassischen" Bild, nicht zur Photoemission führen. Bei hohen Intensitäten hingegen, lässt sich mit Hilfe der Störungstheorie das Koppeln mehrerer Photonen an ein einzelnes Elektron beschrieben. Das Drei-Stufen-Modell ist dabei direkt anwendbar, die Anregungsenergie entspricht dabei Vielfachen der Energie eines einzelnen Photons.

8.3 Tests mit dem Oszillator

Zu Beginn dieser Arbeit, wurde für Testzwecken eine polykristalline Kupferprobe (vermutlich eine sehr raue Oberfläche), alleine mit dem Oszillator bestrahlt. Der Strahl wurde nicht fokussiert, die Lichtintensität muss somit unter $I = 1 \cdot 10^8 \frac{W}{cm^2}$ gelegen haben. Trotzdem konnte Photoemission mit hohen kinetischen Energien der Elektronen beobachtet werden:



Abbildung 43: Aufgezeichnetes Energiespektrum von Kupfer

8.4 Abstract

Coincidence Spectroscopy on a superconducting surface: Pb (111)

Tobias Bauer¹, Robert Wallauer¹, Stefan Voss¹, Henning Hohls¹, Deborah Schneider¹, Lothar Schmidt¹, Horst Schmidt-Böcking¹, Reinhard Dörner¹

¹Experimental Atom Physics Group Johann Wolfgang Göthe University Frankfurt a.M., Germany

With a new coincidence momentum imaging technique we investigated the emission of two electrons by applying a strong laser field to a Pb(111) surface. In our setup the photon beam is incident under 70 degrees to the surface normal. For the ionization process we are using ultra short laser pulses (12fs, 830nm) to generate an intense electric field at the surface of the superconductor, strong enough for electrons to tunnel through the potential barrier. Emitted electrons are guided by a homogeneous electric field onto the time- and position-sensitive detector. With this detection method we are able to cover the full 2π solid angle with a high coincidence efficiency. First results will be presented for superconducting and non-superconducting phase.

References:

 M. Hattass, T. Jalowy, A. Czasch, Th. Weber, T. Jahnke, S. Schössler, L. Ph. Schmidt, O. Jagutzki, R. Dörner, and H. Schmidt-Böcking, Rev. Sci. Instr. 75 (2004) 2373

Acknowledgments: We would like to thank Roentdek GmbH for their support with multihit detektors.