

Untersuchung der Elektronenimpulsdichten von Festkörpern mit koinzidenter Comptonstreuung

Dissertation
der Fakultät für Physik
der
Ludwig-Maximilians-Universität
München

vorgelegt von
Christian Metz
aus Mannheim

13. Dezember 1999

1. Gutachter: Prof. Dr. F. Bell

2. Gutachter: Prof. Dr. J. Peisl

Tag der mündlichen Prüfung: 05. Juli 1999

Zusammenfassung

Es werden Messungen der dreidimensionalen Elektronenimpulsdichten verschiedener Festkörpersysteme mit koinzidenter Compton-spektroskopie vorgestellt. Die Grundlage dieser Meßmethode ist die Comptonstreuung eines hochenergetischen Photons, welches in Koinzidenz mit dem Rückstoßelektron nachgewiesen wird. Während in der klassischen Compton-spektroskopie lediglich das gestreute Photon nachgewiesen wird und die Meßgröße daher die über die Ebene senkrecht zum Streuvektor integrierte Elektronenimpulsdichte ist, ermöglicht der koinzidente Nachweis der beiden Streupartner die vollständige Bestimmung der Streukinematik und damit die Messung der dreidimensionalen Impulsdichte. Die kurze mittlere freie Weglänge von Elektronen für inkohärente elastische Streuung in Festkörpern erfordert die Benutzung von freistehenden Probenfolien mit Dicken in der Größenordnung einiger Nanometer und von Primärphotonen mit Energien oberhalb 100 keV. Gleichzeitig führt der kleine dreifach differentielle Wirkungsquerschnitt der Comptonstreuung dazu, daß in solchen Proben typischerweise nur ein Photon aus 10^6 gestreut wird. Für die beschriebenen Experimente wurden daher die intensive Synchrotronstrahlung eines Multipolwigglers an der Europäischen Synchrotronstrahlungseinrichtung in Grenoble genutzt. Es wurde die dreidimensionale Elektronenimpulsdichte von Aluminium an einer 104 nm dicken Probenfolie gemessen. Die experimentellen Ergebnisse zeigen eine gute Übereinstimmung mit einer theoretischen Impulsdichte, berechnet mit der "linear muffin tin orbital" Methode. Die Übereinstimmung konnte noch verbessert werden durch die Einbeziehung der sogenannten Lam-Platzman Korrektur, die bei der Berechnung von Impulsdichten im Rahmen der Dichtefunktionaltheorie notwendig ist. Eine Messung der dreidimensionalen Impulsdichte einer 13 nm dicken Graphitprobe wurde sowohl mit einer "linear muffin tin orbital" Rechnung als auch mit einer Pseudopotentialrechnung verglichen. Die experimentellen Daten zeigen eine bessere Übereinstimmung mit der ersteren. Bei einer Messung der dreidimensionalen Elektronenimpulsdichte einer Fullereneprobe konnte durch den Vergleich mit einer theoretischen Impulsdichte von Graphit und einer Molekularorbitalrechnung der Impulsdichte von Fullerenen die vorhergesagte Veränderung der Impulsdichte durch die unterschiedliche Hybridisierung der Bindungen bestätigt werden. Schließlich wurden die Impulsdichten eines Kupfer-Nickel Schichtsystems und einer Kupfer-Nickel Legierung von jeweils 44 nm Dicke gemessen. Eine Korringa-Kohn-Rostoker Rechnung sagt Differenzen zwischen diesen beiden Impulsdichten aufgrund der Legierungsbildung voraus. Wegen der Kleinheit dieses Effektes konnten Differenzen in den experimentellen Daten erst durch Integration über zwei Impulskomponenten beobachtet werden. Die theoretischen Differenzen werden in etwa wiedergeben.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	7
2	Grundlagen der $(\gamma, e\gamma)$-Spektroskopie	11
2.1	Die Elektronenimpulsdichte in kristallinen Festkörpern	11
2.2	Wirkungsquerschnitt	14
2.3	Festlegung der Kinematik	16
2.4	Weitere Methoden zur Messung der Elektronenimpulsdichte	18
3	Experimenteller Aufbau	21
3.1	Der Meßplatz ID15A an der ESRF	22
3.2	Monochromator	24
3.3	Die Streukammer	26
3.4	Detektorsystem und Koinzidenzelektronik	27
3.4.1	Der Photonendetektor	28
3.4.2	Der Elektronendetektor	29
3.4.3	Die Elektronik	31
4	Vergleich der theoretischen mit den experimentellen Impulsdichten	41
4.1	Elektronenvielfachstreuung	41
4.2	Monte-Carlo Simulation der experimentellen Verteilung	46
4.3	Auflösungsfunktion	48
5	Messungen und Resultate	53
5.1	Zusammenfassung der experimentellen Parameter	53
5.2	Bearbeitung der Rohdaten und Normierung	54
5.3	Aluminium	56
5.3.1	Herstellung und Charakterisierung der Proben	56
5.3.2	Theoretische Elektronenimpulsdichte von Aluminium	59
5.3.3	Resultate	66
5.3.4	Zusammenfassung	72
5.4	Graphit und Fullerene	73
5.4.1	Herstellung und Charakterisierung der Proben	74
5.4.2	Theoretische Elektronenimpulsdichten von Graphit und Fullerenen	74
5.4.3	Resultate	76
5.4.4	Zusammenfassung	82

Inhaltsverzeichnis

5.5	Kupfer–Nickel Schichtsystem und Legierung	82
5.5.1	Herstellung und Charakterisierung der Proben	83
5.5.2	Theoretische Elektronenimpulsdichte	86
5.5.3	Resultate	88
5.5.4	Zusammenfassung	90
6	Zusammenfassung und Ausblick	93
7	Literaturverzeichnis	95

1 Einleitung

Die Ladungs- und Impulsdichte von Elektronen ist definiert als das Betragsquadrat der Wellenfunktion im Orts-, beziehungsweise Impulsraum. Das starke Interesse an einer genauen Kenntnis der Eigenschaften des Elektronensystems eines Festkörpers, welche durch deren Wellenfunktionen beschrieben ist, macht diese Dichten zu einer herausragenden Meßgröße zur Untersuchung des Elektronensystems.

Hohenberg und Kohn zeigten 1964 [1], daß ein nichtentarteter Grundzustand eines Elektronensystems vollständig durch dessen Ladungsdichte beschrieben ist. Das hauptsächliche physikalische Interesse liegt hierbei in den schwach gebundenen Valenzelektronen, welche die Bindungen zwischen den Atomen und einen Großteil der elektronischen Eigenschaften des Festkörpers bestimmen. Diese Valenzelektronen sind im Ortsraum jedoch stark delokalisiert und tragen daher nur in geringem Maße zur Ladungsdichte bei. Im Impulsraum kehrt sich dieses Verhalten um, und die Elektronenimpulsdichte ist von den Beiträgen der Valenzelektronen dominiert.

Eine Messung der Elektronenimpulsdichte von Festkörpern ist möglich durch $(e,2e)$ -Spektroskopie [2] und koinzidente Comptonstreuung ($(\gamma,e\gamma)$ -Spektroskopie) und in bedingtem Maße durch Winkelkorrelationsmessung von Positronenannihilationsstrahlung (2D-ACAR) [3] und Rekonstruktionen aus Comptonprofilen [4]. Die vorliegende Arbeit beschreibt Messungen der Elektronenimpulsdichte verschiedener Festkörper mit der Methode der $(\gamma,e\gamma)$ -Spektroskopie.

Comptonstreuung als Probe der Elektronenimpulsdichte erlebte eine erste Blütezeit in den dreißiger Jahren dieses Jahrhunderts. Der Entdeckung des Comptoneffekts und dessen Erklärung durch A. H. Compton 1922 [5] folgte wenige Jahre später, 1929, die Erklärung der Verbreiterung der Energieverteilung der gestreuten Photonen als Folge der Bewegung der streuenden Elektronen [6]. Eine Zusammenfassung der folgenden experimentellen Arbeiten wurde von DuMond vorgelegt [7]. Die experimentellen Schwierigkeiten und insbesondere der Mangel an Röntgenquellen hoher Intensität bei Energien oberhalb von 20 keV führten dazu, daß nach diesem ersten starken Interesse bis in die sechziger Jahre nur vereinzelt Comptonexperimente durchgeführt wurden [8]. Seither etablierte sich die Compton-spektroskopie jedoch als eine Standardmethode zur Untersuchung elektronischer Eigenschaften von Festkörpern [9].

Das Comptonprofil ist definiert als eine zweidimensionale Integration der Elektronenimpulsdichte in der Ebene senkrecht zum Streuvektor und bietet somit einen Zugang zur Elektronenimpulsdichte der Probe. Gleichzeitig ist aufgrund dieser Integration jedoch der direkte Zugriff auf die Elektronenimpulsdichte nicht möglich. Mißt man jedoch das Rückstoßelektron in Koinzidenz mit dem gestreuten Photon ist man in der Lage, die

1 Einleitung

Streukinematik vollständig festzulegen, und der Primärimpuls des Elektrons und damit die dreidimensionale Impulsdichte werden direkt zugänglich. Die grundsätzliche Schwierigkeit eines solchen Experiments ist der große Wirkungsquerschnitt der Elektronen für inkohärente elastische Streuung und die dadurch entstehende Vielfachstreuung der Elektronen innerhalb der Probe. Durch diese Streuprozesse wird der zur Rekonstruktion der Streukinematik benötigte Impuls des Rückstoßelektrons verfälscht. Eine Unterdrückung dieser Prozesse ist notwendig. Dies ist zum Teil möglich durch die Erzeugung von Rückstoßelektronen hoher Energie und die Benutzung von Proben einer Dicke, die in der Größenordnung der mittleren freien Weglänge der Elektronen ist.

Koinzidente Comptonexperimente wurden erstmals 1925 von W. Bothe und H. Geiger durchgeführt [10]. Die damalige Fragestellung war, ob Energie- und Impulserhaltung im statistischen Mittel oder für jeden einzelnen Streuprozess gültig ist. Aufgrund der begrenzten Auflösung des Aufbaus konnte kein Einfluß des primären Elektronenimpulses beobachtet werden. Für die Entwicklung der in diesen Experimenten benutzten Koinzidententechnik erhielt W. Bothe 1954 den Physiknobelpreis. 1936 wiederholten W. Bothe und H. Maier-Leibnitz die Experimente mit verbesserter Auflösung [11]. Dennoch konnten auch bei diesen Experimenten kein Einfluß des primären Elektronenimpulses beobachtet werden. Dies war auch nach einer weiteren Verbesserung der experimentellen Auflösung in Messungen von Cross und Ramsey 1950 nicht möglich [12]. 1988, wurde die prinzipielle Durchführbarkeit koinzidenter Comptonexperimente zur Bestimmung der Elektronenimpulsdichte von Festkörpern demonstriert [13]. Diese Experimente wurden mit 320 keV γ -Strahlung einer hochradioaktiven Quelle an einer 20 μm dicken freistehenden Aluminiumprobe durchgeführt. Durch die Nutzung dieser hohen Primärphotonenenergie und der dünnen Probe konnte eine ausreichend hohe Zahl von ungestreuten Rückstoßelektronen koinzident gemessen werden, um den Einfluß der Elektronenimpulsdichte der Probe auf die experimentellen Verteilungen zu beobachten. Aufgrund der begrenzten Intensität einer radioaktiven Quelle war die Nutzung hochenergetischer Synchrotronstrahlung der nächste Schritt zur Weiterentwicklung der $(\gamma, e\gamma)$ -Spektroskopie als eine Probe zur direkten Messung der Elektronenimpulsdichten von Festkörpern.

Mit 100 keV Wiggler-Strahlung des DORIS III Speicherrings am Deutschen Elektronen-Synchrotron (DESY) wurden 1993 Schnitte durch die dreidimensionale Elektronenimpulsdichte von Graphitfolien und Winkelkorrelationsprofile von Aluminiumfolien gemessen [14]. 1996 wurde erstmals die vollständige dreidimensionale Elektronenimpulsdichte von Graphit mit koinzidenter Comptonstreuung bestimmt [15]. Ziel der vorliegenden Arbeit war der Aufbau eines $(\gamma, e\gamma)$ -Spektrometers an der "European Synchrotron Radiation Facility" (ESRF) und dessen Nutzung zur detaillierten Messung von Elektronenimpulsdichten.

In dieser Arbeit wird zunächst die Meßgröße eines $(\gamma, e\gamma)$ -Experiments, vorgestellt, die Elektronenimpulsdichte. Es wird schematisch die Dichtefunktionaltheorie (DFT) vorgestellt, im Rahmen derer die Eigenschaften des Elektronensystems von Festkörpern berechnet werden. Anschließend wird auf die Korrektur eingegangen, die notwendig wird, wenn man die Elektronenimpulsdichte aus den Ergebnissen der DFT erlangen möchte. Diese Korrektur hat ihre Ursache in Elektronenaustausch- und Korrelationseffekten. Zum Abschluß des ersten Kapitels werden die benötigten Wirkungsquerschnitte und

Transformationsformeln für das $(\gamma, e\gamma)$ -Experiment vorgestellt.

Im zweiten Kapitel wird der Strahlplatz an der ESRF und das dort benutzte $(\gamma, e\gamma)$ -Spektrometer beschrieben. Besonderes Augenmerk wird dabei auf die benutzten Detektoren und die Koinzidenzelektronik gerichtet.

Die in einem $(\gamma, e\gamma)$ -Experiment gemessenen Verteilungen werden von der Geometrie und Auflösungsfunktion des Spektrometers sowie der Elektronenvielfachstreuung beeinflusst. Um diese experimentellen Daten mit theoretischen Elektronenimpulsdichten zu vergleichen, bedarf es einer genauen Kenntnis dieser Einflüsse. Es wurde eine Monte-Carlo Simulation entwickelt, die ausgehend von der theoretischen Impulsdichte für den gegebenen experimentellen Aufbau die zu erwartenden Verteilungen reproduziert. Dies erlaubt einen direkten Vergleich der experimentellen Resultate mit theoretischen Elektronenimpulsdichten. In Kapitel 4 wird dieses Simulationsprogramm vorgestellt und damit das Auflösungselement des $(\gamma, e\gamma)$ -Spektrometers berechnet. Es wird zudem ein kurzer Abriss der Behandlung der Elektronenvielfachstreuung gegeben, wie sie im Detail in Referenz [16] dargestellt ist.

In Kapitel 5 werden schließlich die Resultate von $(\gamma, e\gamma)$ -Messungen an drei verschiedenen Probensystemen diskutiert. Als Beispiel eines einfachen Metalls wurde die dreidimensionale Elektronenimpulsdichte von Aluminium gemessen und auf Elektronenkorrelations- und Austauscheffekte untersucht. Es wurden die Impulsdichten von Graphit und Fullerenen gemessen, welche sich aufgrund des unterschiedlichen Charakters der Kohlenstoffbindungen voneinander unterscheiden. Und es wurde der Einfluß der Legierungsbildung in Kupfer/Nickel Systemen auf die Elektronenimpulsdichte untersucht. Diese Messungen werden im einzelnen beschrieben und mit mehreren theoretischen Impulsdichten verglichen.

Um bei der Beschreibung der Impulse von Festkörpern handliche Dimensionen zu erhalten werden in dieser Arbeit atomare Einheiten [a.u.] verwandt. In diesem Einheitensystem gilt $e = m_e = \hbar = 1$ und $c = 137$. Längen werden in Einheiten des Bohrschen Radius, Energien in Hartree und der Impuls in atomaren Einheiten angegeben. Bei der Betrachtung der Wirkungsquerschnitte und der Streukinematik werden natürliche Einheiten [n.u.] benutzt. Hier gilt $m_e = \hbar = c = 1$ und $e^2 = \alpha$.

$$\text{Länge: } 1 \text{ a.u.} = 0.53 \cdot 10^{-10} \text{ m}$$

$$\text{Energie: } 1 \text{ a.u.} = 27.214 \text{ eV}$$

$$\text{Impuls: } 1 \text{ a.u.} = 2 \cdot 10^{-24} \text{ kg m/s}$$

1 *Einleitung*

2 Grundlagen der $(\gamma, e\gamma)$ –Spektroskopie

Ein $(\gamma, e\gamma)$ –Experiment erlaubt die Messung der dreidimensionalen Elektronenimpulsdichte $\rho(\vec{p})$ von Festkörpern und bietet somit einen direkten Zugang zur Struktur des Elektronensystems. Diese Struktur wird durch eine Vielteilchenwellenfunktion beschrieben, welche die Lösung einer Vielteilchen–Schrödingergleichung ist. Dieses Kapitel soll zunächst den Zusammenhang dieser Wellenfunktion zur Elektronenimpulsdichte eines Festkörpers herstellen. Daraufhin wird schematisch die Dichtefunktionaltheorie (DFT) vorgestellt, eine der meistbenutzten Methoden zur Berechnung von Ladungsdichten. Die Bestimmung der Elektronenimpulsdichte aus den Ergebnissen der DFT erfordert eine Korrektur, da innerhalb der DFT Pseudowellenfunktionen anstatt tatsächlicher Wellenfunktionen bestimmt werden. Das Konzept dieser Korrektur wird dargestellt.

Die Messung von Elektronenimpulsdichten mit einem $(\gamma, e\gamma)$ –Experiment wird möglich durch einen einfachen Zusammenhang zwischen dem dreifach–differentiellen Wirkungsquerschnitt der Comptonstreuung und der Elektronenimpulsdichte der gemessenen Probe. Dieser Zusammenhang wird in Abschnitt 2.2 hergeleitet. Schließlich werden ausgehend hiervon im Rahmen einer kinematischen Betrachtung Formeln bereitgestellt, die es erlauben, aus den Meßgrößen des Experiments den Anfangsimpuls des streuenden Elektrons zu berechnen.

2.1 Die Elektronenimpulsdichte in kristallinen Festkörpern

Zur Beschreibung eines inhomogenen Elektronengases entwickelten Hohenberg und Kohn die sogenannte Dichtefunktionaltheorie (DFT) [1]. Dieser Formalismus entwickelte sich später unter anderem zur Standardmethode zur Berechnung von Bandstrukturen kristalliner Festkörper. Die Grundaussage der DFT ist, daß alle Eigenschaften eines Elektronensystems in einem nichtentarteten Grundzustand vollständig durch dessen Ladungsdichte $n(\vec{r})$ bestimmt sind [1, 17]. Es wird gezeigt, daß ein Funktional der Ladungsdichte $F[n(\vec{r})]$, unabhängig von dem äußeren Potential $V_{ext}(\vec{r})$ existiert, so daß der Ausdruck

$$E = \int V_{ext}(\vec{r})n(\vec{r})d\vec{r} + F[n(\vec{r})] \quad (2.1)$$

sein Minimum bei der korrekten, zu dem Potential $V_{ext}(\vec{r})$ gehörenden Grundzustandsenergie hat. Ausgehend von diesem Variationsprinzip entwickelten Kohn und Sham [18] ein System selbstkonsistenter Einteilchengleichungen für die Beschreibung des elektronischen Grundzustandes. Diese Kohn–Sham–Gleichungen haben die Form

$$\left(-\frac{1}{2}\Delta + V_{eff}(\vec{r})\right)\varphi_i(\vec{r}) = \epsilon_i\varphi_i(\vec{r}) \quad (2.2)$$

2 Grundlagen der $(\gamma, e\gamma)$ -Spektroskopie

mit

$$V_{eff}(\vec{r}) = V_{ext}(\vec{r}) + \int d\vec{r}' \frac{n(\vec{r}')}{|\vec{r} - \vec{r}'|} + V_{xc}[n(\vec{r})] \quad (2.3)$$

und es gilt

$$n(\vec{r}) = \sum_i |\varphi_i(\vec{r})|^2 \quad , \quad (2.4)$$

wobei die Summe über die besetzten Zustände i ausgeführt wird. Das effektive Potential $V_{eff}(\vec{r})$ setzt sich zusammen aus dem elektrostatischen Potential aller elektrischen Ladungen, welches durch die ersten beiden Summanden beschrieben wird, und dem Austausch–Korrelations–Potential $V_{xc}[n(\vec{r})]$.

Es gilt nun einen Ausgangspunkt für die Lösung dieses selbstkonsistenten Gleichungssystems zu finden. Für kristalline Festkörper ergibt sich eine Vereinfachung aus deren periodischer Struktur, welche als perfekt und unendlich ausgedehnt angenommen wird. Die Atomkerne sind auf einem dreidimensionalen Gitter angeordnet und erzeugen ein Potential, welches der Periodizität dieses Gitters folgt. Die Elektronen befinden sich in diesem periodischen Potential $V(\vec{r}) = V(\vec{r} + \vec{r}_n)$ der Atomkerne. Hierbei ist \vec{r}_n ein beliebiger Translationsvektor des dreidimensionalen Gitters. Das Bloch–Theorem besagt nun, daß die Lösung einer Gleichung der Form (2.2) für ein periodisches Potential die Form [19, 20]

$$\varphi_{\vec{k},i}(\vec{r}) = u_{\vec{k},i}(\vec{r}) e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}} \quad (2.5)$$

haben muß. Hierbei ist \vec{k} der auf die erste Brillouin–Zone beschränkte Kristallimpuls. Die Funktionen $u_{\vec{k},i}$ besitzen die Periodizität des Kristallgitters. Damit sind sie invariant gegenüber einer Translation des Kristallgitters und lassen sich in eine Fourierreihe nach den reziproken Gittervektoren \vec{G} mit Koeffizienten $A_{\vec{G},i}(\vec{k})$ entwickeln. Man erhält die Ortsraumwellenfunktion in der Form

$$\varphi_{\vec{k},i}(\vec{r}) = \sum_{\vec{G}} A_{\vec{G},i}(\vec{k}) e^{-i(\vec{G}+\vec{k})\cdot\vec{r}} \quad . \quad (2.6)$$

So wie die Ladungsdichteverteilung das Betragsquadrat der Ortsraumwellenfunktion ist, so ist die Elektronenimpulsdichte $\rho(\vec{p})$ das Betragsquadrat der Impulsraumwellenfunktion $\chi_{\vec{k},i}(\vec{p})$, das heißt der fouriertransformierten Ortsraumwellenfunktion, wobei über alle Bänder i und Impulszustände \vec{k} summiert werden muß:

$$\rho(\vec{p}) = 2 \sum_{\vec{k},i} n_i(\vec{k}) \left| \chi_{\vec{k},i}(\vec{p}) \right|^2 \quad (2.7)$$

$n_i(\vec{k})$ ist die Besetzungszahldichte des Zustandes i , der Vorfaktor 2 hat seine Ursache in den beiden möglichen Spinzuständen der Elektronen. Die Fouriertransformation der Ortsraumwellenfunktion schreibt sich mit Gleichung (2.6) als

$$\chi_{\vec{k},i}(\vec{p}) = \int \varphi_{\vec{k},i}(\vec{r}) e^{-i\vec{p}\cdot\vec{r}} d\vec{r} = \sum_{\vec{G}} A_{\vec{G},i}(\vec{k}) \delta(\vec{p} - \vec{k} - \vec{G}) \quad (2.8)$$

2.1 Die Elektronenimpulsdichte in kristallinen Festkörpern

und mit Gleichung (2.7) ergibt sich

$$\rho(\vec{p}) = 2 \sum_{\vec{k}, i} n_i(\vec{k}) \sum_{\vec{G}} |A_{\vec{G}, i}(\vec{k})|^2 \delta(\vec{p} - \vec{k} - \vec{G}) \quad . \quad (2.9)$$

Im Modell des freien Elektronengases ist die Besetzungszahldichte $n_i(\vec{k}) = 1$ für Impulse kleiner als der Fermiimpuls p_F und verschwindet für Impulse größer als der Fermiimpuls.

Die Impulsraumwellenfunktion erhält man durch Fouriertransformation der Ortsraumwellenfunktion. Sie enthält daher die identische Information wie die Ortsraumwellenfunktion und beschreibt ebenso wie diese vollständig das Elektronensystem des kristallinen Festkörpers. Der Informationsverlust durch Bildung des Betragsquadrats der Wellenfunktionen ist jedoch unterschiedlich, abhängig davon, ob diese Operation im Ortsraum oder im Impulsraum durchgeführt wird. Entsprechend ist die Elektronenimpulsdichte eine zur Ladungsdichte komplementäre Information, deren Informationsgehalt jedoch im gleichen Verhältnis zur Wellenfunktion steht wie der der Ladungsdichte.

Bei der Berechnung der Elektronenimpulsdichte aus den Ergebnissen der DFT gilt es zu beachten, daß die Wellenfunktionen $\varphi_i(\vec{r})$ Pseudowellenfunktionen sind, die ihre physikalische Bedeutung erst durch Bildung der Ladungsdichte in Gleichung (2.4) erhalten. Es kann allgemein gezeigt werden, daß die Berechnung anderer Grundzustandsgrößen aus den Ergebnissen der DFT nicht ohne eine Korrelations-Korrektur möglich ist [21]:

$$O[n] = O_0[n] + \Delta O[n] \quad (2.10)$$

$O[n]$ ist eine beliebige Grundzustandsgröße, $O_0[n]$ der Grundzustandserwartungswert, den man aus $\varphi(\vec{r})$ erhält und $\Delta O[n]$ die Korrelations-Korrektur. Diese Korrelationskorrektur schreibt sich in der lokalen Dichtenäherung als

$$\Delta O^{LDA}[n] = \int n(\vec{r}) \left(O^h[n(\vec{r})] - O^f[n(\vec{r})] \right) d\vec{r} \quad , \quad (2.11)$$

wobei $O^h[n(\vec{r})]$ und $O^f[n(\vec{r})]$ die Erwartungswerte eines homogenen wechselwirkenden und eines freien Elektronengases sind.

Speziell für Impulsdichten in Festkörpern mit einer Ladungsdichte $n(\vec{r})$ gaben Lam und Platzman [22] einen Ansatz für die Berechnung dieses Korrekturterms: Im Sinne der lokalen Dichtenäherung (LDA) werden jeder Stelle \vec{r}_i innerhalb der Wigner-Seitz Zelle die Eigenschaften eines homogenen Elektronengases der Dichte $n(\vec{r}_i)$ zugeordnet, wobei $n(\vec{r})$ die Ladungsdichte des betrachteten Systems ist. Die lokale Korrektur ergibt sich aus der Differenz der Besetzungszahldichten $n^h(\vec{p})$ und $n^f(\vec{p})$ eines homogenen wechselwirkenden und eines freien Elektronengases. Die Besetzungszahldichten sind eine Funktion von r_s , dem Wigner-Seitz Radius des zugeordneten Elektronengases. Dieser ist im Elektronensystem des Festkörpers ein Maß für den mittleren Abstand der Elektronen an der Stelle \vec{r}_i . Der gesamte Korrekturterm ergibt sich schließlich durch Integration über das Volumen Ω der Wigner-Seitz Zelle

$$\Delta \rho_{LP}(\vec{p}) = \int_{\Omega} \left(n^h(\vec{p}) - n^f(\vec{p}) \right) \frac{n(\vec{r})}{(4\pi p_F^3)} d\vec{r} \quad (2.12)$$

p_F ist der Fermiimpuls des Elektronengases und damit auch eine Funktion von r_s . Dieser Ansatz im Rahmen der LDA ist eine Näherung, die eine isotrope Korrektur ergibt.

2.2 Wirkungsquerschnitt

Die Ereignisrate eines Experiments wird bestimmt durch den differentiellen Wirkungsquerschnitt, d. h. die Differentiation des Wirkungsquerschnittes nach den Meßgrößen. Im Folgenden soll beschrieben werden, welcher Zusammenhang zwischen der in einem $(\gamma, e\gamma)$ -Experiment gemessenen Intensitätsverteilung, welche proportional zum differentiellen Wirkungsquerschnitt ist, und der Elektronenimpulsdichte besteht.

Comptonstreuung ist die inelastische Streuung eines Röntgenquants an einem Elektron, bei dem das Röntgenquant Energie an das Elektron abgibt und dieses aus seinem Grundzustand in einen Kontinuumszustand anregt. Es handelt sich hierbei um einen Prozeß der elektromagnetischen Wechselwirkung, und eine korrekte theoretische Behandlung dieses Effekts erfordert daher die Benutzung der Quantenelektrodynamik.

Jauch und Rohrlich [23] berechnen den totalen relativistischen Wirkungsquerschnitt für Comptonstreuung an einem freien Elektron im Rahmen des S-Matrix-Formalismus. Für ein Photon mit dem Viererimpuls $k = (\omega, \vec{k})$ und ein freies Elektron mit dem Viererimpuls $p = (E, \vec{p})$, welche sich nach der Streuung in den Zuständen $k' = (\omega', \vec{k}')$ und $p' = (E', \vec{p}')$ befinden, ergibt sich der totale relativistische Wirkungsquerschnitt zu [24]:

$$\sigma = \frac{\alpha^2}{2} \int d\vec{k}' d\vec{p}' \frac{1}{2RE'\omega'} X(R, R') \delta(p + k - p' - k') \quad (2.13)$$

mit

$$X(R, R') = \frac{R}{R'} + \frac{R'}{R} + \left[2 \left(\frac{1}{R} - \frac{1}{R'} \right) + \left(\frac{1}{R} - \frac{1}{R'} \right)^2 \right] (1 - P) \quad (2.14)$$

sowie

$$R = p \cdot k = E\omega - \vec{p} \cdot \vec{k} \quad (2.15)$$

und

$$R' = p \cdot k' = E\omega' - \vec{p} \cdot \vec{k}' = R + k \cdot k' = R - \omega\omega'(1 - \cos\theta) \quad (2.16)$$

θ bezeichnet den Streuwinkel des Elektrons, P den Stokesparameter und α die Feinstrukturkonstante. Die δ -Funktion ist gegeben durch die Forderung nach Energie- und Impulserhaltung und wird Ausgangspunkt für die kinematischen Betrachtungen in Abschnitt 2.3 sein.

Dieser Wirkungsquerschnitt muß nun für den Fall in einem Festkörper gebundener Elektronen erweitert werden. Ein erster heuristischer Ansatz wurde hierfür von Eisenberger und Reed [25] gegeben, deren Rechnungen sich jedoch auf einen Streuwinkel $\theta = 180^\circ$ beschränken. Mit dem gleichen Ansatz konnte Ribberfors [24] durch die geschickte Wahl eines Koordinatensystems algebraische Probleme lösen und die Berechnung auf beliebige Streuwinkel erweitern. Holm [26] konnte den heuristischen Ansatz schließlich verifizieren.

Ausgehend von Gleichung (2.13) werden folgende Annahmen gemacht: Die Elektronen des Festkörpers werden als frei Teilchen betrachtet und die einzelnen Elektronenzustände durch ebene Wellen beschrieben. Die Elektronenimpulsdichte $\rho(\vec{p})$ geht als Wichtungsfaktor dieser Zustände ein. Anders ausgedrückt: man betrachtet die Elektronen im Festkörper als ein Bündel von Elektronenstrahlen mit einem Wichtungsfaktor $\rho(\vec{p})$ deren einzelne Wirkungsquerschnitte durch Gleichung (2.13) gegeben sind [24].

Schließlich muß der Flußfaktor [23] $R/E\omega$ zweier wechselwirkender Strahlen zu 1 modifiziert werden, da der mittlere Impuls der Elektronen im Festkörper 0 ist. Diese Herleitung beinhaltet die Impulsapproximation, welche die Wellenfunktion des Endzustandes durch ebene Wellen annähert [26]. Diese Annahme ist gerechtfertigt, solange der Energieübertrag auf das Elektron viel größer ist als die Bindungsenergie des Elektrons. Damit ergibt sich aus Gleichung (2.13)

$$\sigma = \frac{\alpha^2}{2} \int d\vec{k}' d\vec{p}' d\vec{p} \frac{1}{EE'\omega\omega'} X(\vec{p}, \vec{p}') \rho(\vec{p}) \delta(p + k - p' - k') \quad . \quad (2.17)$$

Die Differentiation dieses Wirkungsquerschnitts nach den Meßgrößen des $(\gamma, e\gamma)$ -Experiments bestimmt schließlich dessen Ereignisrate. Diese Meßgrößen sind die Energie des gestreuten Photons ω' und die Raumwinkel des gestreuten Photons $d\Omega_\gamma$ und des Rückstoßelektrons $d\Omega_e$. Der dreifach differentielle Wirkungsquerschnitt ergibt sich zu [27, 28, 29]

$$\frac{d^3\sigma}{d\omega' d\Omega_\gamma d\Omega_e} = \frac{\alpha^2 \omega'}{2 \omega} q X \rho(\vec{p}) \quad (2.18)$$

mit q , dem Betrag des Streuvektors. Damit ist die Elektronenimpulsdichte proportional zum Wirkungsquerschnitt eines $(\gamma, e\gamma)$ -Experiments. Eine Absolutmessung dieses Wirkungsquerschnitts [28] an einer $72 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ ($\simeq 81 \text{ nm}$) dicken Kupferfolie bestätigte die theoretischen Berechnungen innerhalb des statistischen Fehlers von 40%.

Wie in Kapitel 5 beschrieben wird, ist es in manchen Fällen notwendig, Daten eines $(\gamma, e\gamma)$ -Experiments zusammenzufassen, um deren Statistik zu verbessern. Dies ist möglich, indem man über eine der drei Impulskomponenten integriert. Eine Integration über die Energie des gestreuten Photons, was genähert einer Integration über die p_z -Komponente des Impulses entspricht, ergibt den zweifach differentiiellen Wirkungsquerschnitt [13]

$$\frac{d\sigma^2}{d\Omega_\gamma d\Omega_e} = \frac{\alpha^2}{2} \left(\frac{\omega' q}{\omega} \right)^2 X_0 \int_{-\infty}^{\infty} \rho(\vec{p}) dp_z \quad (2.19)$$

mit der Streufunktion X_0 an der Stelle des Comptonpeaks. Dieser zweifach differentielle Wirkungsquerschnitt ist proportional zum sogenannten Winkelkorrelationsprofil

$$I(p_x, p_y) = \int_{-\infty}^{\infty} \rho(p_x, p_y, p_z) dp_z \quad . \quad (2.20)$$

Analog hierzu kann auch über eine der beiden anderen Impulskomponenten integriert werden.

Eine zusätzliche Erhöhung der Statistik kann erreicht werden, indem über zwei Impulskomponenten integriert wird. Eine Integration über die p_x - und p_y -Komponenten des Impulses entspricht einer Integration über die Emissionsrichtungen der Rückstoßelektronen und ergibt den zweifach differentiiellen Wirkungsquerschnitt [24]

$$\frac{d\sigma}{d\omega' d\Omega_\gamma} = \frac{\alpha^2}{2} \left(\frac{\omega'}{\omega q} \right)^2 X_0 \int \rho(\vec{p}) dp_x dp_y \quad . \quad (2.21)$$

2 Grundlagen der $(\gamma, e\gamma)$ -Spektroskopie

Im Falle eines koinzidenten Comptonprofils erstreckt sich hierbei die Integration über den vom Elektronendetektor abgedeckten Raumwinkel Ω_e , während sich für die klassische Comptonspektroskopie die Integration über den gesamten Raumwinkel erstreckt und der zweifach differentielle Wirkungsquerschnitt proportional dem Comptonprofil

$$J(p_z) = \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} \rho(\vec{p}) dp_x dp_y \quad (2.22)$$

ist. Dieser Unterschied führt dazu, daß die stark gebundenen Rumpfelektronen mit hohen Impulsen in einem koinzidenten Comptonprofil unterdrückt werden.

2.3 Festlegung der Kinematik

Ausgehend von der Energie- und Impulserhaltung sollen im folgenden die Transformationsformeln für die Meßgrößen in Impulskoordinaten hergeleitet werden. Abbildung 2.1

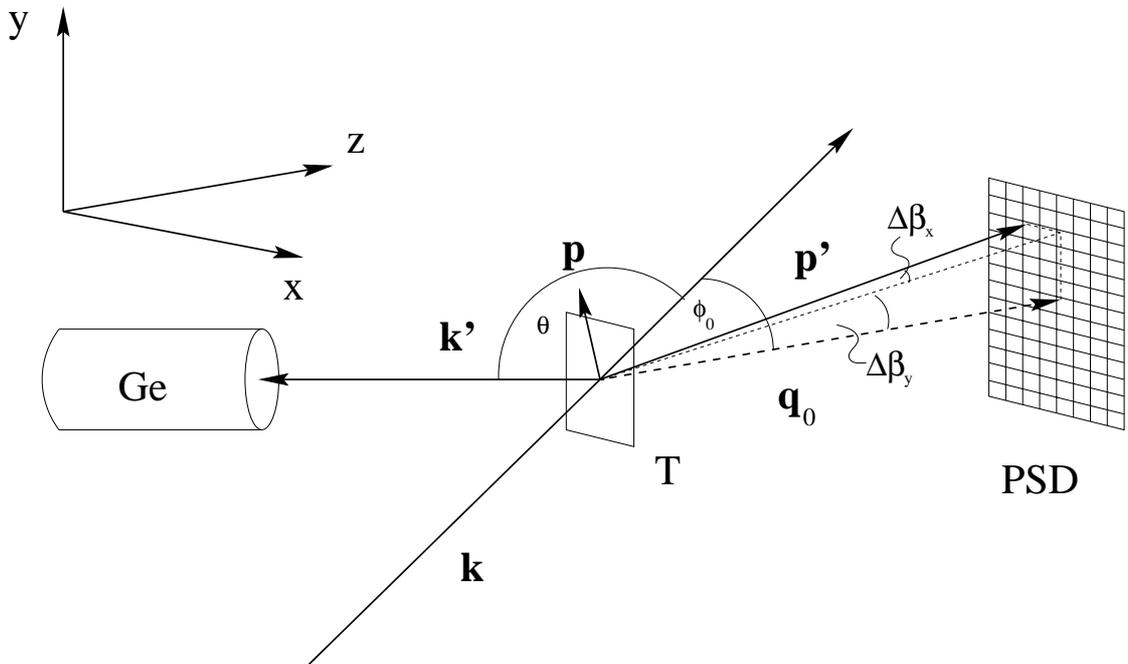


Abbildung 2.1: Impulsdigramm der Comptonstreuung eines Photons mit Impuls \vec{k} und einem Streuwinkel θ . \vec{p} bezeichnet den Impuls des Elektrons vor, \vec{p}' nach der Streuung. ϕ_0 ist der Emissionswinkel eines Rückstoßelektrons mit Anfangsimpuls $\vec{p} = 0$ in der Streuebene und \vec{q}_0 der zugehörige Streuvektor. $\Delta\beta_x$ und $\Delta\beta_y$ sind die Winkel von \vec{p}' bezüglich \vec{q}_0 .

stellt die Ausrichtung des in der gesamten Arbeit verwendeten Koordinatensystems dar. Die x-Achse liegt in der Streuebene $\vec{k} \cdot \vec{k}'$ senkrecht zum Streuvektor $\vec{q}_0 = \vec{k} - \vec{k}'_0$, die y-Achse senkrecht zur Streuebene und die z-Achse in Richtung des Streuvektors \vec{q}_0 . Die

mit dem Index 0 gekennzeichneten Größen entsprechen den Größen im Fall ruhender Elektronen.

Aus Energie- und Impulserhaltung folgt

$$\begin{pmatrix} \omega \\ \vec{k} \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} E \\ \vec{p} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \omega' \\ \vec{k}' \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} E' \\ \vec{p}' \end{pmatrix}. \quad (2.23)$$

Für die Streuung an einem ruhenden Elektron mit Energie $E = 1$ und Impuls $\vec{p} = 0$ ergibt sich nach Multiplikation von Gleichung (2.23) mit dem Viererimpuls des streuenden Photons (ω, \vec{k}) unmittelbar die Energie des gestreuten Photons ω'_0 für den Streuwinkel θ

$$\omega'_0 = \frac{\omega}{1 + \omega(1 - \cos(\theta))} \quad , \quad (2.24)$$

welche auch als Comptonenergie bezeichnet wird. Der Emissionswinkel ϕ_0 des Rückstoßelektrons ist

$$\cot \phi_0 = (1 + \omega) \tan \theta / 2 \quad . \quad (2.25)$$

Ist der Anfangsimpuls des Elektrons $\vec{p} \neq 0$, ändern sich die Energie ω' des gestreuten Photons und der Emissionswinkel des Rückstoßelektrons sowohl in der Streuebene als auch orthogonal zu dieser. Die Detektion dieser Änderungen fixieren die Kinematik des Streuprozesses und erlauben eine eindeutige Bestimmung des Anfangsimpulses des gestreuten Elektrons. Der Endimpuls des gestreuten Elektrons ergibt sich aus der Energieerhaltung zu

$$p' = [(\omega - \omega' + E_i)^2 - 1]^{1/2} \quad (2.26)$$

mit $E_i = 1 - E_i^B$ und $E_i^B > 0$ der Bindungsenergie des Elektrons. Da die Elektronenimpulsdichte stark von den Valenzelektronen dominiert wird, ist eine Vernachlässigung der Bindungsenergie eine gute Näherung. Benötigt werden nun drei Transformationsgleichungen, welche die Beziehung dieser Meßgrößen zum Anfangsimpuls \vec{p} des Elektrons bestimmen. Hierzu führt man eine Taylorentwicklung der Gleichung

$$\vec{p} = \vec{p}' + \vec{k}' - \vec{k} \quad (2.27)$$

nach $\Delta\omega' = \omega' - \omega'_0$, $\Delta\beta_x$ und $\Delta\beta_y$ um $\vec{p} = 0$ durch [30].

$$\vec{p}(\delta\omega, \delta\beta_x, \delta\beta_y) = \frac{\partial \vec{p}}{\partial(\Delta\omega')} \Big|_{\vec{p}=0} \Delta\omega' + \frac{\partial \vec{p}}{\partial\beta_x} \Big|_{\vec{p}=0} \Delta\beta_x + \frac{\partial \vec{p}}{\partial\beta_y} \Big|_{\vec{p}=0} \Delta\beta_y \quad (2.28)$$

Hieraus folgt für kleine $\Delta\beta_x$ und $\Delta\beta_y$ für die Komponenten von \vec{p} :

$$p_x = q_0 \Delta\beta_x + \cos(\theta + \phi) \Delta\omega' \quad ,$$

$$p_y = q_0 \Delta\beta_y \quad ,$$

$$p_z = \left(\frac{\omega'_0(1 + \cos(\theta))}{q_0} + \sin(\theta + \phi) \right) \Delta\omega' \quad . \quad (2.29)$$

Bemerkenswert ist hierbei, daß p_x von zwei Meßgrößen $\Delta\omega'$ und $\Delta\beta_x$ abhängt und somit ein orthogonales Gitter im Ortsraum nicht auf ein orthogonales Gitter im Impulsraum abgebildet wird.

2.4 Weitere Methoden zur Messung der Elektronenimpulsdichte

Neben der $(\gamma, e\gamma)$ -Spektroskopie gibt es weitere Methoden, welche die Elektronenimpulsdichte oder eine damit verwandte Größe messen. Hierzu zählen die Rekonstruktion der Elektronenimpulsdichte aus der Messung von Comptonprofilen in verschiedenen kristallographischen Richtungen [4], die inelastische Streuung von Elektronen ((e,2e)-Methode) [31, 32], die bis auf den Austausch des Primärphotons durch ein Elektron der $(\gamma, e\gamma)$ -Spektroskopie entspricht und die Positronenannihilation [3]. Es soll ein kurzer Überblick über die beiden letztgenannten Methoden gegeben werden.

Positronenannihilation

Die Methode der Positronenannihilation beruht auf der Paarvernichtung eines thermalisierten Positrons mit einem Elektron in der Probe. Bei diesem Annihilationsprozeß werden zwei Vernichtungsquanten erzeugt, deren Energie und Winkelverteilung sich aus der Energie- und Impulserhaltung bestimmt. Der Impuls des thermalisierten Positrons ist hierbei vernachlässigbar, so daß der zu erhaltende Impuls der Primärimpuls des Elektrons ist. Die Messung der Winkelverteilung der Annihilationsstrahlung ("2 dimensional angular correlation of the annihilation radiation": 2D-ACAR) erlaubt dabei die Rekonstruktion der beiden Komponenten des Primärimpulses des Elektrons senkrecht zum Impuls eines Vernichtungsquants. Die dritte Impulskomponente des Elektrons führt zu einer Dopplerverbreiterung der Energie der Vernichtungsquanten [33], und deren Bestimmung ist prinzipiell durch die Messung der Energie der Vernichtungsquanten möglich [34]. Die erforderliche Energieauflösung ist jedoch so groß, daß diese Methode kaum angewandt wird. Dreidimensionale Daten können auch gewonnen werden durch eine dreidimensionale Rekonstruktion der zweidimensionalen Projektionen [35].

2D-ACAR Messungen zeichnen sich durch eine sehr gute Winkelauflösung von 0.7 mrad [36] aus, was einer Impulsauflösung von 0.1 a.u. entspricht. Die Meßgröße eines 2D-ACAR Experiments ist jedoch im Gegensatz zu einem $(\gamma, e\gamma)$ -Experiment nicht die Elektronenimpulsdichte, sondern die Elektronenimpulsdichte gewichtet mit der Aufenthaltswahrscheinlichkeit der Positronen in der Probe. Der Gleichung 2.9 entsprechende Ausdruck für die Meßgröße eines 2D-ACAR Experiments ist die sogenannte Elektron-Positron Paardichte [37]

$$\rho^{2\gamma}(\mathbf{p}) = 2 \sum_{\mathbf{k}, \mathbf{g}, i} n_i(\mathbf{k}) \left| A_{\mathbf{g}, i}^{+-}(\mathbf{k}) \right|^2 \delta(\mathbf{p} - \mathbf{k} - \mathbf{g}) \quad , \quad (2.30)$$

wobei die Fourierkomponenten des Elektron-Positron Bloch-Zustandes gegeben sind durch

$$A_{\mathbf{g}, i}^{+-}(\mathbf{k}) = \sum_{\mathbf{g}'} A_{\mathbf{g}'}^+(0) A_{\mathbf{g}-\mathbf{g}', i}^-(\mathbf{k}) \quad . \quad (2.31)$$

A^- sind die Fourierkomponenten der Elektronenwellenfunktion und A^+ die der Positronenwellenfunktion. Im Falle einer räumlich nicht konstanten Positronenwellenfunktion

ist die Elektron–Positron Paardichte $\rho^{2\gamma}(\mathbf{p})$ somit nicht gleich der Elektronenimpulsdichte $\rho(\mathbf{p})$. Zudem ist die Positronenwellenfunktion sehr empfindlich auf Defekte der Kristallstruktur der Proben, so daß Proben hoher kristalliner Qualität notwendig sind.

(e,2e)–Spektroskopie

Bei der Methode der (e,2e)–Spektroskopie benutzt man ein Elektron als primäres Streuteilchen und weist koinzident das gestreute Elektron und das Rückstoßelektron nach. Damit wird es möglich sowohl Winkelkorrelationsprofile, als auch dreidimensionale Elektronenimpulsdichten zu messen. Aufgrund der deutlich besseren Energie– und Impulsauflösung dieser Methode im Vergleich zur $(\gamma,e\gamma)$ –Spektroskopie ist es zudem möglich sogenannte spektrale Impulsdichten zu messen. Elektronenkanonen als Quellen gewährleisten einen Primärfluß, der um einen Faktor 10^3 höher ist als in der $(\gamma,e\gamma)$ –Spektroskopie. Schließlich ist der Wirkungsquerschnitt der Elektronenstreuung der Rutherford–Wirkungsquerschnitt, und damit erhöht sich die Intensität um einen weiteren Faktor 10^4 , wenn man typische (e,2e)– und $(\gamma,e\gamma)$ –Spektrometer vergleicht [38].

Da in einem (e,2e)–Prozeß drei Elektronen beteiligt sind, ist der Einfluß der Elektronenvielfachstreuung deutlich größer. Dies führt dazu, daß die Verfahren zur Korrektur der Vielfachstreuung sehr aufwendig werden [39]. Dadurch wird eine Interpretation der gemessenen Verteilungen erschwert und es können keine verlässlichen Impulsdichten bestimmt werden. Ein direkter Vergleich der $(\gamma,e\gamma)$ –Methode mit der (e,2e)–Methode, bei der die Ergebnisse der Messungen an derselben Graphitprobe verglichen werden, findet sich bei Kurp et al. [2]. Die $(\gamma,e\gamma)$ –Messung zeigt eine deutlich bessere Übereinstimmung mit einer theoretischen Elektronenimpulsdichte. Es zeigt sich, daß die Ergebnisse der (e,2e)–Messungen bei höheren Impulsbeträgen deutliche Unterschiede sowohl zu einer theoretischen Impulsdichte, als auch zu den Ergebnissen der $(\gamma,e\gamma)$ –Messung aufzeigen. Die Autoren vermuten den Grund hierfür in der fehlenden Vielfachstreuorkorrektur der (e,2e)–Daten für die elastische Streuung der Elektronen.

2 Grundlagen der $(\gamma, e\gamma)$ -Spektroskopie

3 Experimenteller Aufbau

In Abschnitt 2.2 wurde gezeigt, daß der dreifach differentielle Wirkungsquerschnitt der Comptonstreuung proportional zur Elektronenimpulsdichte der streuenden Probe ist. Ein $(\gamma, e\gamma)$ -Experiment ist die Messung einer zu diesem Wirkungsquerschnitt proportionalen Intensitätsverteilung. Dabei ist es das Ziel des Experiments, die gemäß den Gleichungen (2.29) benötigten kinematischen Größen zu bestimmen, die es erlauben, den Primärimpuls des streuenden Elektrons zu berechnen. Die zur Festlegung der Kinematik benötigten Meßgrößen sind:

- die Energie des Primärphotons ω .
- die Energie des gestreuten Photons ω' .
- die Emissionsrichtung des gestreuten Photons bezüglich des Impulses des Primärphotons.
- die Emissionsrichtung des Rückstoßelektrons bezüglich des Impulses des Primärphotons.

Zur Bestimmung der Energie und der Richtung des Primärphotons wird ein monochromatischer Photonenstrahl auf die Probe gerichtet. Ein in einem festen Raumwinkel fixierter Detektor mißt die Energie der gestreuten Photonen, und ein zweiter, ortsauflösender und einen festen Raumwinkel überdeckender Detektor identifiziert im Falle einer koinzidenten Messung des Rückstoßelektrons die beiden Teilchen als zu demselben Streuprozess gehörend und bestimmt die Emissionsrichtung des Rückstoßelektrons.

Eine der grundlegenden konzeptionellen Schwierigkeiten eines $(\gamma, e\gamma)$ -Experiments sind der große Wirkungsquerschnitt für inkohärente elastische Streuung von Elektronen innerhalb der Probe und die damit verbundenen kurzen freien Weglängen der Elektronen. Da eine korrekte Bestimmung der Emissionsrichtung der Rückstoßelektronen nur für ungestreute Elektronen möglich ist, müssen Primärphotonen hoher Energie und dünne Proben (in der Größenordnung der freien Weglänge der Elektronen) zur Verminderung der Vielfachstreuung benutzt werden. Zudem muß auf den verbleibenden Anteil gestreuter Elektronen, welche zu einer Verfälschung des Meßergebnisses führen, korrigiert werden. Dies geschieht im Rahmen einer Monte-Carlo Simulation des Experiments (siehe Kapitel 4). Die Verwendung dünner Proben führt dazu, daß nur ein geringer Anteil des Photonenstrahls gestreut wird. Der totale Wirkungsquerschnitt der Comptonstreuung für Photonen einer Energie von 150 keV beträgt etwa 0.5 barn, so daß in einer 100 nm dicken Aluminiumprobe etwa 1 von 10^6 Photonen gestreut wird. Wie in diesem Kapitel

3 Experimenteller Aufbau

zu sehen sein wird überdeckt der Photonendetektor einen Raumwinkel von $2.8 \cdot 10^{-4}$ sr und damit werden unter Vernachlässigung der Quanteneffizienz der Detektoren etwa $2 \cdot 10^{11}$ Primärphotonen/s benötigt um eine Zählrate von 1 Hz zu erhalten. Monochromatische Photonenstrahlen so hoher Intensität bei einer Energie von 150 keV stehen lediglich an Synchrotronstrahlungsquellen der dritten Generation zur Verfügung.

Dieses Kapitel beschreibt den experimentellen Aufbau des $(\gamma, e\gamma)$ -Experiments an der Europäischen Synchrotronstrahlungseinrichtung (ESRF) in Grenoble. Ausgangspunkt soll hierbei die Magnetstruktur sein, die zur Erzeugung der Synchrotronstrahlung die relativistischen Elektronen im Speicherring der ESRF transversal zu ihrer Bahn beschleunigt (für eine Beschreibung der Erzeugung des Elektronenstrahls und dessen Strahlparameter siehe [40]). Anschließend wird der Strahlengang des Photonenstrahles bis zum Monochromator beschrieben, der ersten für ein $(\gamma, e\gamma)$ -Experiment spezifischen Komponente. Die folgenden Unterkapitel beschreiben den eigentlichen experimentellen Aufbau von der Monochromatisierung des Photonenstrahls bis zur Speicherung der Meßdaten.

3.1 Der Meßplatz ID15A an der ESRF

Die in dieser Arbeit beschriebenen Experimente wurden ausnahmslos an dem Strahlrohr zur Nutzung hoher Photonenenergien ID15A an der “European Synchrotron Radiation Facility” (ESRF) in Grenoble durchgeführt. Die ESRF stellt den Nutzern eine Synchrotronstrahlungsquelle der dritten Generation zur Verfügung.

Synchrotronstrahlung ist die Strahlung eines relativistischen geladenen Teilchens aufgrund einer transversalen Beschleunigung. Synchrotronstrahlungsquellen sind Elektronen- oder Positronen-Speicherringe, in denen die Leptonen bei konstanter Energie durch Ablenkmagnete auf einer Kreisbahn gehalten werden. Durch Einspeisung einer Hochfrequenzleistung wird den Teilchen die durch Strahlung abgegebene Energie wieder zugeführt.

Der Speicherring der ESRF (Umfang 844 m) wird mit Elektronen einer Energie von 6 GeV betrieben. Die Geometrie des Speicherrings ist derart, daß die Elektronen in 999 räumlich getrennte Pakete aufgeteilt werden können. Um speziellen Anforderungen verschiedener Experimente Genüge zu tun, wird der Elektronenspeicherring in verschiedenen Modi betrieben, die sich durch die Anzahl und Aufteilung der gefüllten Pakete unterscheiden. Zusätzlich zur unterschiedlichen Zeitstruktur variieren die unterschiedlichen Modi aufgrund der wechselnden Stabilität in der Lebensdauer und durch die Anzahl der Elektronenpakete im Teilchenstrom. Die Zeitauflösung des $(\gamma, e\gamma)$ -Experiments beträgt 300 ns (siehe Abschnitt 3.4.3) und ist somit deutlich größer als der Abstand der Elektronenpakete, der bei der sogenannten 2/3-Füllung 3 ns beträgt; der Photonenfluß kann innerhalb eines solchen Strahlzuges somit als konstant betrachtet werden. Bei diesem Füllmodus sind 2/3 des Speicherrings mit Elektronenpaketen gleichen Abstands gefüllt. Der Elektronenstrom beträgt hierbei 200 mA und die Lebensdauer etwa 50 Stunden.

An der ESRF wird vor allem die von sogenannten “Insertion Devices” erzeugte Synchrotronstrahlung genutzt. Dies sind periodisch alternierende Magnetstrukturen, die die relativistischen Elektronen auf den geraden Teilstücken zwischen den Ablenkmagneten

	AMPW	SCWS
Perioden	7	1
kritische Energie ε_c [keV]	44.1	95.8
Magnetfeld B_{max} [T]	1.84	4.00
Quellgröße (HxV) [μm^2]	57×10	
Quelldivergenz (HxV) [μrad^2]	98×4	
Leuchtstärke mit Absorbern [ph s ⁻¹ mrad ⁻² , 0.1% bw, 0.1A]	3.3×10^{14} bei 50 keV	5.13×10^{13} bei 90 keV
Leistung [kW mrad _H ⁻¹]	1.2	0.4
Leistungsdichte [W mm ⁻²] nach 30 m	4.2	1.6
Vertikale Strahlgröße [mm] nach 30 m (FWHM)	3.2 bei 50 keV	3.4 bei 100 keV
totale horiz. Winkelakzeptanz [mrad]	1.2	1.0

Tabelle 3.1: Spezifikationen der beiden Insertion Devices der Strahllinie zur Nutzung hoher Photonenenergien ID15A an der ESRF.

senkrecht zu ihrer Flugrichtung beschleunigen. Es existiert heute eine große Vielfalt von Insertion Devices, welche den unterschiedlichsten Anforderungen an die erzeugte Strahlung genügen [41].

Der Strahlplatz ID15A ist für Experimente mit einer Photonenenergie oberhalb 30 keV bis zu 500 keV optimiert. Hierzu stehen zwei Insertion Devices auf der geraden Strecke zwischen zwei Ablenkmagneten zur Verfügung:

- ein asymmetrischer Multipol-Wiggler (AMPW) mit 7 Perioden und einer kritischen Energie von 44.1 keV.
- ein supraleitender Wiggler (SCWS) mit einer Periode und einer kritischen Energie von 95.8 keV.

Die kritische Energie teilt das Strahlungsspektrum in zwei Bereiche gleicher integrierter Strahlungsleistung [42]. In Tabelle 3.1 sind die Spezifikationen der beiden Insertion Devices zusammengefaßt [43].

Abbildung 3.1 zeigt den Photonenfluß des AMPW und des SCWS. Der Schnittpunkt der beiden Kurven liegt bei 215 keV, so daß unterhalb dieser Energie der AMPW und oberhalb der SCWS effektiver ist. Die beschriebenen Experimente wurden mit einer Photonenenergie von 150 keV durchgeführt, und es wurden sowohl alternativ als auch gemeinsam die beiden Insertion Devices benutzt.

Abbildung 3.2 zeigt schematisch den Strahlweg des Photonenstrahls. Nach dem Insertion Device durchläuft dieser mehrere optische Elemente, bevor er auf die Probe trifft. Zunächst fällt der Photonenstrahl auf einen Strahlbegrenzer (BL), der den Strahlkegel auf ± 0.6 mrad begrenzt. Anschließend wird der niederenergetische Teil des Spektrums

3 Experimenteller Aufbau

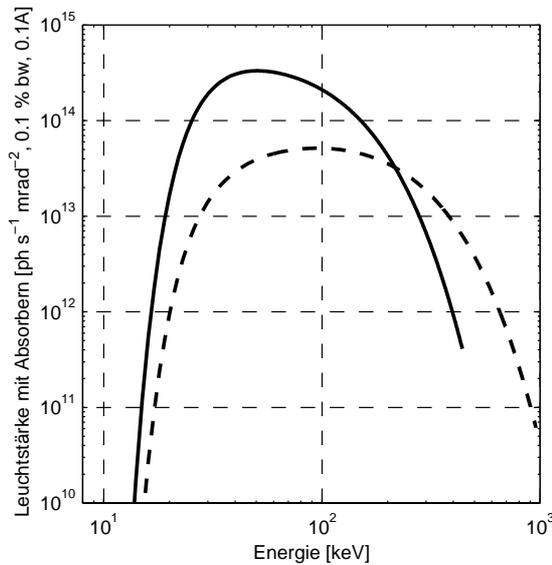


Abbildung 3.1: Leuchtstärke der beiden verfügbaren Insertion Devices an ID15 (AMPW durchgezogen, SCWS gestrichelt). Die Kurven schneiden sich bei 215 keV, so daß unterhalb dieser Energie der AMPW und oberhalb der SCWS effektiver ist.

durch 3 Absorber (0.7 mm C, 4.0 mm Be, 4.1 mm Al) gefiltert. Durch die Primärspalte wird der Strahl weiter begrenzt. Nun folgen die Monochromatoren für die Seitenstationen (MP, MS). Dies sind Siliziumeinkristalle, die monochromatisierte Strahlung unterhalb 100 keV für Experimente in den Seitenstationen zur Verfügung stellen. Durch ihre geringe Dicke sind sie für Photonen oberhalb einer Energie von 150 keV praktisch transparent und verringern den Photonenfluß somit nur geringfügig. Der Strahl passiert schließlich die Sekundärspalte und trifft in der Optikstation auf den Monochromator (MB) der für $(\gamma, e\gamma)$ -Experimente genutzten Experimentierstation “Bow”. Der ungestreute Anteil des Strahls wird noch innerhalb der Optikstation durch einen Bleiabsorber gestoppt. Der monochromatisierte Strahl gelangt nun in die Experimentierstation und befindet sich bis zur Streukammer in einem Vakuumrohr zur Unterdrückung von Luftstreuung. In der Streukammer trifft der Strahl auf die Probe. Dahinter befindet sich ein Strahlabsorber aus Blei, der den nicht gestreuten Anteil des monochromatischen Strahls absorbiert. Bis zu dem Monochromator handelt es sich bei den optischen Elementen um fest an der Strahllinie installierte Komponenten, auf die im folgenden nicht näher eingegangen werden soll (siehe hierzu [44] und [43]).

3.2 Monochromator

Die Eigenschaften des Primärphotonenstrahls werden maßgeblich durch den Monochromator bestimmt. Der Primärstrahl sollte den optimalen Kompromiß darstellen zwischen einer maximal hohen Intensität und einer energetischen Bandbreite, die sich in der Größenordnung der Energieauflösung des Photonendetektors befinden sollte, um nicht zu einer Verschlechterung der Impulsauflösung des Spektrometers zu führen. Die energetische Bandbreite des Primärstrahls in einem $(\gamma, e\gamma)$ -Experiment ist einer der Parameter, welche die Impulsauflösung des Experiments bestimmen. In Kapitel 4.3 ist dargestellt,

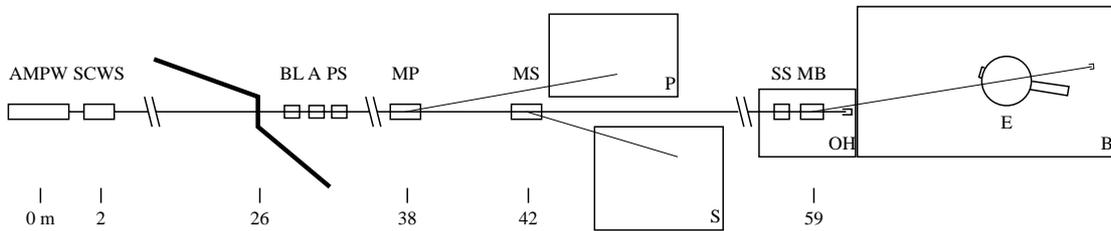


Abbildung 3.2: Der Aufbau des Strahlplatzes ID15 an der ESRF [44].

AMPW = asymmetrischer Multipol-Wiggler

SCWS = supraleitender Wiggler

BL = Strahlbegrenzer

A = Absorber

PS = Primärspalte

P = Portstation

MP = Monochromator Experimentierstation Port

S = Starstation

MS = Monochromator Experimentierstation Star

OH = Optikstation

SS = Sekundärspalte

B = Bowstation

MB = Monochromator Experimentierstation Bow

E = Experiment

welchen Einfluß diese auf die drei Komponenten des Auflösungsvektors hat.

Die Intensität des monochromatisierten Strahls ist abhängig von der integralen Reflektivität des Monochromatorkristalls. Um diese zu maximieren, ohne das Energieband zu breit werden zu lassen, muß die Reflektionskurve in geeigneter Art und Weise der Divergenz des polychromatischen Strahls angepaßt werden. Dabei beschreibt die Reflektionskurve eines Kristalls die Reflektivität als Funktion des Drehwinkels relativ zum polychromatischen Strahl. Die integrale Reflektivität wiederum ist definiert als das Integral über die Reflektionskurve. Die Verbreiterung der Reflektionskurve kann erreicht werden durch die Benutzung getemperter Kristalle [45] oder durch Biegung eines perfekten Kristalls, dessen Netzebenen relativ zur Oberfläche des Kristalls geneigt sind [46, 47].

Bei den hier beschriebenen Experimenten wurde zur Monochromatisierung durchgehend der $[2\ 2\ 0]$ -Reflex eines gebogenen, asymmetrisch geschnittenen Siliziumeinkristalls in defokussierender Laue-Geometrie benutzt [16]. Der Asymmetriewinkel betrug 9.8° und der Biegeradius etwa 60m.

Es wurde eine Energieauflösung von $\delta E/E \sim 5 \times 10^{-3}$ bei 150 keV benutzt. Diese Einstellung ist ein Kompromiß zwischen einem schmalen Energieband und einem hohen Photonenfluß.

3.3 Die Streukammer

Die in Abb. 3.3 dargestellte Streukammer ist ein aus Edelstahl gefertigter Zylinder mit einer Höhe von 400 mm und einem Durchmesser von 600 mm, die durch eine Turbomolekularpumpe auf 10^{-5} mbar evakuiert wird. Dadurch werden Streuprozesse an Luft in hohem Maße unterdrückt. Im Inneren der Kammer befindet sich ein Translations-tisch mit Probenhalter, der einen Probenwechsel ohne Öffnen der Kammer ermöglicht. Mehrere Blei- und Wolframabschirmungen dienen zur Untergrundunterdrückung. Das

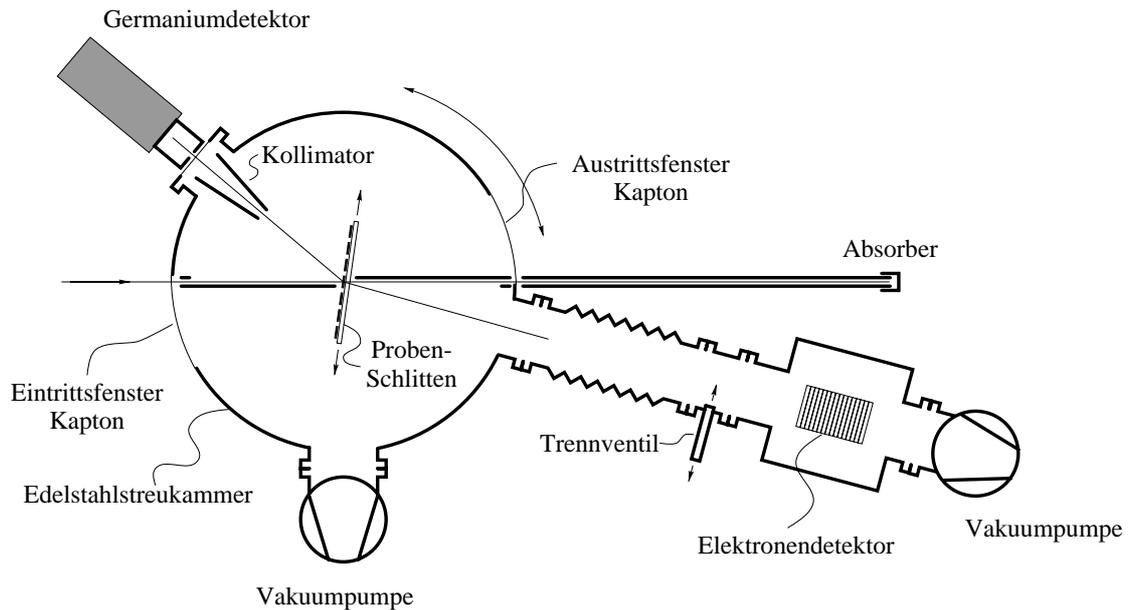


Abbildung 3.3: Die Streukammer mit angeflanschter Elektronendetektorkammer. Der Streuwinkel θ kann durch Drehung der Kammer variiert werden. Ebenso können die Abstände der beiden Detektoren und damit die entsprechenden Raumwinkel $d\Omega_\gamma$ und $d\Omega_e$ verändert werden.

Eintrittsfenster und das Austrittsfenster sind Kaptonfolien, welche über Spalte in der Kammer geklebt wurden. Hinter dem Austrittsfenster befinden sich ein Bleirohr und ein Bleiabsorber, der den ungestreuten Anteil des monochromatischen Strahls stoppt. Der Photonendetektor befindet sich außerhalb der Kammer hinter einem weiteren Kaptonaustrittsfenster. Seine Position bestimmt den Streuwinkel θ . Der Elektronendetektor befindet sich innerhalb des Vakuums in einer an die Streukammer angeflanschten zweiten Vakuumbühnenkammer. Seine Position ist so gewählt, daß sich das Zentrum der Diodenmatrix in der Streuebene unter dem Elektronenemissionswinkel ϕ_0 (siehe Gleichung (2.25)) befindet. Ein Schubventil ermöglicht eine Trennung der Vakua der Detektor- und der Streukammer.

Die Geometrie des Aufbaus bestimmt neben dem primären Photonenstrahl bei gegebenen Detektorsystemen die Auflösung und die zu erwartende Zählrate. Die Parameter sind hierbei der Streuwinkel θ und die Raumwinkel $d\Omega_\gamma$ und $d\Omega_e$ des Photonen- bzw.

Elektronendetektors. Die Kammer ist so konstruiert, daß verschiedene Streugeometrien möglich sind. Die Strahleingangs- und Ausgangsöffnungen sind längliche Spalte, die eine Variation des Streuwinkels θ zwischen 115^0 und 142^0 erlauben. Die Abstände der beiden Detektoren können ebenfalls variiert werden und somit auch die Raumwinkel $d\Omega_\gamma$ und $d\Omega_e$. Bei den bisherigen Experimenten wurde der Photonendetektor in einem Abstand von 370 mm zur Probe und einem Streuwinkel von $\theta = 140^0$ plaziert. Der Elektronendetektor befand sich in dem zugehörigen Winkel $\phi_0 = 15.7^0$ in einem Abstand von 900 mm zur Probe. Dies entspricht für den Photonendetektor bei der benutzten Detektoröffnung einem Raumwinkel von $2.8 \cdot 10^{-4}$ sr und für einen einzelnen Pixel des Elektronendetektors einem Raumwinkel von $9.9 \cdot 10^{-6}$ sr.

3.4 Detektorsystem und Koinzidenzelektronik

Das Detektorsystem eines $(\gamma, e\gamma)$ -Experiments besteht aus einem Photonendetektor und einem Elektronendetektor, deren Informationen in der nachfolgenden Koinzidenzelektronik zusammengefügt, an das Datenverarbeitungssystem weitergegeben und dort gespeichert werden. Die zusätzlich zur Kenntnis der Geometrie des Spektrometers und der Energie der Primärphotonen benötigten Informationen zur Festlegung der Kinematik des Streuprozesses sind die Energie des gestreuten Photons und die Emissionsrichtung des Rückstoßelektrons. Der Photonendetektor liefert die Information über die Energie des gestreuten Photons ω' und ein Triggersignal, welches den Zeitpunkt t_1 des Ereignisses anzeigt. Der Streuwinkel θ und die Streuebene sind durch die Position des Photonendetektors festgelegt. Der Elektronendetektor liefert die Nummer des detektierenden Pixels, welche die Information über die Emissionsrichtung des Rückstoßelektrons (β_x, β_y) enthält (siehe Abbildung 2.1), eine grobe Energieinformation E' und ebenfalls ein Triggersignal zur zeitlichen Festlegung t_2 des Ereignisses. Die beiden Energieinformationen durchlaufen in der Koinzidenzelektronik jeweils einen Diskriminator, der Signale, die außerhalb der Energiebereiche $\omega_0 \pm \Delta\omega_0$ und $E_0 \pm \Delta E_0$ liegen, ablehnt. $\Delta\omega_0$ und ΔE_0 sind derart zu wählen, daß alle Comptonereignisse, die nicht durch die Geometrie ausgeschlossen sind, detektiert werden, elektronisches Rauschen jedoch außerhalb des Energiefensters liegt.

In der Koinzidenzelektronik wird die Bedingung $|t_1 - t_2| \leq \Delta t$ überprüft. Die Länge des Koinzidenzfensters Δt ist das Zeitintervall, innerhalb dessen zwei detektierte Ereignisse als zu einem Streuprozess gehörend angesehen werden. Sie bestimmt sich aus der Zeitauflösung der Detektoren. Wird die Koinzidenzbedingung erfüllt, ist das Ereignis als ein Comptonstreuprozess identifiziert und wird mit den erlangten Informationen an das Datenverarbeitungssystem weitergegeben. Wird lediglich ein Photon ohne zugehöriges Elektron detektiert, wird dieses Ereignis mit der erlangten Energieinformation als nichtkoinzidentes Photon weitergegeben. Die folgenden Unterkapitel beschreiben die Detektoren und die nachfolgende Analog- und Digitalelektronik.

3 Experimenteller Aufbau

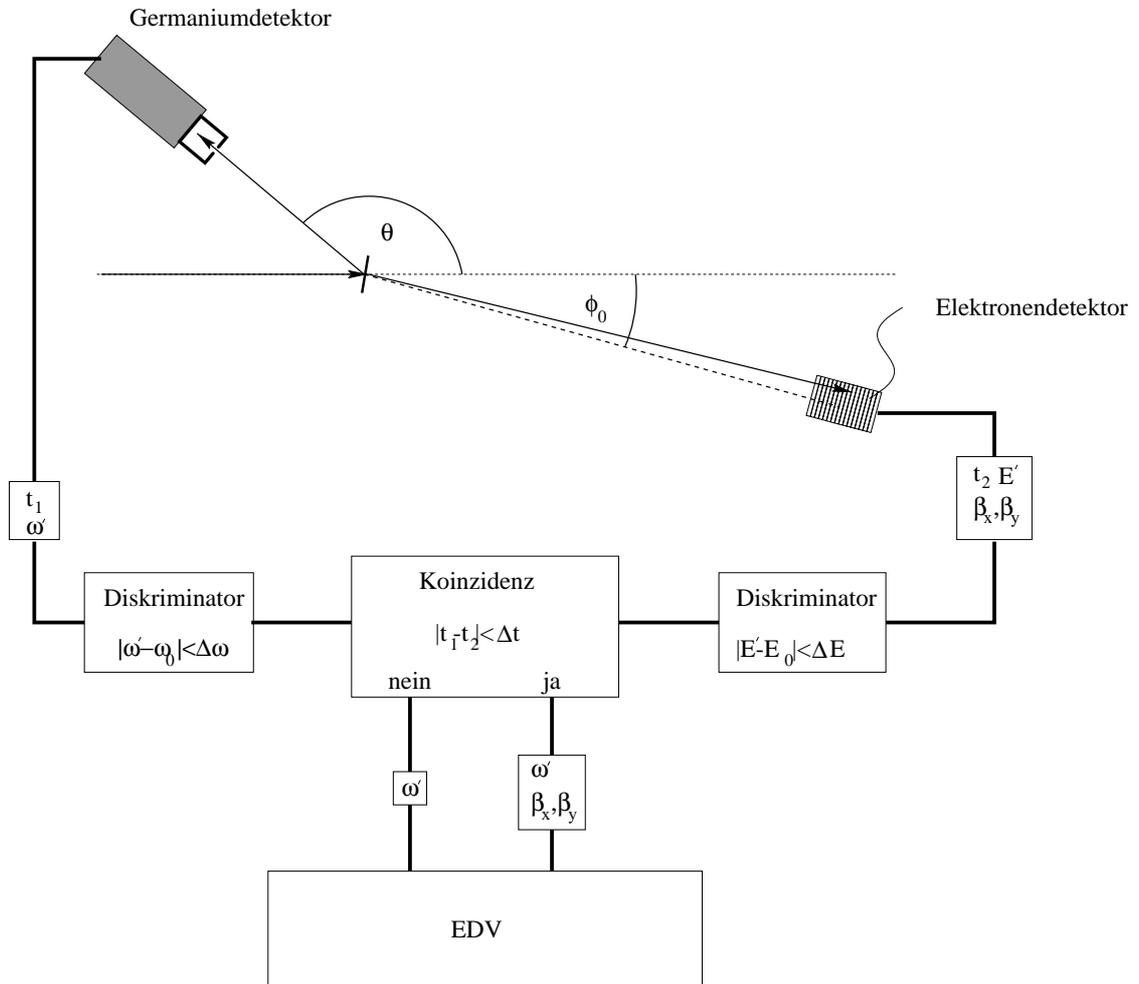


Abbildung 3.4: Schematische Darstellung des Detektorsystems und der Elektronik.

3.4.1 Der Photonendetektor

Der benutzte Photonendetektor ist ein Germanium Halbleiterdetektor. Dieser Detektor besteht aus einer Germanium-Diode und einem ladungsempfindlichen Vorverstärker. Ein Flüssigstickstoff-Dewar dient zur Kühlung des Germaniumkristalls.

Ionisierende Strahlung erzeugt in der Diode Elektron-Loch Paare, welche durch ein angelegtes elektrisches Feld aufgesammelt werden. Die intrinsische Effizienz eines Detektors \mathcal{E}_{int} , d.h. die Wahrscheinlichkeit, daß ein auf den Detektor treffendes Photon detektiert wird, bestimmt sich aus dem Wirkungsquerschnitt σ der auftretenden Wechselwirkung, dem Material und der Dicke x des Wechselwirkungsbereiches nach [48]

$$\mathcal{E}_{int} = 1 - \exp(-\mu x) \quad (3.1)$$

mit dem Massenabsorptionskoeffizienten $\mu \propto \sigma$. In dem betrachteten Energiebereich bis 150 keV ist der photoelektrische Wirkungsquerschnitt eine ausreichend gute Näherung

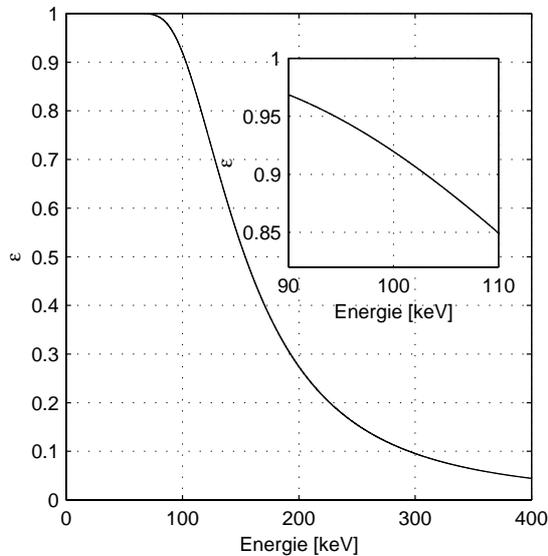


Abbildung 3.5: Berechnete Effizienz des Ge-Detektors als Funktion der Energie des Photons. Der für die beschriebenen $(\gamma, e\gamma)$ -Experimente relevante Bereich zwischen 90 und 110 keV ist vergrößert dargestellt. Aufgrund der Änderung der Effizienz in diesem Bereich von mehr als 10% ist eine Korrektur der gemessenen Spektren notwendig.

[49]. Die Dicke des Germaniumkristalls beträgt 13 mm. Bild 3.5 zeigt die so berechnete Effizienzkurve. Aus den in Abschnitt 5.1 angegebenen Parametern ergibt sich ein relevanter Energiebereich zwischen 90 und 110 keV über den sich das Comptonprofil erstreckt. In diesem Bereich beträgt die Effizienz der Diode zwischen 0.97 und 0.85. Aufgrund der Steigung der Effizienzkurve zwischen 90 und 110 keV ist eine Korrektur der gemessenen Verteilungen notwendig.

Die Auflösung und die Energiekalibration der Germaniumdiode wurde mit einem ^{133}Ba präparat gemessen. Die erreichte Auflösung des Detektors betrug bei den Experimenten $\sigma = 178$ eV bei einer Energie von 100 keV.

3.4.2 Der Elektronendetektor

Der Elektronendetektor ist eine Sonderanfertigung der Firma Detection Technology. Um einen variablen Detektor zu erhalten, wurde ein modularer Aufbau gewählt, der aus 16 einzelnen Modulen mit jeweils 16 Dioden und den zugehörigen Vorverstärkern besteht. Dieses System vereinfacht zudem das Platinenlayout und ermöglicht kurze Leiterbahnen zwischen den Dioden und den Vorverstärkern. Die Länge dieser Leiterbahnen ist einer der entscheidenden Faktoren für die Energieauflösung des Detektors [48]. Nach dem Zusammensetzen der einzelnen Module besteht der Detektor aus einer 16×16 Si-Diodenmatrix, die eine Gesamtoberfläche von 40305.5 mm^2 abdeckt. Die Größe der einzelnen Dioden beträgt $2 \times 4 \text{ mm}^2$ bei einer Dicke von $300 \mu\text{m}$. Der Abstand zwischen den Dioden beträgt 0.5 mm horizontal und 1 mm vertikal. Der sensitive Bereich beträgt somit 65.6% der gesamten Detektoroberfläche. Jede Diode besitzt einen individuellen Vorverstärker, von denen jeweils vier auf einem Chip zusammengefaßt sind.

Aus der Größe und Anordnung der einzelnen Dioden sowie der Entfernung des Detektors von der Probe bestimmt sich die Winkelauflösung des Detektors und die Granularität des Spektrometers in p_x - und p_y -Richtung. Als Granularität wird hierbei der

3 Experimenteller Aufbau

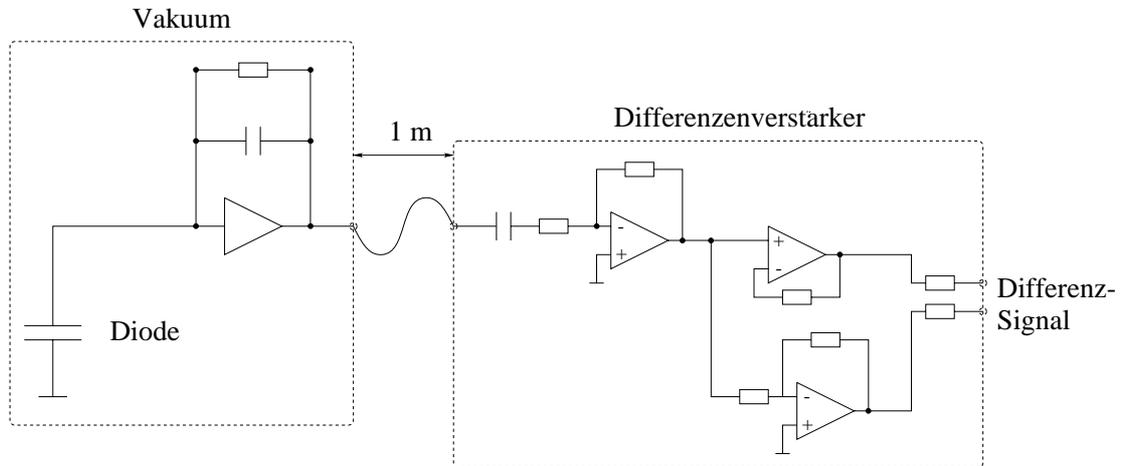


Abbildung 3.6: Schematisches Schaltbild eines Kanals des Elektronendetektors mit Vorverstärker im Vakuum und Differenzverstärker.

Abstand der einzelnen Meßpunkte im Impulsraum bezeichnet (siehe hierzu Abschnitt 4.3).

Abbildung 3.6 zeigt das schematische Schaltbild eines Kanals des Elektronendetektors. Der ladungsintegrierende Vorverstärker funktioniert nach dem Prinzip der RC-Rückkopplung mit einer über ein Potentiometer einstellbaren Zeitkonstante. Da die Ausgangssignale der Vorverstärker des Elektronendetektors bis zum Hauptverstärker eine Kabelstrecke von etwa 14 m zurücklegen müssen, werden sie bereits nach 1 m Kabelstrecke durch Differenzverstärker in Differenzsignale umgewandelt. Dadurch werden etwaige Störsignale unterdrückt.

Abbildung 3.7 zeigt ein Photo eines einzelnen Detektormoduls sowie eine schematische Zeichnung mit den wichtigsten Komponenten. Die Siliziumdioden sind durch Bondingdrähte mit Leiterbahnen verbunden, die zu den 4fach-Vorverstärkern führen. Ein zusätzlicher Vorverstärkerchip steht für ein einspeisbares Testsignal zur Verfügung. Das Potentiometer dient zur gemeinsamen Einstellung der Zeitkonstanten der Vorverstärker eines Moduls.

Abbildung 3.8 zeigt den Aufbau des gesamten Detektors aus den einzelnen Modulen. Sie sitzen derart auf einem wassergekühlten treppenförmigen Aluminiumhalter, daß die Dioden eine 16×16 Si-Diodenmatrix bilden mit 1 mm Zwischenraum zwischen den Diodenzeilen der einzelnen Module. Die Höhe der Stufen beträgt 5 mm. Der Halter sitzt in einer Vakuumkammer, die fensterlos mit der Streukammer verbunden ist. Der Aluminiumhalter und damit die Detektormodule werden durch eine Wasserkühlung auf Zimmertemperatur gehalten, um Beschädigungen und erhöhtes Rauschen durch die Wärmeentwicklung der Vorverstärker zu verhindern.

Die Energieauflösung des Elektronendetektors sollte $\Delta E \leq 5 \text{ keV}$ betragen, um in der Lage zu sein, die Elektronenereignisse vom Untergrundrauschen zu trennen (die Energie E_0 der Rückstoßelektronen beträgt 50 keV bei der benutzten Geometrie und einer Photonenenergie von 150 keV). Abbildung 3.9 zeigt das mit dem Elektronendetektor

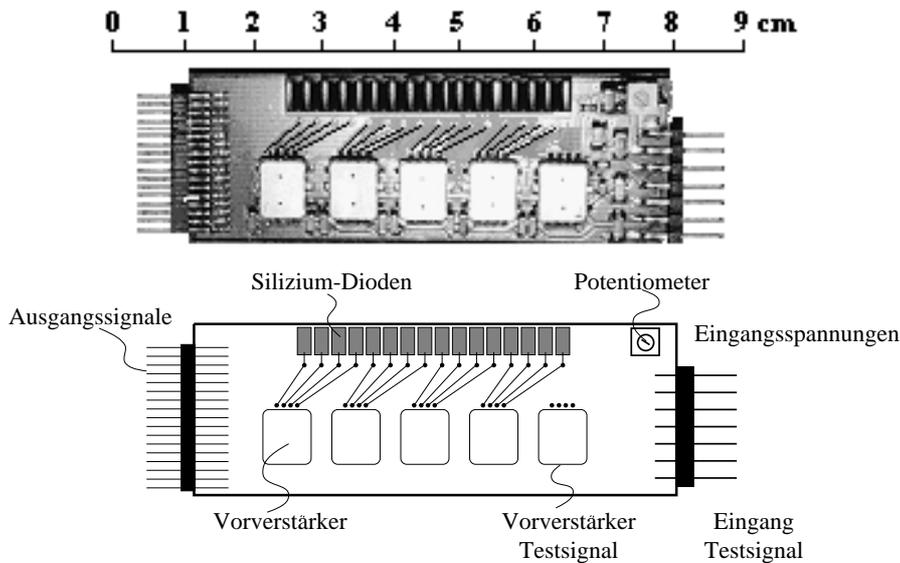


Abbildung 3.7: Ein Photo sowie eine schematische Zeichnung eines einzelnen Moduls des Elektronendetektors.

gemessene Energiespektrum eines Am^{241} -Präparates. Es ist zu erkennen, daß die Linie bei 59.5 keV klar vom Untergrundrauschen getrennt ist. Die Energieauflösung beträgt 3.8 keV (FWHM). Die erhöhte Zählrate bei kleineren Energien entsteht durch Comptonstreuung innerhalb des Präparates und ist kein Untergrundrauschen. Abbildung 3.9 zeigt einzelne Ausgangssignale von 50 keV Elektronen nach dem Vorverstärker und nach dem Hauptverstärker gemessen mit einem digitalen Oszilloskop. Auch hier ist zu erkennen, daß die Signale klar vom Untergrundrauschen getrennt sind. Somit ist das Setzen einer Diskriminatorschwelle oberhalb des Untergrundrauschens ohne weiteres möglich.

3.4.3 Die Elektronik

Abbildung (3.10) zeigt schematisch den Aufbau der Elektronik. In einem Koinzidenzweig werden zunächst die Ausgangssignale des Elektronen- und des Photonendetektors der Koinzidenzelektronik zugeführt. Diese ordnet ein detektiertes Photon einem innerhalb einer zeitlichen Koinzidenzbedingung detektierten Elektron zu und digitalisiert die Ortsinformation des Elektronendetektors. Im Photonenzweig werden die Ausgangssignale des Photonendetektors verstärkt und durch einen Analog-Digital-Wandler (ADC) digitalisiert. Dieses Vorgehen erlaubt unabhängig von der Detektion koinzidenter Ereignisse die gleichzeitige Messung nichtkoinzidenter Photonen, das heißt die Messung des Comptonprofils. Die Verarbeitung der digitalisierten Information besteht aus dem Zusammenfassen der beiden erlangten Informationen zu einem digitalen Wort und der Weitergabe an das Datenverarbeitungssystem, welches die Ereignisse speichert.

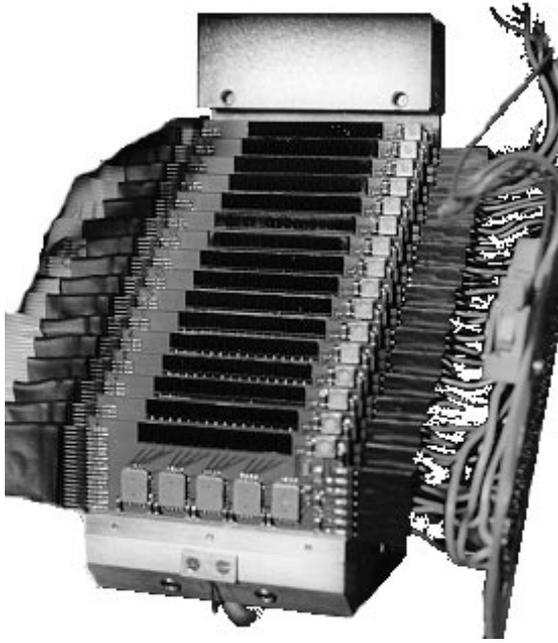


Abbildung 3.8: Der zusammengesetzte Elektronendetektor und der Aluminiumhalter.

Der energieauflösende Photonenzweig

Im energieauflösenden Photonen-Zweig wird das Vorverstärkerausgangssignal des Ge-Detektors nach einem Meter Kabelstrecke zunächst durch einen Spektroskopieverstärker verstärkt. Dieses verstärkte Signal wird daraufhin von einem Analog-Digital-Wandler (ADC) zu einem 13-bit Wort digitalisiert. Der Verstärkungsfaktor wird so eingestellt, daß Photonenergebnisse bis 160 keV in den Akzeptanzbereich (10 V) des ADC fallen und somit die gesamte Konversionstiefe des ADC ausgenutzt wird. Die Konversionszeit beträgt unabhängig von der Höhe des zu konvertierenden Signals 800 ns. Nach Beendigung der Konversion schickt der ADC ein logisches Signal an die Digitalelektronik, welches diese veranlaßt, den Puffer des ADC auszulesen.

Der Koinzidenzzweig

Im zweiten Zweig des Analogteils findet die eigentliche Koinzidenzmessung statt. Zunächst werden die jeweiligen Vorverstärkerausgangssignale aufbereitet. Das Vorverstärkerausgangssignal des Ge-Detektors wird im Koinzidenzzweig durch einen schnellen Timing Filter Amplifier verstärkt, der Signale mit einer Anstiegszeit von weniger als 8 ns erzeugt [50]. Abbildung 3.11 stellt die weitere Verarbeitung der Signale in der Koinzidenzelektronik schematisch dar. Das aufbereitete Photonensignal γ wird auf einer Kanalkarte mit einer einstellbaren unteren und oberen Schwelle diskriminiert, und das erzeugte logische Signal, dessen ansteigende Flanke die Zeitinformation t_1 beinhaltet, wird über ein internes BUS-System in die Koinzidenzkarte eingespeist.

Die unmittelbar nach den Vorverstärkern erzeugten Differenzsignale e des Elektronendetektors werden in der Koinzidenzelektronik verstärkt und diskriminiert. Die Dis-

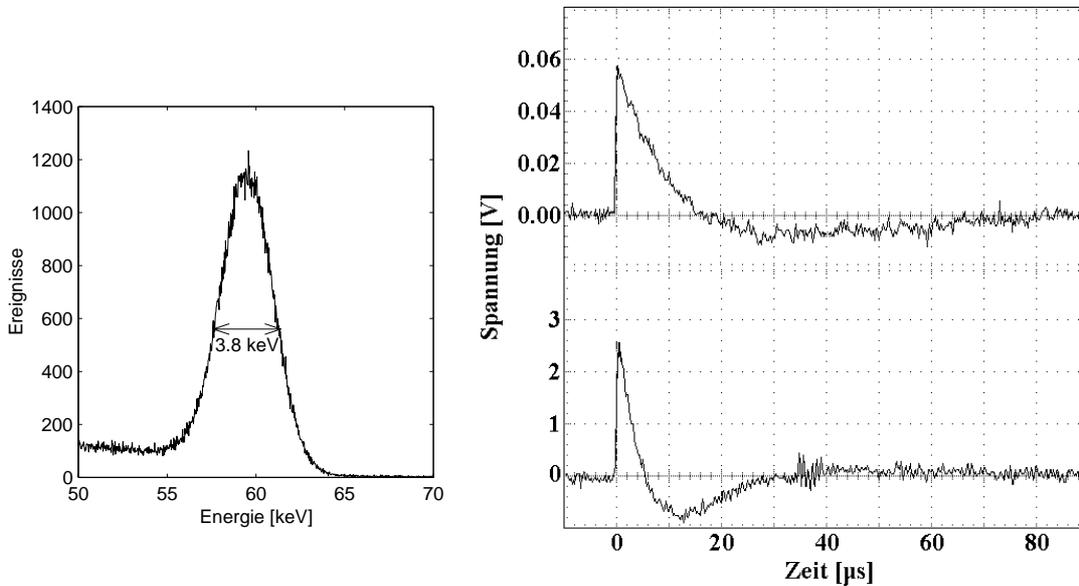


Abbildung 3.9: Links ist das Spektrum eines Am^{241} -Präparates, gemessen mit dem Elektronendetektor, zu sehen. Der Linie bei 59.9 keV wird durch die Energieauflösung zu 3.8 keV FWHM verbreitert. Die erhöhte Zählrate bei kleineren Energien entsteht durch Comptonstreuung innerhalb des Präparates. Auf der rechten Seite sind einzelne Ausgangssignale von 50 keV Elektronen nach dem Vorverstärker (oben) und nach dem Hauptverstärker (unten) zu sehen.

kriminatorschwellen und der Verstärkungsfaktor sind einstellbar. Überschreiten mehrere Elektronensignale innerhalb von $\cong 20$ ns die Diskriminatorschwelle, ist eine Zuordnung der Koinzidenz nicht eindeutig möglich und die Signale werden verworfen (Bedingung $n > 1$). Das durch den Diskriminator erzeugte logische Signal enthält die Zeitinformation t_2 des Elektronenzweiges und wird der Koinzidenzkarte übermittelt. Gleichzeitig wird über das interne BUS-System die Nummer des angesprochenen Pixels an die Koinzidenzkarte gegeben.

Abbildung 3.12 zeigt den zeitlichen Ablauf eines Koinzidenzereignisses in der Koinzidenzelektronik. Innerhalb der Koinzidenzkarte öffnet das logische Photonensignal γ ein Koinzidenzfenster mit einer in Inkrementen von 25 ns einstellbaren Länge Δt . Fällt die Flanke des logischen Elektronensignals e in dieses Fenster und es tritt kein zweites Elektronensignal auf, so werden die beiden Signale als zu einem Streuprozeß gehörend betrachtet. Sobald ein koinzidentes Ereignis aufgetreten ist, erzeugt die Karte ein logisches Signal (VALID). Liegt ein VALID an und ist die Bedingung ($n > 1$) nicht erfüllt, wird ein weiteres logisches Signal (DATA READY) erzeugt sowie ein 8-bit Wort, welches die Nummer des angesprochenen Pixels liefert. Diese Signale liegen an, bis die Karte ein logisches Signal (DATA ACCEPTED) der Digitalelektronik erhält.

Zusätzlich zur Einstellung der Koinzidenzzeiten ist eine einstellbare Verzögerung für die Elektronensignale in der Koinzidenzkarte integriert. Dies erlaubt es, etwaige zeitliche

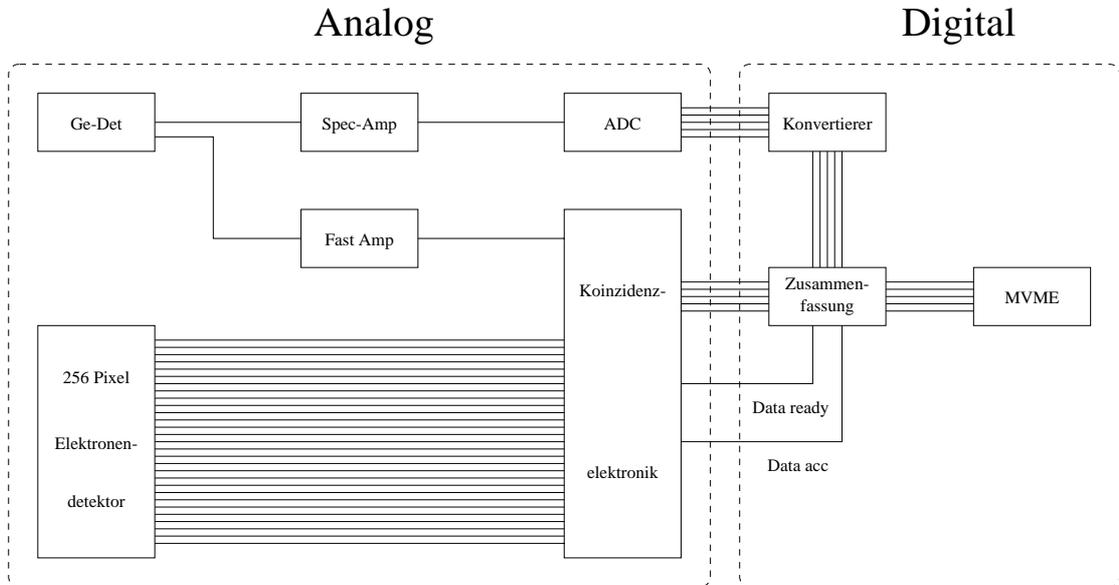


Abbildung 3.10: Schematische Darstellung der Elektronik eines $(\gamma, e\gamma)$ -Experiments. Im Koinzidenzzweig und im energieauflösenden Photonenweig werden digitale Worte erzeugt, die im digitalen Teil der Elektronik zusammengefügt werden.

Verzögerungen in den vorhergehenden Komponenten auszugleichen.

Die Zeitauflösung des Koinzidenzzweiges

Die Zeitauflösung der Koinzidenzelektronik ist die Summe der Zeitauflösungen der bis zu dieser Stelle durchlaufenen Komponenten. Die Zeitauflösung von Festkörperdetektoren ist bedingt durch die Driftzeit der Ladungsträger und die variierenden Entfernungen des Ortes, an dem die Ladungsträger erzeugt werden, zu den Elektroden, an denen sie nachgewiesen werden. Sie ist in der Größenordnung von 10 ns [51]. Eine weitere Zeitungenauigkeit entsteht bei der Diskrimination der Analogsignale, da die Diskriminator-schwelle beim Überschreiten eines fest eingestellten Wertes ein logisches Signal erzeugt, die Anstiegsflanken der Signale jedoch mit deren Höhe variieren.

Abbildung 3.13 zeigt das gemessene Zeitspektrum einer $(\gamma, e\gamma)$ -Messung an einer $110 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ ($\simeq 407 \text{ nm}$) Al-Folie. Auf einem Time-to-Analog-Converter (TAC) wurde als Start-Signal das logische Ausgangssignal des Diskriminators des Photonenzweiges der Koinzidenzelektronik benutzt. Stop-Signal war das entsprechende Signal des Elektronenzweiges. Es entsteht eine starke Linie "echter" Koinzidenzen, welche durch Elektronen und Photonen erzeugt wird, die zu einem Comptonprozeß gehören. Daneben ist eine Häufung von Ereignissen mit einer Periode von $2.8 \mu\text{s}$ zu erkennen. Dies entspricht der Umlaufdauer eines Elektronenpaketes im Speicherring, welche zu periodisch sich ändernden Zählraten der Detektoren führt. Die Zeitauflösung der koinzidenten Linie beträgt 100 ns (FWHM).

Die Länge des Koinzidenzfensters ist nun so groß zu wählen, daß alle auftretenden

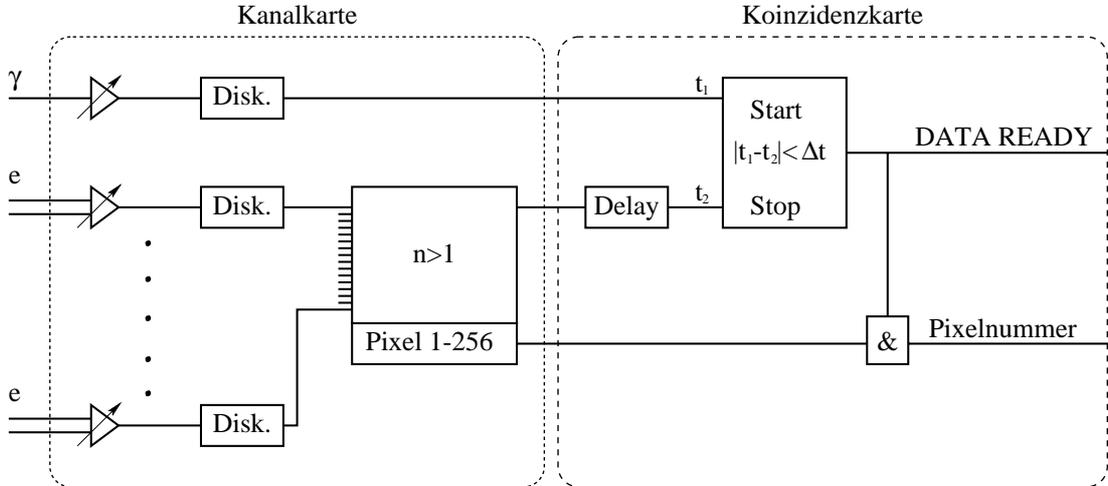


Abbildung 3.11: Schematisches Schaltbild der Koinzidenzelektronik.

koinzidenten Ereignisse in dieses Fenster fallen, das heißt mindestens so groß wie die Zeitauflösung des Detektorsystems. Andererseits sollte das Koinzidenzfenster auch nicht zu lang gewählt werden, da die Anzahl der zufälligen Koinzidenzen unter anderem von dieser Länge abhängt, wie weiter unten gezeigt wird. In den beschriebenen Messungen wurde das Koinzidenzfenster auf eine Länge von 300 ns eingestellt.

Neben tatsächlichen Koinzidenzen treten in Koinzidenzexperimenten auch zufällige Koinzidenzen auf. Diese entstehen, falls zufällig zwei unkorrelierte Ereignisse innerhalb des Koinzidenzfensters detektiert werden. Ihre Anzahl ist abhängig von den Einzelzählraten der Detektoren und der Länge des Koinzidenzfensters. Da es sich bei einem Synchrotron um eine gepulste Quelle und nicht um eine kontinuierliche handelt, ist zudem deren Zeitstruktur zu berücksichtigen. Im folgenden soll eine Abschätzung der Anzahl der zufälligen Koinzidenzen N_c gegeben werden. Es soll der Fall der in Abschnitt 3.1 beschriebenen 2/3-Füllung betrachtet werden.

Es seien N_1 und N_2 die Einzelzählraten der beiden Detektoren und Δt die Länge des Koinzidenzfensters. Der zeitliche Abstand zweier Elektronenpakete innerhalb des gefüllten Abschnitts des Rings beträgt 2.8 ns. Dies ist wesentlich kleiner als die erreichte zeitliche Auflösung von 100 ns, und die 666 Elektronenpakete, die einen Elektronenzug bilden, können daher als ein konstanter Puls betrachtet werden. Die Periode dieser einzelnen Pulse ergibt sich aus der Umlaufdauer im Speicherring zu 2.8 μs . Diese Zeit soll als Stroboskop-Zeit t_{Str} bezeichnet werden. Die Länge der Pulse beträgt 2/3 der Stroboskop-Zeit und soll als t_{Puls} bezeichnet werden.

Für eine kontinuierliche Quelle ist die Anzahl der zufälligen Koinzidenzen gegeben durch das Produkt der Einzelzählraten und der Länge des Koinzidenzfensters [48]. Für eine gepulste Quelle kommt zunächst ein Faktor t_{Strob}/t_{Puls} hinzu, der die Pulslänge und damit die Zeit, während der Koinzidenzen auftreten können, berücksichtigt. Ein zweiter Faktor δt beschreibt den Effekt, daß die mittlere Länge des Koinzidenzfensters dadurch verkürzt wird, daß ein geöffnetes Koinzidenzfenster zwischen zwei Pulsen keinerlei Er-

3 Experimenteller Aufbau

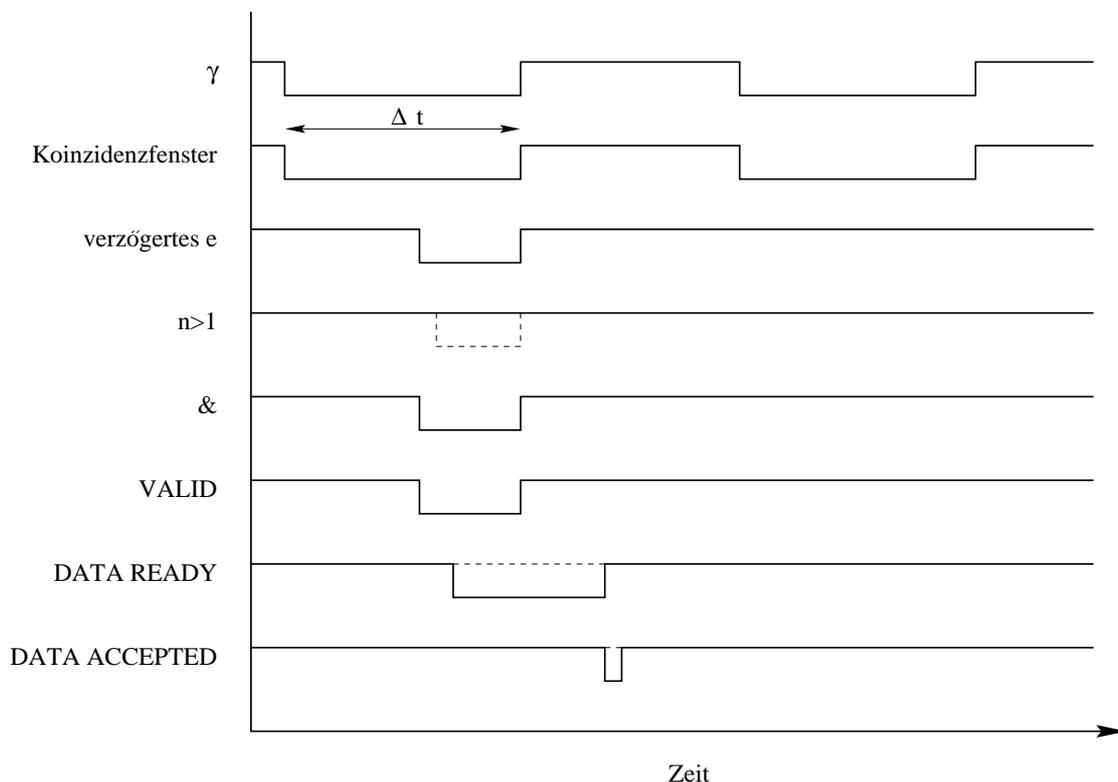


Abbildung 3.12: Zeitablauf eines Koinzidenzereignisses und eines nichtkoinzidenten Photonenergebnisses in der Koinzidenzelektronik. Gestrichelt ist der Ablauf dargestellt für den Fall, daß ein zweites Elektronensignal dem ersten innerhalb von 20 ns folgt.

eignisse zuläßt. Dieser Faktor ergibt sich zu

$$\delta t = \frac{t_{Puls} - \Delta t/2}{t_{Puls}} \quad (3.2)$$

Setzt man diese einzelnen Faktoren zusammen, ergibt sich die Anzahl der zufälligen Koinzidenzen N_c für eine 2/3 Füllung an der ESRF zu

$$N_c = N_1 \cdot N_2 \cdot \frac{t_{Strob}}{t_{Puls}} \cdot \delta t \cdot \Delta t = N_1 \cdot N_2 \cdot 1.85 \cdot 10^{-7} \quad (3.3)$$

Aus dieser Abschätzung und den gemessenen Zählraten ergibt sich für eine $28 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ ($\approx 104 \text{ nm}$) Al-Folie ein Anteil von 2.5% zufälliger Koinzidenzen an der Gesamtzahl der gemessenen Koinzidenzen.

Die in Abbildung 3.13 dargestellte Messung erlaubt auch eine experimentelle Bestimmung der Anzahl der zufälligen Koinzidenzen. "Echte" Koinzidenzen sitzen auf einem Untergrund von zufälligen Koinzidenzen, der sich bei jedem Umlauf der Elektronen im Speicherring wiederholt. Die Wahrscheinlichkeit, eine zufällige Koinzidenz nach der Zeit t zu finden, fällt mit $e^{-N_2 \cdot t}$ [52] ab. Korrigiert man den zweiten Elektronenzug mit diesem Faktor, entspricht das der Anzahl zufälliger Koinzidenzen im ersten Elektronenzug,

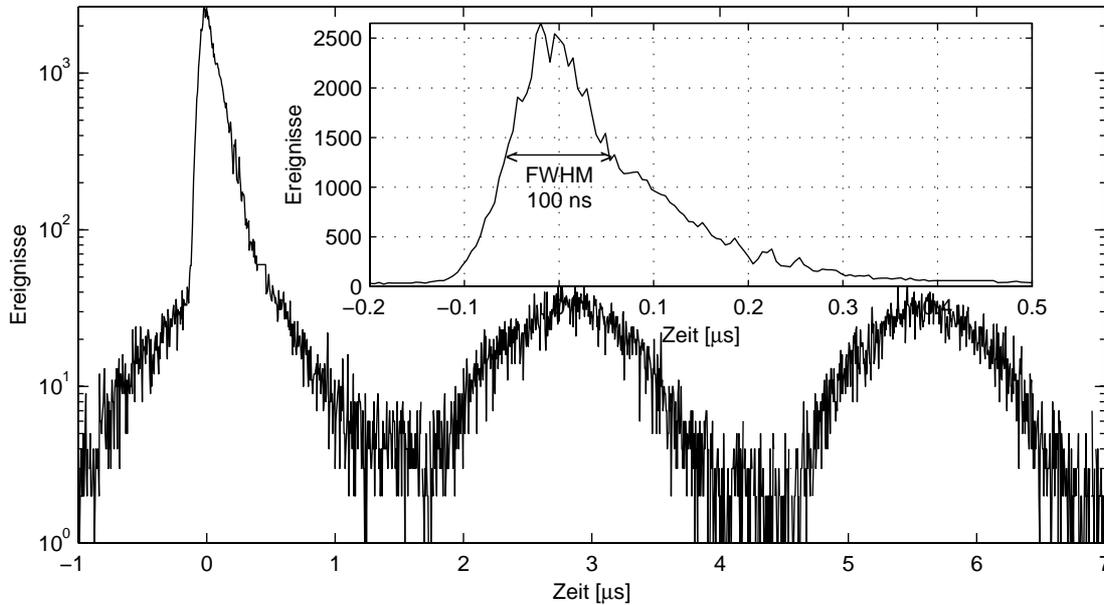


Abbildung 3.13: Histogramm der relativen Zeitdifferenzen zwischen dem Nachweis eines Photons und eines Elektrons. Die Linie bei 0 s entsteht durch Photonen und Elektronen, die zu einem Comptonprozeß gehören. Die Häufung von Ereignissen mit einer Periode von 2.8μ s entspricht der Umlaufdauer eines Elektronenpaketes im Speicherring. Der innere Graph zeigt eine Vergrößerung des Histogramms um die Linie "echter" Koinzidenzen. Die Zeitauflösung beträgt 100 ns (FWHM).

und man erhält das Verhältnis von zufälligen zu "echten" Koinzidenzen. Es ergibt sich ebenfalls ein Anteil von 2.5%.

In Abschnitt 5.2 wird eine weitere experimentelle Methode zur Bestimmung des Anteils von zufälligen Koinzidenzen beschrieben, deren Ergebnisse mit den vorhergehenden übereinstimmen, jedoch zudem das Energiespektrum der zufälligen Koinzidenzen berücksichtigt. Die genaue Kenntnis dieses Anteils erlaubt eine Korrektur der Meßdaten.

Die Digitalelektronik

Nach der Erzeugung zweier binärer Worte als letztem Arbeitsschritt der Analogelektronik, werden diese in der Digitalelektronik weiterverarbeitet. Für nichtkoinzidente Photonenergebnisse bedeutet dies lediglich die Ablage der Energieinformation in einem dafür vorgesehenen Histogrammpuffer. Da bei koinzidenten Ereignissen die Verarbeitung der analogen Signale in zwei getrennten Zweigen erfolgt, müssen diese Informationen in der Digitalelektronik zunächst zusammengesetzt werden, um anschließend in einen Zirkulärpuffer geschrieben zu werden. Die beiden Puffer werden in regelmäßigen Abständen von einem Rechner über den VME-Bus ausgelesen.

Die Digitalelektronik setzt sich aus drei Komponenten zusammen:

3 Experimenteller Aufbau

- ein Konversionseinschub (ausgelegt als NIM-Modul), der das binäre Ausgangssignal des Canberra-ADC von der TTL-Norm in ein differentielles Signal umwandelt. Dies verringert die Fehlerrate bei der Datenübertragung zu den folgenden Modulen.
- Ein VME-Modul, welches die binären Signale aufbereitet und an das zweite VME-Modul weitergibt.
- Ein zweites VME-Modul, welches die binären Worte zusammenfaßt und in die entsprechenden Puffer schreibt. Dieses Modul soll im folgenden näher beschrieben werden.

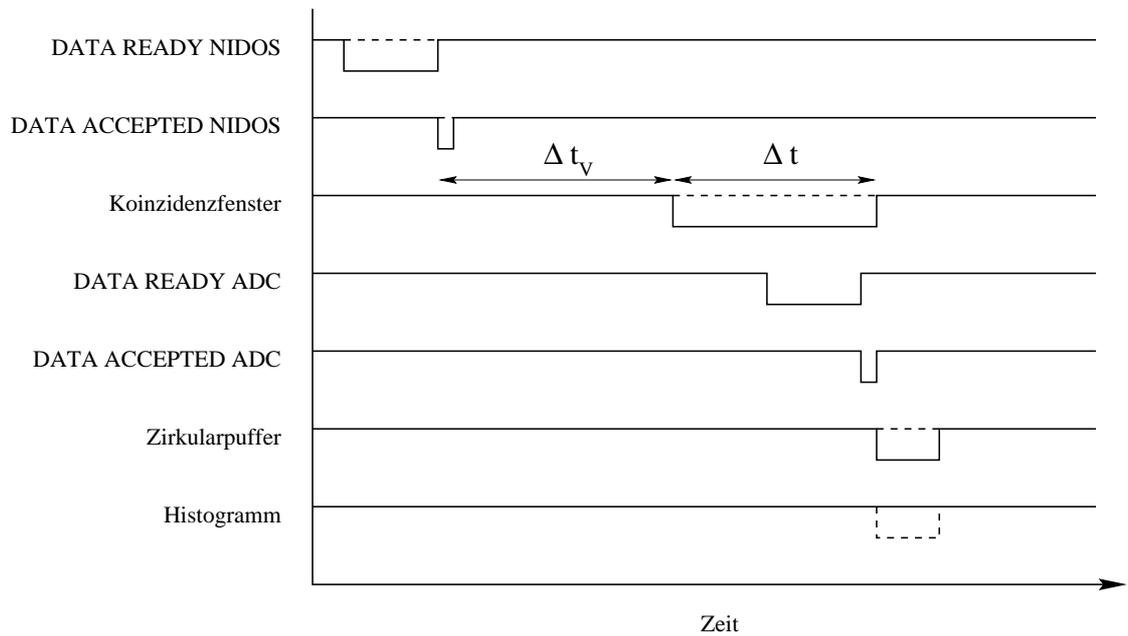


Abbildung 3.14: Zeitablauf in der VME-Elektronik. Durchgezogen ist der Zeitablauf für ein koinzidentes Ereignis dargestellt, gestrichelt für ein nichtkoinzidentes.

Das Zusammensetzen zusammengehörender Werte erfolgt mittels einer zweiten Koinzidenzbedingung der beiden DATA READY-Signale des ADCs und der Koinzidenzelektronik. Der energieauflösende Zweig der Analogelektronik ist hierbei aufgrund der Integration der Vorverstärkersignale im Spektroskopie-Verstärker und der Konversionszeit des ADC von 800 ns deutlich langsamer als der Koinzidenzzweig. Dies führt dazu, daß die beiden binären Worte eines koinzidenten Ereignisses zeitlich zueinander verschoben sind. Da jedoch sowohl die Integrationszeit des Verstärkers, als auch die Konversionszeit des ADC konstant sind, handelt es sich um eine konstante zeitliche Verschiebung und ist somit durch eine zeitliche Verzögerung korrigierbar.

Abbildung 3.14 zeigt den Zeitablauf der VME-Elektronik. Im Falle eines DATA READY der Koinzidenzelektronik, das heißt der Detektion eines koinzidenten Ereignisses, wird innerhalb des VME-Moduls ein Zeitfenster mit einer programmierbaren Länge

Δt und Verzögerung Δt_V geöffnet, innerhalb dessen das zugehörige Photonensignal auftreten sollte. Grundsätzlich sollte zu jedem DATA READY der Koinzidenzelektronik ein DATA READY des ADCs vorliegen, da ein gültiges Photonensignal Voraussetzung für das Auftreten einer Koinzidenz in der Koinzidenzelektronik ist. Dennoch ist eine Fehlerbehandlung vorgesehen für den Fall eines fehlenden Photonensignals. Dieses Zeitfenster ist wesentlich weiter gefaßt und unkritischer als das Zeitfenster der Koinzidenzelektronik. Grund hierfür ist einerseits die niedrige Koinzidenzzählrate von maximal 10 Hz und andererseits das sichere Vorhandensein eines koinzidenten Photons. Handelt es sich um ein koinzidentes Ereignis, so werden das binäre Wort, welches die Energieinformation des Photonendetektors enthält, und die Nummer des Pixels des Elektronendetektors zu einem Wort zusammengefaßt und in einen zirkularen Puffer geschrieben. Dieser "Event-Mode" ist aufgrund der niedrigen Zählrate deutlich sparsamer an Speicherplatz als ein entsprechender Histogramm-Mode, der $8k \times 256$ Kanäle enthalten müßte.

Treten Photonenergebnisse außerhalb des Zeitfensters auf, handelt es sich um nichtkoinzidente Photonenergebnisse. In diesem Fall wird lediglich die Energieinformation des Photonendetektors in einen Histogrammpuffer geschrieben. Dieser muß lediglich $8k$ Kanäle enthalten und ist daher für nichtkoinzidente Ereignisse der günstigere Speicher-Modus.

In programmierbaren zeitlichen Abständen werden die beiden Puffer über einen VME-Bus ausgelesen, ohne die weitere Datenaufnahme zu unterbrechen. Der Inhalt des Zirkularpuffers wird bis zu einem Neustart der Datenaufnahme fortlaufend in eine Datei geschrieben. Die registrierten Informationen sind die Nummer des detektierenden Pixels des Elektronendetektors und die vom ADC digitalisierte Energieinformation des koinzidenten Photons. Der Inhalt des Histogrammpuffers, das heißt die nichtkoinzidenten Ereignisse, wird zum Histogramm der bereits aufgezeichneten Ereignissen addiert und in eine Tabellendatei geschrieben.

3 Experimenteller Aufbau

4 Vergleich der theoretischen mit den experimentellen Impulsdichten

Um theoretisch berechnete dreidimensionale Elektronenimpulsdichten mit einer $(\gamma, e\gamma)$ -Messung zu vergleichen, müssen die Effekte der experimentellen Auflösung und der Elektronenvielfachstreuung berücksichtigt werden. Während die begrenzte Auflösung lediglich zu einer Verschmierung der gemessenen Verteilungen führt, kommt es durch die Elektronenvielfachstreuung zu einer Verfälschung der erlangten Information. Wie bereits in Kapitel 3 erwähnt, ist die Elektronenvielfachstreuung ein grundlegendes Problem der $(\gamma, e\gamma)$ -Spektroskopie, und eine korrekte Behandlung ist Voraussetzung für eine richtige Deutung der experimentellen Resultate. Das benutzte Korrekturverfahren, beruhend auf einer Monte-Carlo Simulation der Elektronenbahnen, entspricht der in den Referenzen [16, 14] beschriebenen Methode und wird im Folgenden nur in seinen Grundzügen dargestellt. Es soll zudem kurz auf Photonenvielfachstreuung eingegangen werden, die aufgrund der großen mittleren freien Weglängen der Photonen in der Analyse der Ergebnisse eines $(\gamma, e\gamma)$ -Experiments vernachlässigt werden.

Bei der Betrachtung des Einflusses der experimentellen Auflösung wurde anlehnd an Kurp [30] ein neuer Weg eingeschlagen und das gesamte Experiment mit Hilfe eines Monte-Carlo Codes simuliert. Dieser Code berücksichtigt sämtliche die Auflösung des Spektrometers beeinflussenden Parameter, sowie die Elektronenvielfachstreuung und die theoretische Elektronenimpulsdichte der untersuchten Probe. Die Ergebnisse der Simulation erlauben somit einen direkten Vergleich mit den Ergebnissen der Messungen. Diese Methode bietet sich an aufgrund der zahlreichen voneinander abhängigen Parameter und den damit zusammenhängenden verschiedenen Wahrscheinlichkeitsverteilungen, welche die Auflösungsfunktion beeinflussen [53]. Eine analytische Fehlerbetrachtung ohne Berücksichtigung der gegenseitigen Abhängigkeiten liefert keine korrekten Resultate [30]. Im folgenden soll der Monte-Carlo Code vorgestellt werden und der Einfluß der verschiedenen auflösungsbestimmenden Parameter diskutiert werden.

4.1 Elektronenvielfachstreuung

Bei einem $(\gamma, e\gamma)$ -Experiment werden durch Comptonstreuung Rückstoßelektronen innerhalb der Probe erzeugt, deren Emissionsrichtung gemessen werden soll. Werden diese Elektronen jedoch auf dem Weg von ihrer Erzeugung bis zum Erreichen des Detektors nochmals gestreut, kommt es zu einer Veränderung ihrer Flugrichtung und damit zu einer Verfälschung der erlangten Information. Da die mittlere freie Weglänge λ für inkohären-

4 Vergleich der theoretischen mit den experimentellen Impulsdichten

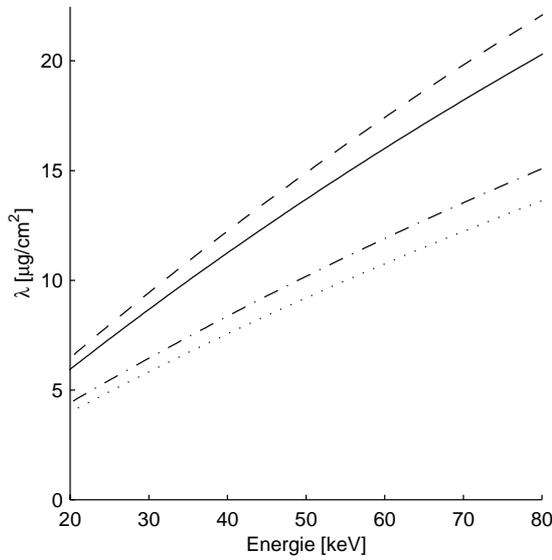


Abbildung 4.1: Mittlere freie Weglänge der Elektronen in Abhängigkeit von ihrer Energie für Kohlenstoff (gestrichelt), Aluminium (durchgezogen), Nickel (gestrichpunktet) und Kupfer (gepunktet).

te elastische Streuung von Elektronen in festen Medien in der Größenordnung selbst der dünnsten herstellbaren freistehenden Proben ist, ist es notwendig die gemessenen Verteilungen auf diesen Effekt zu korrigieren.

Inelastische Elektronenstreuung innerhalb der Probe erfolgt im wesentlichen durch Plasmonanregung [54]. Die mittlere freie Weglänge für einen solchen Prozeß ist gegeben durch:

$$\lambda_{Pl} = \frac{2}{\Theta_E \ln[1 + (\Theta_C/\Theta_E)^2]} \quad (4.1)$$

mit

$$\Theta_E = \frac{E_{Pl}}{2E} \quad , \quad \Theta_C = \sqrt{2\Theta_E} \quad (4.2)$$

und E_{Pl} der Plasmonenergie und Θ_C dem Plasmonabschneidewinkel. Für Elektronen einer Energie von 50 keV ergibt sich in Aluminium bei einer Plasmonenergie von 15.8 eV eine mittlere freie Weglänge von 72 nm und eine mittlere Impulsänderung $\sqrt{\langle q^2 \rangle} = q_0 \Theta_E \approx 10^{-2}$ a.u., welche deutlich kleiner ist als die Impulsauflösung des Spektrometers. Diese Prozesse können daher in der Betrachtung der Elektronenvielfachstreuung vernachlässigt werden. Zusätzlich kann es neben den Plasmonanregungen auch zu Einteilchenanregungen kommen. Für diese ergibt sich in Aluminium ein mittlerer Energieverlust von 1.1 a.u. bei einer mittleren freien Weglänge von 680 nm, die wesentlich größer ist, als die Dicke der gemessenen Proben. Daher können auch diese Prozesse vernachlässigt werden.

Abbildung 4.1 zeigt die mittlere freie Weglänge der inkohärenten elastischen Streuung für Elektronen in Kohlenstoff, Aluminium, Nickel und Kupfer in Abhängigkeit von der Energie der Elektronen. Sie ist gegeben durch

$$\lambda = \frac{A}{\sigma} \quad (4.3)$$

Probe	Dicke [nm]	mittlere freie Weglänge [nm]	P_0 [%]	P_0^* [%]
C	13	68.3	90.76	94.26
Fullerene	99	68.3	52.86	68.65
Al	104	51.8	43.19	64.63
Ni	22	11.7	41.37	62.10
Cu	22	10.5	44.38	66.52
Cu/Ni	44	11.1	24.29	40.28

Tabelle 4.1: Die freie Weglänge und der Anteil P_0 der Elektronen, die innerhalb einer Probe der Dicke D nicht gestreut werden sowie der tatsächliche Anteil ungestreuter Elektronen in den gemessenen Verteilungen P_0^* für die gemessenen Probensysteme und eine Elektronenenergie von 51.2 keV, was einer Primärphotonenenergie von 150 keV entspricht.

mit dem molaren Gewicht A der Probe und dem totalen Wirkungsquerschnitt σ der elastischen Elektronenstreuung. Es ist offensichtlich, daß höhere Elektronenenergien die mittlere freie Weglänge vergrößern und damit die Vielfachstreuung vermindern. Daher ist die Benutzung hoher Primärphotonenenergien notwendig, um den Anteil vielfachgestreuter Elektronen möglichst gering zu halten. Die mittlere freie Weglänge wird zudem mit höherer Kernladungszahl Z kleiner, und die $(\gamma, e\gamma)$ -Spektroskopie eignet sich daher besonders für Proben mit einer niedrigen Kernladungszahl.

Werden Elektronen homogen in einer Folie der Dicke D erzeugt¹, ergibt sich der Anteil P_0 der Elektronen, die innerhalb der Folie nicht gestreut werden, aus der Poisson-Verteilung zu [16]:

$$P_0 = \frac{\lambda}{D} \cdot \left(1 - e^{-\frac{D}{\lambda}}\right) \quad . \quad (4.4)$$

Da die vielfachgestreuten Elektronen jedoch in p_x - und p_y -Richtung eine wesentlich breitere Verteilung erzeugen, als die nicht gestreuten Elektronen (vergleiche hierzu Abbildung 4.2), ist die Wahrscheinlichkeit, daß diese nicht auf den Elektronendetektor treffen größer als für nicht vielfachgestreute Elektronen. Damit verringert sich der Anteil der vielfachgestreuten Elektronen in den gemessenen Verteilungen. Diesen tatsächlichen Anteil ungestreuter Elektronen P_0^* in den gemessenen Verteilungen erhält man aus den Ergebnissen der in Abschnitt 4.2 vorgestellten Monte-Carlo Simulation des Experiments. Die so bestimmte Anzahl vielfachgestreuter Elektronen verändert sich bezüglich der mit Gleichung (4.4) bestimmten Anzahl um etwa 40%. In Tabelle 4.1 sind die Werte für die durchgeführten Messungen zusammengefaßt. Während vielfachgestreute Elektronen für die sehr dünne Graphitprobe (Kernladungszahl 6) fast vernachlässigbar sind, erreicht deren Anteil für die gemessene Aluminiumprobe 35% und für die aus 22 nm Kupfer und 22 nm Nickel zusammengesetzten Proben etwa 60%.

¹Diese Annahme ist begründet, wenn die mittlere freie Weglänge der Primärphotonen viel größer als die Dicke der Probe ist.

Monte-Carlo Simulation der Vielfachstreuung

Zur Bestimmung der Winkelverteilung mehrfach gestreuter Elektronen wurde eine Monte-Carlo Simulation entwickelt, welche die Bahn der Elektronen durch die Probe berechnet [16, 14, 55]. Die dabei zugrundeliegende Methode von F. Salvat ist in den Referenzen [56, 57, 58] beschrieben. Zunächst wird die Tiefe in der Probe berechnet, in der das Elektron durch Comptonstreuung erzeugt wird. Anschließend wird abhängig von der mittleren freien Weglänge die Distanz berechnet, an der das Elektron erstmals gestreut wird. Befindet sich dieser Ort noch innerhalb der Probe, wird die Ablenkung des Elektrons berechnet. Dieses Vorgehen wird so lange wiederholt, bis sich das Elektron nicht mehr in der Probe befindet. Für die Berechnung der Vielfachstreuung des Kupfer/Nickel-Schichtsystems wird zudem das streuende Material in Abhängigkeit vom Ort des Streuprozesses bestimmt. Als Anfangsimpuls wird der jeweilige Impuls des Elektrons nach der Comptonstreuung benutzt, der nach Durchlaufen der Vielfachstreuersimulation mit der dabei erlangten Richtungsänderung des Elektrons modifiziert wird. Es wird lediglich elastische Streuung der Elektronen an den abgeschirmten Kernpotentialen betrachtet.

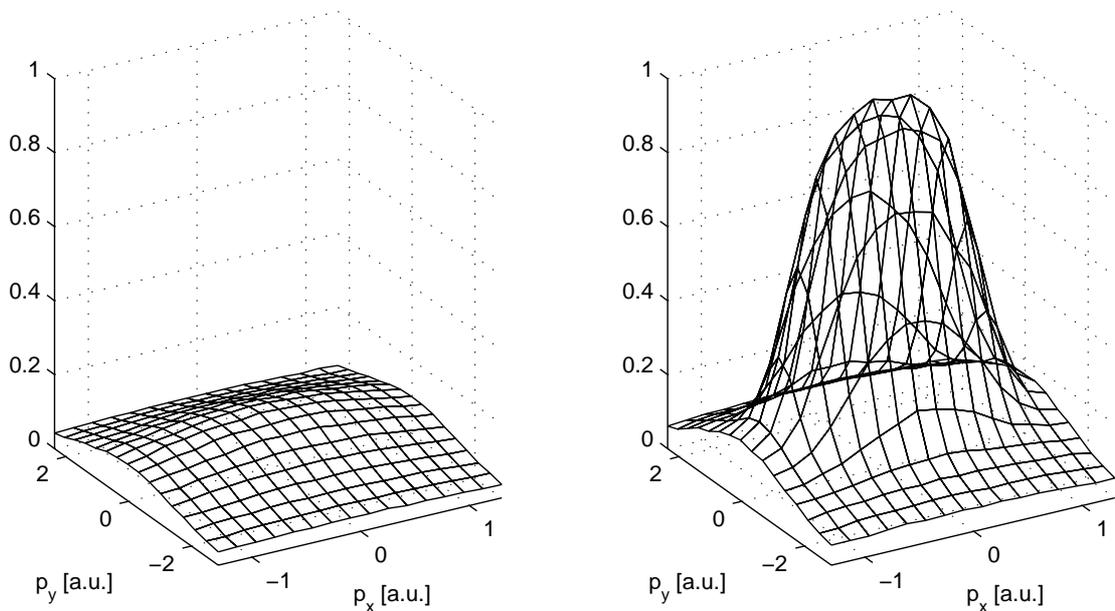


Abbildung 4.2: Anteil der vielfachgestreuten Elektronen für eine $28 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ ($\simeq 104$ nm) Al-Folie bei $p_z = 0$. Das linke Bild zeigt den Anteil von Ereignissen mit vielfachgestreuten Elektronen, das rechte Bild zeigt sämtliche Ereignisse. Der Maßstab beider Bilder ist gleich.

Einfluß der Elektronenvielfachstreuung auf die experimentellen Verteilungen

Bei einer Betrachtung des Einflusses vielfachgestreuter Elektronen auf die Messung muß zwischen den verschiedenen Komponenten des Elektronenimpulses unterschieden wer-

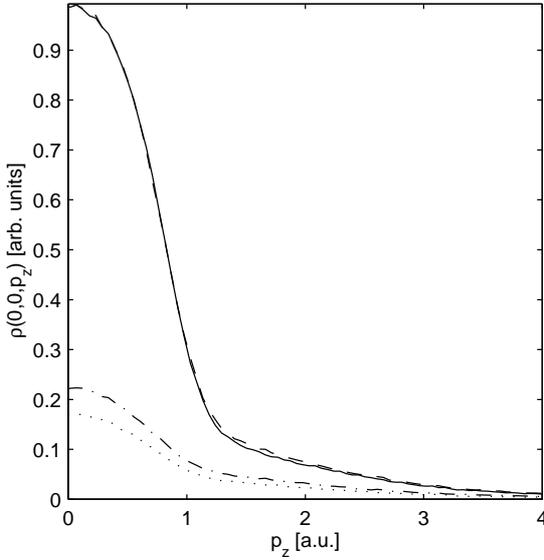


Abbildung 4.3: Ergebnisse $\rho(0, 0, p_z)$ des Simulationsprogramms für Aluminium mit einer Flächenbelegung von 104 nm (durchgezogen) und einer um 50% dickeren Probe (gestrichelt). Die Maxima sind auf 1 normiert. Zusätzlich sind die Spektren vielfachgestreuter Ereignisse für die beiden Proben eingetragen (104 nm: gepunktet, 156 nm: gestrichpunktet).

den. Die Elektronenvielfachstreuung verändert zunächst lediglich die Elektronenemissionswinkel β_x und β_y der Gleichungen (2.29) und damit die Impulskomponenten p_x und p_y . Abbildung 4.2 zeigt das Ergebnis einer Simulation für eine $28 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ ($\simeq 104$ nm) Al-Folie an der Stelle $p_z = 0$. Das linke Bild zeigt den Anteil von Ereignissen mit vielfachgestreuten Elektronen, das rechte Bild zeigt sämtliche Ereignisse. Die Elektronenvielfachstreuung erzeugt einen flachen Untergrund auf dem deutlich abgehoben die ungestreuten Ereignisse sitzen.

Eine ähnliche Untersuchung der Elektronenvielfachstreuung in einem $(\gamma, e\gamma)$ -Experiment von Rollason und Woolf [55] bestätigt diese Aussage und erweitert sie zudem für Proben mit einer Dicke von bis zu 0.1 mm. Die Erhöhung der Einzelzählraten auf den beiden Detektoren bei der Benutzung solcher Proben würde jedoch bei der zur Verfügung stehenden Zeitaufösung der Koinzidenzelektronik zu einer Erhöhung des Anteils zufälliger Koinzidenzen führen, die die Messung der Elektronenimpulsdichte unmöglich machen würde (vergleiche Abschnitt 3.4.3).

Ein Einfluß der Elektronenvielfachstreuung auf die p_z -Komponente ergibt sich durch fehlerhafte Zuordnung von Ereignissen, die außerhalb des durch die Pixelgröße definierten Bereiches in p_x und p_y liegen. Dies führt im Extremfall einer unendlich dicken Probe zur Messung eines Comptonprofils anstatt einer Linie durch die Elektronenimpulsdichte senkrecht zur $p_x - p_y$ Ebene [59]. Abbildung 4.3 zeigt die Ergebnisse $\rho(0, 0, p_z)$ des Simulationsprogramms für Aluminium mit einer Flächenbelegung von $28 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ ($\simeq 104$ nm) und einer um 50% dickeren Probe. Trotz des deutlich höheren Anteils vielfachgestreuter Ereignisse der dickeren Probe, ist in der gesamten simulierten Impulsdichte lediglich zwischen 1.2 und 3 a.u. ein minimaler Unterschied zu erkennen.

Photonenvielfachstreuung

Es soll an dieser Stelle noch kurz auf die Vielfachstreuung der Photonen eingegangen werden. Die mittlere freie Weglänge von Photonen in Materialien berechnet sich auf die gleiche Weise, wie die der Elektronen, wobei der Wirkungsquerschnitt für Photonenstreuung benutzt werden muß. Es ergeben sich damit mittlere freie Weglängen der Compton-gestreuten Photonen mit einer Energie von 100 keV in Aluminium von $5.8 \cdot 10^6 \mu\text{g}/\text{cm}^2$, was einer Dicke von 2.1 cm entspricht. Bei einer typischen Dicke der bei der $(\gamma, e\gamma)$ -Spektroskopie benutzten Proben von mehreren 10 nm ist die Photonenvielfachstreuung vernachlässigbar.

4.2 Monte-Carlo Simulation der experimentellen Verteilung

Die bei einem $(\gamma, e\gamma)$ -Experiment gemessenen Verteilungen werden, außer durch den dreifach-differentiellen Wirkungsquerschnitt und die Elektronenimpulsdichte der gemessenen Probe, durch die Elektronenvielfachstreuung und eine Vielzahl experimenteller Parameter beeinflusst. Diese Parameter beinhalten sämtliche Eigenschaften des Photonprimärstrahls, den geometrischen Aufbau des Spektrometers und die Energie- und Winkelauflösung der beiden Detektoren. All diese Größen sind genau bestimmbar und zum Teil an die experimentellen Erfordernisse der Experimente anpaßbar. Die gegenseitige Abhängigkeit der Einflüsse dieser Parameter auf die gemessenen Verteilungen erschwert jedoch eine analytische Berechnung, und es wurde daher auf numerische Methoden zurückgegriffen. Es wurde ein Monte-Carlo Code geschrieben, der die Kinematik einzelner Comptonstreuereignisse an Proben mit bekannten theoretischen Elektronenimpulsdichten simuliert.

In Abbildung 4.4 ist das Flußdiagramm dieses Simulationsprogramms dargestellt. Der Code ist in C++ [60] geschrieben und mit Gnu-C++ auf UNIX kompiliert. Es wurden typischerweise 10^8 Streueignisse simuliert, und die dafür benötigte Laufzeit auf dem nice-Cluster [61] der ESRF beträgt etwa 10 Stunden. Um unabhängig von dem maschineninternen Zufallsgenerator zu sein, wurde ein maschinenunabhängiger Algorithmus zur Erzeugung der gleichverteilten Zufallszahlen benutzt [62].

Zunächst werden dem Programm sämtliche experimentellen Parameter übergeben. Diese sind die Energie der Primärphotonen ω_0 , die Energiebandbreite der Primärphotonen $\Delta\omega_0$, der Streuwinkel θ , die Höhe und Breite des Strahlflecks $b_S \times h_S$, der Öffnungsradius r_γ des Photonendetektors und dessen Entfernung d_γ von der Probe, die Energieauflösung des Photonendetektors $\Delta\omega'$, die Entfernung d_e des Elektronendetektors von der Probe sowie die Koordinaten (x_i, y_j) der Elektronendetektorpixel und deren Größe $b_e \times h_e$. Das Probenmaterial und die Dicke der Probe werden als Eingabeparameter für die Vielfachstreuerechnung benötigt. Schließlich wird die theoretische eindimensionale Elektronenimpulsdichte sowohl der Valenz- als auch der Rumpfelektronen als Funktion des Elektronenimpulses eingelesen. Die Verwendung einer eindimensionalen Impulsdichte ist ausreichend, da lediglich polykristalline Proben gemessen wurden. Simulationen von $(\gamma, e\gamma)$ -Experimenten an Einkristallproben unter Verwendung dreidimensionaler Impulsdichten sind jedoch ohne weiteres möglich.

4.2 Monte-Carlo Simulation der experimentellen Verteilung

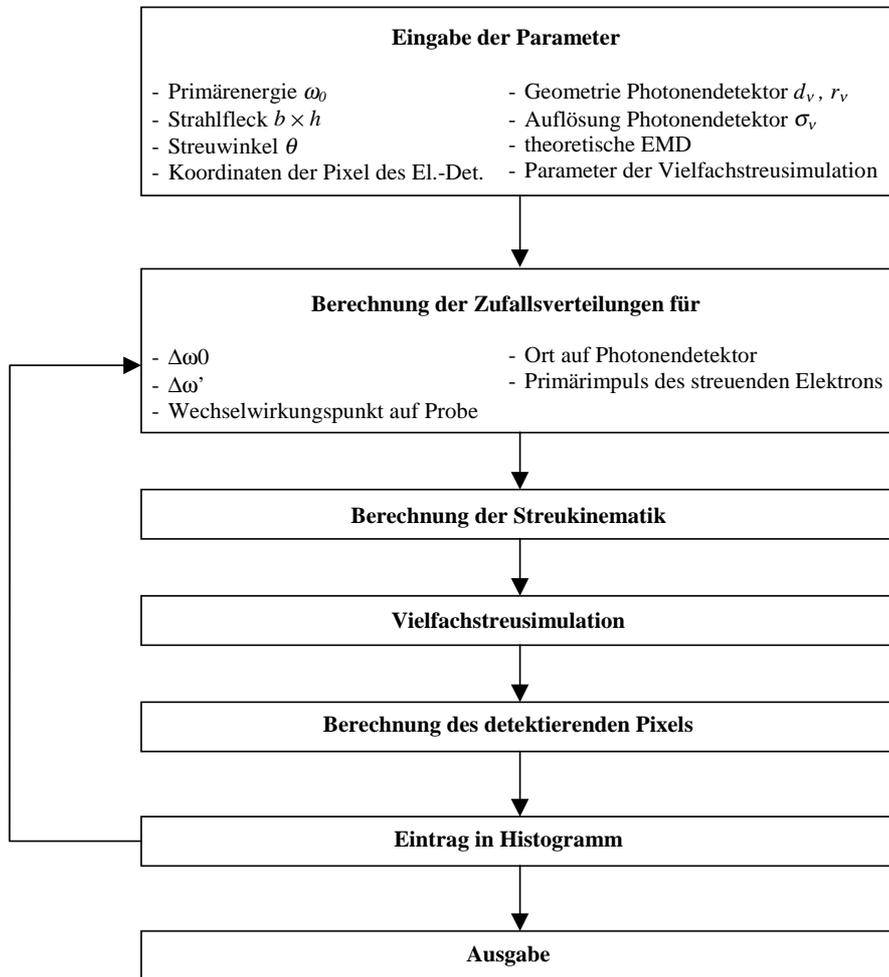


Abbildung 4.4: Ablaufdiagramm des Simulationsprogramms.

Nach Eingabe der benötigten Parameter werden individuelle Streuprozesse simuliert. Mit Hilfe des Zufallsgenerators werden die Eigenschaften der beteiligten Teilchen und die Geometrie des Prozesses innerhalb der vorgegebenen Abweichungen bestimmt. Zunächst werden ein Photon- und ein Elektron-Objekt erzeugt, für die ein Streuprozess simuliert werden soll. Dem Photon wird hierbei eine Energie zugeordnet, die zufällig aus einer Gaussverteilung ausgewählt wird, deren Standardabweichung der Energiebandbreite des Photonenstrahls entspricht. Für das Elektron wird mit einer Normalverteilung entsprechend der Verhältnisse im betrachteten Probensystem bestimmt, ob es sich um ein Valenz- oder ein Rumpfelektron handelt. Dann wird mit dem von-Neumann'schen Ablehnungsverfahren [63] aus der entsprechenden theoretischen Elektronenimpulsdichte der Impuls $\vec{p} = (p_x, p_y, p_z)$ des Elektrons bestimmt. Das Verfahren, Rumpf- und Valenz-Elektronen getrennt zu betrachten, erlaubt eine direkte Normierung des Verhältnisses der beiden Anteile und eine spätere getrennte Analyse der erzeugten Impulsverteilungen.

Als zweiter Schritt wird die Streuung dieser beiden Objekte aneinander simuliert. Auf einem Strahlfleck der betrachteten Größe ist der Photonenfluß nahezu gleichverteilt, und somit wird gleichverteilt ein Wechselwirkungspunkt auf der Probe bestimmt. Nun wird wiederum gleichverteilt auf der kreisförmigen Photonendetektoröffnung der Auftreffpunkt des Photons ausgewählt und aus diesen Parametern der Streuwinkel θ und die Streuebene bestimmt. Die Divergenz des Primärstrahls (siehe Tab. 3.1) und die Winkelabhängigkeit des Wirkungsquerschnitts ($\Delta\theta = 1^\circ$) sind hierbei vernachlässigbar. Mit diesen Werten und dem Impuls \vec{p} des streuenden Elektrons berechnet sich aus Gleichung (2.29) die Energie des gestreuten Photons ω' zu der $\Delta\omega'$ addiert wird; eine weitere Gaussverteilung mit einer Standardabweichung, die der Auflösung des Photonendetektors entspricht. Ebenfalls aus Gleichung (2.29) berechnen sich die Energie und die Emissionsrichtung des Rückstoßelektrons.

Das Elektron durchläuft nun die Monte-Carlo Simulation der Elektronenvielfachstreuung, wie sie in Abschnitt 4.1 und ausführlich in Referenz [16] beschrieben ist. Änderungen zu dem in Referenz [16] benutzten Monte-Carlo Code sind das Durchlaufen der Simulation mit unterschiedlichen Anfangsimpulsen und die Weiterverarbeitung der kompletten dreidimensionalen Information der Richtungsänderung des Elektrons. Zudem werden vielfachgestreute Elektronen markiert, so daß diese Ereignisse getrennt betrachtet werden können.

Schließlich wird aus der endgültigen Emissionsrichtung des Elektrons der getroffene Pixel ermittelt und diese Information zusammen mit der berechneten Energie des gestreuten Photons in mehrere Histogramme geschrieben, die zwischen Rumpf- und Valenz-Elektronen sowie zwischen Ereignissen mit und ohne Beteiligung vielfachgestreuter Elektronen unterscheiden. Dieses Vorgehen wird wiederholt, bis die gewünschte Anzahl von Iterationen durchlaufen ist.

4.3 Auflösungsfunktion

Die Berücksichtigung der experimentellen Auflösung beim Vergleich der theoretischen Impulsdichten mit den gemessenen Intensitätsverteilungen erfolgt im Rahmen der vollständigen Simulation des Experiments. Dennoch ist es notwendig, die exakte Auflösungsfunktion des $(\gamma, e\gamma)$ -Spektrometers zu kennen. Dies erlaubt Abschätzungen darüber, Effekte welcher Größenordnung meßbar sind und ermöglicht die Optimierung des Spektrometers entsprechend den experimentellen Anforderungen.

Die auflösungsbestimmenden Parameter eines $(\gamma, e\gamma)$ -Experiments sind die Höhe und Breite des Strahlflecks auf der Probe, die Energie und Bandbreite des primären Photonenstrahls, der Streuwinkel, die Winkel- und Energieauflösung des Photonendetektors sowie die Entfernung des Elektronendetektors vom Wechselwirkungspunkt. Die Auflösung des Systems ist zunächst unabhängig von der Größe der Pixel des Elektronendetektors, es muß jedoch zusätzlich dessen Granularität betrachtet werden.

Als Granularität werden die Abstände der Meßpunkte in den drei Dimensionen bezeichnet, welche in einem $(\gamma, e\gamma)$ -Experiment in p_z durch die Breite eines Bits der digitalisierten Energieinformation und in p_x und p_y durch die Breite und Höhe der Pixel

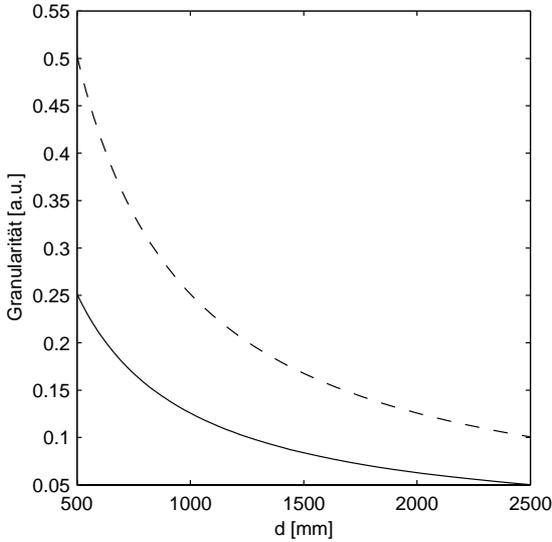


Abbildung 4.5: Granularität in p_x (durchgezogen) und p_y (gestrichelt) bei $p_z = 0$ in Abhängigkeit des Abstands des Elektronendetektors vom Wechselwirkungspunkt für Pixel mit einer Breite von 2 mm und einer Höhe von 4 mm bei einer Primärenergie von 150 keV und einem Streuwinkel von 140° .

des Elektronendetektors bestimmt werden. Die Breite eines Bits des ADC betrieben im 8K-Modus und einer geeigneten Verstärkereinstellung beträgt 24 eV und ist damit deutlich besser als die Energieauflösung von 178 eV bei $\omega'_0 = 100$ keV. Betrachtet man die Größe der Elektronendetektorpixel und damit die Granularität in p_x und p_y -Richtung, liegt die Situation deutlich anders. Abbildung 4.5 zeigt diese Granularität der p_x - und p_y -Komponente bei $p_z = 0$ in Abhängigkeit des Abstands des Elektronendetektors vom Wechselwirkungspunkt für Pixel mit einer Breite von 2 mm und einer Höhe von 4 mm bei einer Primärenergie von 150 keV und einem Streuwinkel von 140° . Die Granularität sollte kleiner oder gleich der Standardabweichung der Auflösungsfunktion sein und bestimmt daher eine untere Grenze der erreichbaren Auflösung. Bei der für die beschriebenen Messungen benutzten Geometrie und Primärenergie der Photonen ergibt sich eine Granularität in p_x - und p_y -Richtung von $g=(0,14, 0,28)$ a.u. Eine Variation der Granularität in diesen beiden Richtungen ist möglich durch eine Veränderung der Größe der Pixel (zum Beispiel durch den Einsatz einer Maske) oder der Entfernung des Detektors von der Probe.

Zur Bestimmung der Auflösungsfunktion wurde wiederum die in Abschnitt 4.2 beschriebene Monte-Carlo Simulation benutzt. Anstatt einer theoretischen Elektronenimpulsdichte wurde in diesem Fall jedoch die Intensitätsverteilung von Elektronen mit einem festen Impuls simuliert. Die erhaltene Intensitätsverteilung entspricht der Auflösungsfunktion für den entsprechenden Impuls. Die Ergebnisse der Simulation zeigten, daß die Änderung der Auflösungsfunktion als Funktion des Anfangsimpulses des Elektrons vernachlässigbar ist, so daß die folgenden Betrachtungen für ruhende Elektronen durchgeführt wurden.

Die Detektion zweier Teilchen mit unterschiedlichen Detektoren und die Berechnung des Primärimpulses des Elektrons in p_x - und p_y -Richtung vorwiegend aus der Emissionsrichtung des Rückstoßelektrons und in p_z -Richtung vorwiegend aus der Energie des gestreuten Photons führen dazu, daß die bestimmenden Parameter für die Auflösung der

4 Vergleich der theoretischen mit den experimentellen Impulsdichten

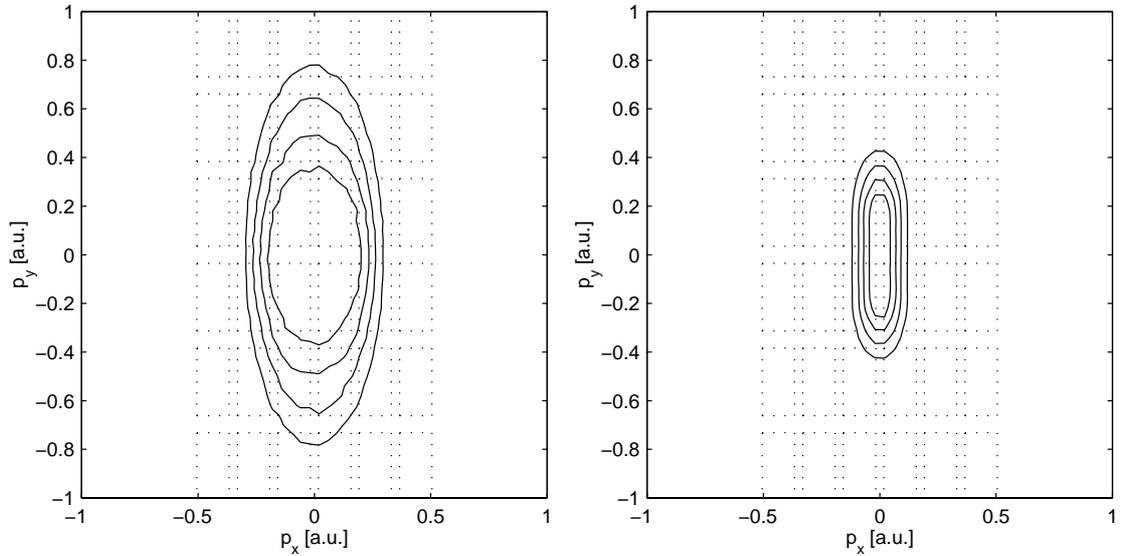


Abbildung 4.6: Strahlfleck auf dem Elektronendetektor für Streuung an ruhenden Elektronen. Auf der linken Seite ist der Strahlfleck mit der Geometrie der in dieser Arbeit beschriebenen Experimente mit einem Photonendetektor-Öffnungsradius von 3.5 mm dargestellt, auf der rechten Seite für eine Öffnung des Photonendetektors mit einem Radius von 1 mm. Die dargestellten Rechtecke entsprechen den zentralen Pixeln des Elektronendetektors. Die Konturlinien bezeichnen 80, 60, 40 und 20% des Maximums der Verteilungen.

verschiedenen Impulskomponenten nicht die Gleichen sind. Die Auflösung der p_x - und p_y -Komponenten ist in hohem Maße durch die Geometrie des Aufbaus gegeben, während die bestimmenden Faktoren für die Auflösung der p_z -Komponente die Energiebandbreite des Primärstrahls und die Energieauflösung des Photonendetektors sind.

Die Impulskomponente in y -Richtung bestimmt sich aus der Abweichung der Emissionsrichtung β_y des Rückstoßelektrons vom Streuvektor. Die größte Unsicherheit ist hierbei die Variation des Streuvektors, gegeben durch die Höhe des Strahlflecks auf der Probe und den Durchmesser der Öffnung des Photonendetektors. In x -Richtung entsteht neben der Unsicherheit durch die Variation des Streuvektors eine weitere Unsicherheit durch die p_z -Abhängigkeit der p_x -Komponente und damit durch die Energiebandbreite des Primärstrahls und die Energieauflösung des Photonendetektors. In der gegebenen Geometrie ist der geometrische Fehler jedoch der bestimmende.

Abbildung 4.6 zeigt auf der linken Seite den Strahlfleck der Elektronen auf dem Elektronendetektor für die in Tabelle 5.1 angegebene Geometrie, auf der rechten Seite für eine kleinere Öffnung des Photonendetektors mit einem Radius von 1 mm. Die ovale Form auf der linken Seite entsteht durch die Überlagerung der runden Photonendetektoröffnung und des rechteckigen Photonenstrahlflecks auf der Probe. Für die kleinere Photonendetektoröffnung dominiert die rechteckige Form des Primärstrahlflecks. Zum Vergleich sind die zentralen Pixel des Elektronendetektors dargestellt.

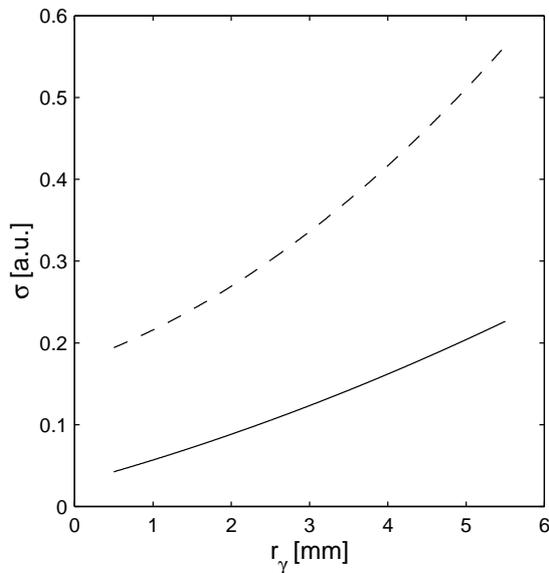


Abbildung 4.7: Auflösung σ für p_x (durchgezogen) und p_y (gestrichelt) als Funktion des Öffnungsradius des Photonendetektors bei unveränderter Geometrie und Primärenergie.

Die Auflösung in diesen beiden Richtungen läßt sich prinzipiell durch einen kleineren Photonenstrahlfleck, durch eine bessere Winkelauflösung des Photonendetektors oder durch eine bessere Winkelauflösung des Elektronendetektors im Rahmen der durch die Granularität gegebenen Grenzen verbessern. Dies führt jedoch zu einer Verringerung der Zählrate, und es muß ein geeigneter Kompromiß zwischen der benötigten Impulsauflösung und der benötigten statistischen Genauigkeit gesucht werden.

Die bestimmenden Faktoren für die Auflösung in p_z -Richtung sind die Energieauflösung des Photonendetektors und die Energiebandbreite des Primärstrahls. Ge-Photonendetektoren mit einer besseren Energieauflösung sind momentan kommerziell nicht erhältlich, so daß dadurch die Grenze der erreichbaren Auflösung der p_z -Komponente gegeben ist. Die Energiebandbreite des Primärstrahls sollte daher bei maximaler Intensität in der Größenordnung der Energieauflösung des Photonendetektors eingestellt werden.

Obige Betrachtung zeigt, daß eine Verbesserung der Auflösung in einer der drei Komponenten am einfachsten in der p_x -Komponente durch die Verkleinerung der Photonendetektoröffnung erreicht werden kann. Sobald deren Durchmesser der Breite des Strahlflecks auf der Probe entspricht, muß auch diese verringert werden. Abbildung 4.7 zeigt die Auflösungen der p_x - und p_y -Komponenten als Funktion des Radius der Photonendetektoröffnung.

Moderne Comptonspektrometer messen das Comptonprofil mit Auflösungen von etwa 0,1 a.u. (FWHM) [64]. Diese Auflösung kann man mit dem $(\gamma, e\gamma)$ -Spektrometer in der p_x -Komponente erreichen, indem man bei ansonsten gleichbleibender Geometrie den Radius der Photonendetektoröffnung auf 0,5 mm verkleinert. Dies verringert die Zählrate des Experiments um etwa einen Faktor 12. Zudem muß die Granularität ausreichend klein sein, was eine Entfernung des Photonendetektors von 2800 mm von der Probe erfordert.

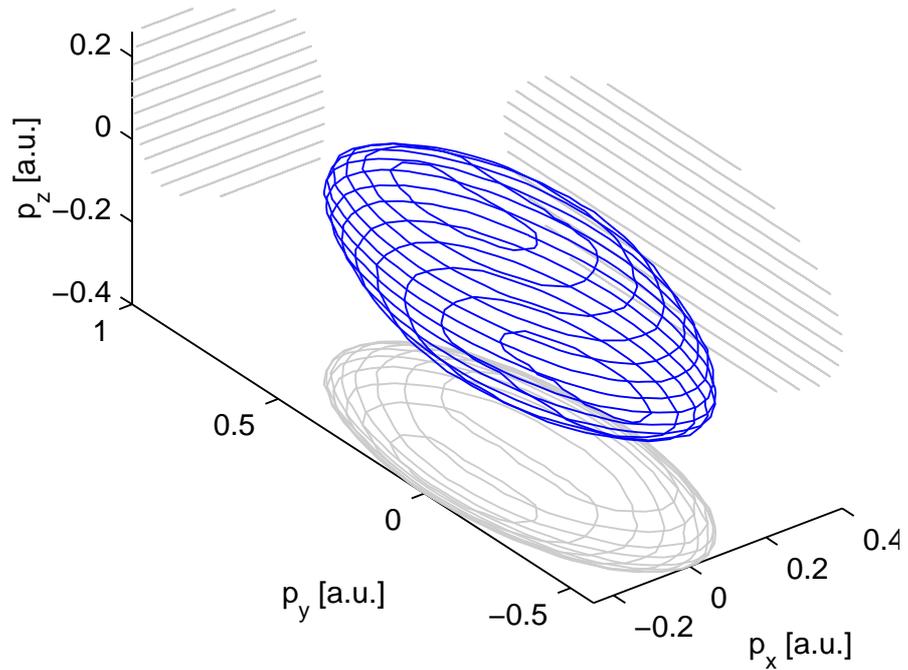


Abbildung 4.8: Das Auflösungselement der beschriebenen Messungen. Die dreidimensionalen Konturlinien entsprechen 50% des Maximalwertes der Verteilungen. Die grauen Linien stellen Projektionen des dreidimensionalen Auflösungselements dar.

Die Simulation ergab für die beschriebenen Messungen eine Standardabweichung von $\sigma=(0.14, 0.38, 0.19)$ a.u. in den drei Komponenten. Dem steht ein Granularitätsvektor von $g=(0.14, 0.28, 0.11)$ a.u. gegenüber. Die Bedingung einer Granularität kleiner oder gleich der Standardabweichung ist damit erfüllt.

Abbildung 4.8 zeigt das mit der MC-Simulation erhaltene Auflösungselement der beschriebenen Messungen. Die anisotrope Form des Auflösungselements ist deutlich zu erkennen.

5 Messungen und Resultate

Mit dem im Kapitel 3 beschriebenen experimentellen Aufbau wurden an der ESRF die dreidimensionale Elektronenimpulsdichte drei verschiedener Probensysteme gemessen. Aluminium wurde als Beispiel eines Metalls untersucht, das in guter Näherung als ein wechselwirkungsfreies Elektronengas beschrieben werden kann. Verbleibende Elektronenaustausch- und Korrelationseffekte führen jedoch dazu, daß ein Teil der Elektronenimpulsdichte aus der Fermikugel zu höheren Impulsen verschoben wird. Es soll überprüft werden, ob die Meßergebnisse einen Hinweis auf die Lam-Platzman Korrektur geben. Die Messungen werden zudem mit zwei "linear muffin-tin orbital"-Theorien (LMTO) verglichen, die unterschiedliche Näherungen zur Beschreibung der Einheitszelle benutzen.

Es wurden Messungen an einer Graphit- und einer Fullerene-Probe durchgeführt, deren Elektronenimpulsdichten sich aufgrund der unterschiedlichen Bindungen der Kohlenstoffatome unterscheiden. Die Graphitmessung wird mit einer Pseudopotential- und einer LMTO-Rechnung verglichen. Die Fullerenemessung wird auf die Übereinstimmung mit einer Molekularorbitalrechnung innerhalb der lokalen Dichtenäherung untersucht. Schließlich werden die Impulsdichten der beiden Kohlenstoffsysteme verglichen.

Als drittes Probensystem wurden die Elektronenimpulsdichten eines Kupfer-Nickel Schichtsystems und einer Kupfer-Nickel Legierung gemessen mit dem Ziel, den Einfluß der Legierungsbildung auf die Elektronenimpulsdichte zu messen. Die Ergebnisse dieser Experimente werden in diesem Kapitel vorgestellt und diskutiert.

5.1 Zusammenfassung der experimentellen Parameter

Zunächst sollen die wichtigsten Parameter des in Kapitel 3 beschriebenen experimentellen Aufbaus und der im folgenden beschriebenen Messungen zusammengefaßt werden.

Der Aufbau war bei allen Experimenten identisch, dennoch kam es zu kleinen Abweichungen der Primärenergie der Photonen ω_0 und deren Energiebandbreite $\Delta\omega_0$ sowie des Streuwinkels θ . Diese Veränderungen entstanden aufgrund leicht unterschiedlicher Positionen der Streukammer und des Photonendetektors relativ zum Photonenstrahl. Die exakte Bestimmung des Streuwinkels θ erfolgt mit der Kenntnis der Energieeichung aus der Bestimmung der Comptonenergie mit Formel (2.24). Das Zentrum des Elektronendetektors wurde im Winkel ϕ_0 (vergleiche Gleichung (2.25)) relativ zum Photonenstrahl fixiert.

Mit diesen Parametern wurde, wie in Kapitel 4 beschrieben, die Granularität und Auflösung des experimentellen Aufbaus berechnet. Es ergibt sich eine Granularität von $\vec{g}=(0.14, 0.28, 0.11)$ a.u. und eine Standardabweichung von $\vec{\sigma}=(0.14, 0.38, 0.19)$ a.u..

	Al	Graphit / Fullerene	Cu/Ni
Probendicke [nm]	104	13/85	22/22
Dicke der C-Substratfolie [nm]	-	-/13	36
Anteil vielfachgestreuter Ereignisse [%]	35.4	5.7/31.2	59.7
Monochromator	Si 220		
Primärenergie [keV]	148.4	148.4	146.0
Bandbreite (σ) [keV]	0.31		
Strahlfleck auf Probe [mm ²]	1.24 \times 4		
Streuwinkel	142.4 ⁰	142.3 ⁰	139.8 ⁰
Energieauflösung Ge-Detektor bei 100 keV (σ) [keV]	0.178		
Entfernung Probe — Ge-Det. [mm]	370		
Öffnung Ge-Det. (Radius) [mm]	3.5		
Entfernung Probe — El.-Det. [mm]	903		
Anzahl koinzidenter Ereignisse	$5.4 \cdot 10^5$	$2.5 \cdot 10^5 / 7.2 \cdot 10^5$	$1.4 \cdot 10^6$
Granularität [a.u.]	$\vec{g} = (0.14, 0.28, 0.11)$		
Auflösung σ [a.u.]	$\vec{\sigma} = (0.14, 0.38, 0.19)$		

Tabelle 5.1: Zusammenfassung der experimentellen Parameter der durchgeführten Messungen an Aluminium, Graphit, Kohlenstoff und Kupfer/Nickel Systemen.

5.2 Bearbeitung der Rohdaten und Normierung

In den folgenden Abschnitten sollen die Ergebnisse der Monte-Carlo Simulationen für die verschiedenen Probensysteme mit den entsprechenden Messungen verglichen werden. Hierzu muß von den Rohdaten zunächst der Anteil zufälliger Koinzidenzen abgezogen werden. Man erhält damit untergrundfreie Energiespektren, die in den Impulsraum transformiert und mit dem Proportionalitätsfaktor des Wirkungsquerschnitts zur Elektronenimpulsdichte korrigiert werden. Diese Korrekturen wurden in vorhergehenden Kapiteln bereits beschrieben und sollen hier noch einmal zusammengefaßt werden. Zuletzt wird die Methode vorgestellt, die benutzt wurde, um die gemessenen Verteilungen und die simulierten Verteilungen aufeinander zu normieren.

Abzug der zufälligen Koinzidenzen

In Abschnitt 3.4.3 wurde der Grund für das Zustandekommen zufälliger Koinzidenzen beschrieben, und es wurden sowohl eine Abschätzung als auch eine Messung des Anteils zufälliger Koinzidenzen an der Gesamtzählrate vorgestellt. Diese beiden Methoden berücksichtigen jedoch nicht die Energieverteilung des zufälligen Koinzidenzspektrums. Für den Abzug des Untergrunds zufälliger Koinzidenzen von den Rohdaten wurde eine Methode verwandt, die diese Form berücksichtigt und die es erlaubt, den Anteil zufälliger Koinzidenzen direkt aus den gemessenen Spektren zu bestimmen.

Da keinerlei Korrelation zwischen zwei zufällig koinzident nachgewiesenen Ereignis-

sen besteht, entspricht die Form des Untergrundspektrums zufälliger Koinzidenzen der Verteilung aller vom Photonendetektor registrierten Ereignisse und damit dem Spektrum einer nichtkoinzidenten Messung. Daher besteht die Korrektur der gemessenen koinzi-

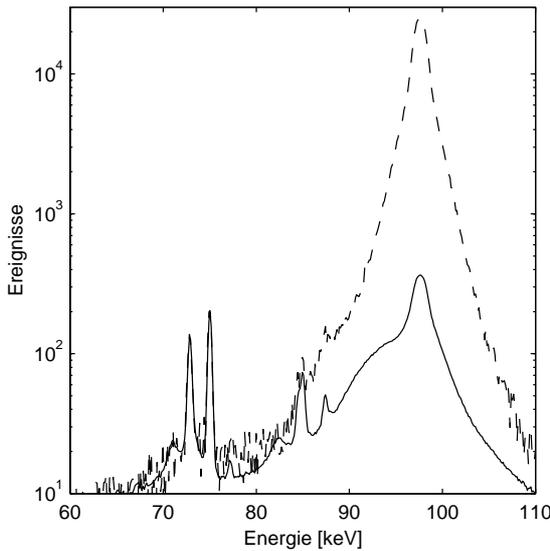


Abbildung 5.1: Anpassung der Blei-Fluoreszenzlinien des koinzidenten (gestrichelt) und des nichtkoinzidenten (durchgezogen) Comptonprofils zur Bestimmung des Anteils zufälliger Koinzidenzen.

denten Spektren im Abzug der mit dem Anteil der zufälligen Koinzidenzen normierten nichtkoinzidenten Spektren.

Eine experimentelle Bestimmung des Anteils zufälliger Koinzidenzen wird ermöglicht durch die Tatsache, daß in diesem Untergrundspektrum neben den Comptongestreuten Photonen, die zum Teil “echte” Koinzidenzen verursachen, auch Bleifluoreszenzlinien bei Energien von 72.8 keV und 74.97 keV gemessen werden. Da diese Fluoreszenzphotonen keinen in einem $(\gamma, e\gamma)$ -Experiment nachweisbaren koinzidenten Streupartner haben, können sie als Maß für den Anteil nichtkoinzidenter Ereignisse benutzt werden. Abbildung 5.1 zeigt eine solche Anpassung für Messungen an einer $28 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ ($\simeq 104$ nm) Al-Folie. Der so bestimmte Anteil zufälliger Koinzidenzen beträgt 2.5% der gemessenen koinzidenten Ereignisse und entspricht damit der in Abschnitt 3.4.3 gegebenen Abschätzung. Da die Verteilung aller entstehenden Rückstoßelektronen innerhalb des vom Elektronendetektor abgedeckten Raumwinkels gleichverteilt ist, ist die Anzahl zufälliger Koinzidenzen für die einzelnen Pixel des Elektronendetektors gleich. Das so normierte Untergrundspektrum wird mit den Raumwinkeln der einzelnen Detektormodule gewichtet und von den Rohdaten subtrahiert.

Wirkungsquerschnittskorrektur und Transformation in den Impulsraum

In einem $(\gamma, e\gamma)$ -Experiment wird der dreifach-differentielle Wirkungsquerschnitt der Comptonstreuung gemessen. Um zur Elektronenimpulsdichte zu gelangen, müssen die gewonnenen Spektren mit dem Proportionalitätsfaktor korrigiert werden, der die Elektronenimpulsdichte zum dreifach-differentiellen Wirkungsquerschnitt in Beziehung setzt. Diese Beziehung ist in Gleichung (2.18) angegeben.

Die Transformation der Energiespektren in Impulsspektren erfolgt mit den in Gleichung (2.29) angegebenen Transformationsformeln. Dies setzt die genaue Kenntnis der benötigten experimentellen Parameter voraus.

Normierung der Verteilungen

Die so korrigierten experimentellen Verteilungen entsprechen nun exakt den Ergebnissen der Monte-Carlo Simulation. Ein Vergleich verlangt eine zumindest relative Normierung dieser beiden Verteilungen. Theoretische Elektronenimpulsdichten sind gewöhnlich auf die Anzahl der Elektronen Z pro Atom der Probe normiert

$$\int \rho(\vec{p}) d^3\vec{p} = Z \quad , \quad (5.1)$$

wobei sich das Integral über den gesamten Impulsraum erstreckt. Bei einem $(\gamma, e\gamma)$ -Experiment beschränkt sich das Integrationsvolumen jedoch auf den Bereich $p_x = \pm 1.4$ a.u., $p_y = \pm 2.5$ a.u. und $p_z = \pm 6$ a.u.. Für p_x und p_y ist dieser Bereich gegeben durch die endliche Ausdehnung des Elektronendetektors und für p_z durch den Bereich innerhalb dessen eine ausreichende Zählrate vorhanden ist. Da die Anzahl der Elektronen in diesem Impulsbereich unbekannt ist, können die beiden Verteilungen lediglich auf eine gleiche zufällige Zahl normiert werden. Praktisch geschieht dies, indem die Simulationsergebnisse auf die integrale Zählrate der Messung normiert werden. Dieses Verfahren gewährleistet für alle in diesem Kapitel dargestellten Vergleiche die Bezugnahme auf die gesamte gemessene dreidimensionale Impulsdichte.

5.3 Aluminium

Aluminium ist ein Metall der dritten Hauptgruppe mit der Ordnungszahl 13. In Kristallen besitzt Aluminium eine kubisch flächenzentrierte (fcc) Struktur. Es ist ein Prototyp eines einfachen Metalls, dessen Valenzelektronenimpulsdichte stark der eines wechselwirkungsfreien Elektronengases ähnelt. Die Impulsverteilung zeigt in verschiedenen kristallographischen Richtungen eine Anisotropie von weniger als 2% [3], und der Informationsverlust durch die Messung polykristalliner Proben ist somit gering.

5.3.1 Herstellung und Charakterisierung der Proben

Die freistehenden Aluminiumfolien wurden durch Verdampfung im Targetlabor der Ludwig-Maximilians-Universität München hergestellt. Bei dieser Methode der Probenherstellung wird das pulverförmige Ausgangsmaterial in einem Graphittiegel unter Vakuum geheizt, bis das Material zu verdampfen beginnt. Der entstehende Teilchenstrom lagert sich auf mit Betain ($C_5H_{11}NO_2 \cdot H_2O$) beschichteten Mikroskopiegläsern ab. Indem man diese in destilliertes Wasser taucht, löst sich das Betain auf und die Aluminiumfolien schwimmen auf der Wasseroberfläche, von der sie mit Metallrahmen aus Aluminium oder Edelstahl abgehoben werden. Auf diesen Probenträgern haften die Folien durch

Adhäsion. Die Dauer des Verdampfens ergibt sich aus der gewünschten Dicke des Probenfilms.

Die gemessene Probe war eine freitragende polykristalline Aluminiumfolie mit einer Flächenbelegung von $28 \mu\text{g}/\text{cm}^2$. Dies entspricht bei einer mittleren Dichte von $2.70 \text{ g}/\text{cm}^3$ einer Dicke von 104 nm. Bei der Herstellung der Proben wird nur die Flächenbelegung gemessen, da Annahmen über die Dichte der Folien wegen der geringen Anzahl von Atomlagen schwierig sind. Der Anteil vielfachgestreuter Elektronen in den gemessenen Verteilungen liegt mit dieser Probe bei etwa 35% (vergleiche Tabelle 4.1). Die Ungenauigkeit der Dickenangabe wird von den Herstellern mit 5% angegeben.

Kommt Aluminium mit Sauerstoff in Kontakt, bildet sich augenblicklich eine Aluminiumoxidschicht (Al_2O_3) auf der Oberfläche. Die Dicke dieser Schicht wird in der Literatur mit 1.5 - 2 nm angegeben [65, 66, 67]. Dies entspricht $\sim 2\%$ der Gesamtdicke der gemessenen Folie und ist daher ein nicht zu vernachlässigender Effekt. Um eine genaue Kenntnis des Al_2O_3 -Anteils der gemessenen Probe zu erhalten, wurde quantitativ die Elementzusammensetzung mehrerer Al-Folien verschiedener Dicke mit der Methode der "elastic recoil detection analysis" (ERDA) am Münchener Schwerionenbeschleuniger untersucht [68].

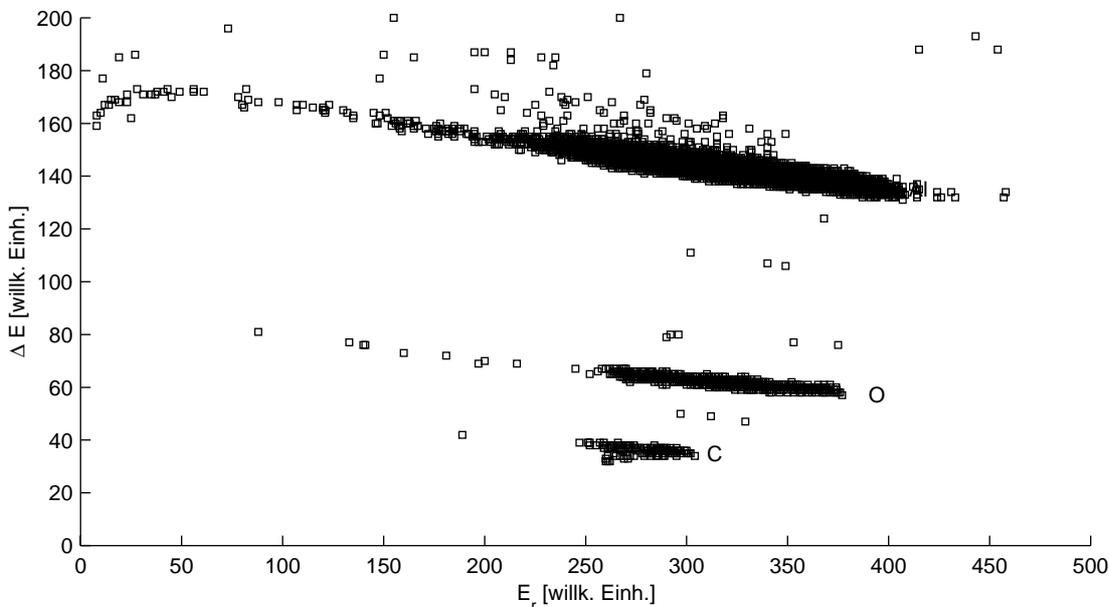


Abbildung 5.2: Zweidimensionales $\Delta E - E_r$ Spektrum der Messung an einer der Aluminium-Folien. Die verschiedenen Signale von Aluminium, Sauerstoff und Kohlenstoff sind deutlich voneinander getrennt.

Diese Methode besteht im Nachweis der Energie und der Kernladungszahl von Atomen, die durch hochenergetische Ionen aus der Probe herausgeschlagen werden. Der differentielle Wirkungsquerschnitt eines solchen Prozesses ist der differentielle Rutherford-

Wirkungsquerschnitt

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \left(\frac{Z_p Z_r}{2E_p} \right)^2 \left(1 + \frac{m_p}{m_r} \right)^2 \frac{1}{\cos^3 \theta} \quad (5.2)$$

mit Z_p , E_p und m_p der Kernladungszahl, Energie und Masse der Projektils, Z_r und m_r der Kernladungszahl und Masse des Rückstoßions und θ dem Streuwinkel. Für $m_p \gg m_r$ und $m_p \approx 2Z_p$ und bei einem konstant gehaltenen Verhältnis m_p/E_p ist der Wirkungsquerschnitt proportional zur Kernladungszahl des Projektils,

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} \propto Z_p^2 \quad . \quad (5.3)$$

Typische Projektils sind 210 MeV Jod-Ionen, 200 MeV Gold-Ionen oder 130 MeV Nickel-Ionen. Für die beschriebene Messung an den Aluminiumfolien wurde ein 210 MeV ^{127}I -Strahl benutzt. Die Detektion der Rückstoßionen erfolgt orts- und energieaufgelöst in einer Ionisationskammer. Diese detektiert sowohl den Energieverlust ΔE der Ionen beim Durchlaufen der Kammer als auch die Restenergie E_r . Für den bei ERDA-Messungen benutzten Energiebereich gilt für den Energieverlust ΔE die Bethe-Bloch-Formel, und ΔE ist proportional zu Z_r^2 , dem Quadrat der Kernladungszahl der Rückstoßionen. Abbildung 5.2 zeigt das zweidimensionale $\Delta E - E_r$ Spektrum der Messung an einer der Aluminium-Folien. Die verschiedenen Signale von Aluminium, Sauerstoff und Kohlenstoff sind deutlich voneinander getrennt.

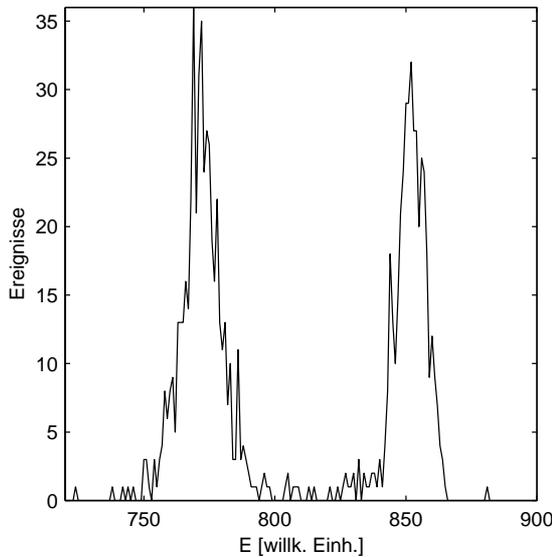


Abbildung 5.3: Intensität der Sauerstoff-Rückstoßionen als Funktion ihrer Energie E und damit ihres Entstehungsortes in der Probe. Die Signale von der Vorder- und Rückseite der Al-Folie sind deutlich getrennt.

Die genaue Kenntnis des Rutherford-Wirkungsquerschnitts erlaubt eine quantitative Analyse der Spektren und man erhält das relative Massenverhältnis der einzelnen Elemente in der Probe. Im Fall der Al-Folien läßt sich damit das Verhältnis von Sauerstoff zu Aluminium bestimmen. Die Messungen an der $28\mu\text{g}/\text{cm}^2$ ($\simeq 104\text{ nm}$) Al-Folie ergaben für der Annahme, daß der Sauerstoff vollständig zu Al_2O_3 gebunden ist, eine Oxidschicht von 2 nm [69] und entsprechen damit den in der Literatur genannten Werten.

Schließlich erlaubt die ERDA-Methode auch die Erstellung eines elementspezifischen Tiefenprofils der Probe. Aufgrund der Energie- und Impulserhaltung ist die Primärenergie der Rückstoßionen durch die Energie des Projektils und der Streugeometrie festgelegt. Abweichungen von dieser Primärenergie entstehen durch elektronischen Energieverlust des Rückstoßions beim Durchgang durch die Probe. Dieser Energieverlust ist wiederum durch die Bethe-Bloch-Formel gegeben. Die Energie E des Ions nach dem Austritt aus dem Probenmaterial bestimmt sich damit aus der Weglänge des Ions durch die Probe. Die erreichbare Tiefenauflösung beträgt hierbei 10 nm [68]. Abbildung 5.3 zeigt das gemessene Sauerstoff-Tiefenprofil einer Aluminiumfolie. Sauerstoff befindet sich lediglich auf den beiden Oberflächen der Aluminiumfolie. Dies bestätigt die erwartete Ausbildung von Oxidschichten auf den Probenoberflächen.

5.3.2 Theoretische Elektronenimpulsdichte von Aluminium

Zum Vergleich mit den Messungen standen zwei verschiedene Rechnungen der Elektronenimpulsdichte von Aluminium zur Verfügung. Die Impulsdichten wurden von A. S. Kheifets und D. R. Lun mit der “linear muffin-tin orbital” Methode (LMTO) mit zwei unterschiedlichen Näherungen des Potentials berechnet. Diese sind die “atomic sphere approximation” (ASA-LMTO) [70] und die “full potential” Näherung (FP-LMTO) [71].

Mit LMTO werden die Fourierkoeffizienten $A_{\vec{G},i}(\vec{k})$ aus Gleichung 2.6 berechnet, nachdem man das Vielteilchenproblem innerhalb der Dichtefunktionaltheorie in Einteilchenprobleme aufgespalten hat. Aufgrund der Kristallstruktur ist es ausreichend, die Bandstruktur für eine Einheitszelle des Kristalls mit geeigneten Randbedingungen zu berechnen, da sich das Potential innerhalb des Festkörpers periodisch fortsetzt. Die Einheitszelle ist aufgrund deren periodischer Anordnung nicht radialsymmetrisch sondern abhängig von der Kristallstruktur. Zur Vereinfachung konstruiert man dennoch ein radialsymmetrisches Problem, indem man die Einheitszelle durch “muffin-tin” Kugeln der einzelnen Atome ersetzt. Die Kristallstruktur wird hierbei durch die Randbedingungen berücksichtigt.

In der ASA-LMTO Methode werden diese Kugeln so gewählt, daß ihr Volumen dem Atomvolumen entspricht. Dadurch wird das gesamte Volumen der Einheitszelle ausgefüllt, wobei es auch Bereiche gibt, innerhalb derer sich die Kugeln überlappen. In der FP-LMTO Methode werden nichtüberlappende Kugeln konstruiert, und es bleiben Bereiche, die außerhalb der Volumina der Kugeln liegen. Das Potential wird innerhalb der “muffin-tin” Kugeln in sphärische Harmonische entwickelt und in die interstitiellen Bereiche fouriertransformiert. Die FP-LMTO Methode behandelt diese zwischenatomaren Bereiche genauer, ist jedoch auch rechenzeitintensiver. Mit beiden Methoden wird nun für die entsprechende Konstruktion ein selbstkonsistentes Potential bestimmt und die Wellenfunktionen berechnet. Die Elektronenimpulsdichte erhält man mit Gleichung (2.7) aus den fouriertransformierten Ortswellenfunktionen.

Abbildung 5.4 zeigt die Ergebnisse dieser beiden Rechnungen für die Valenzelektronen von Aluminium. Die oberen Graphen zeigen die Dispersionsrelationen der Bänder im reduzierten Zonenschema, die zu den unten gezeigten Impulsdichten beitragen. Die gestrichelten Linien zeigen das Ergebnis der ASA-LMTO, die durchgezogenen Linien

5 Messungen und Resultate

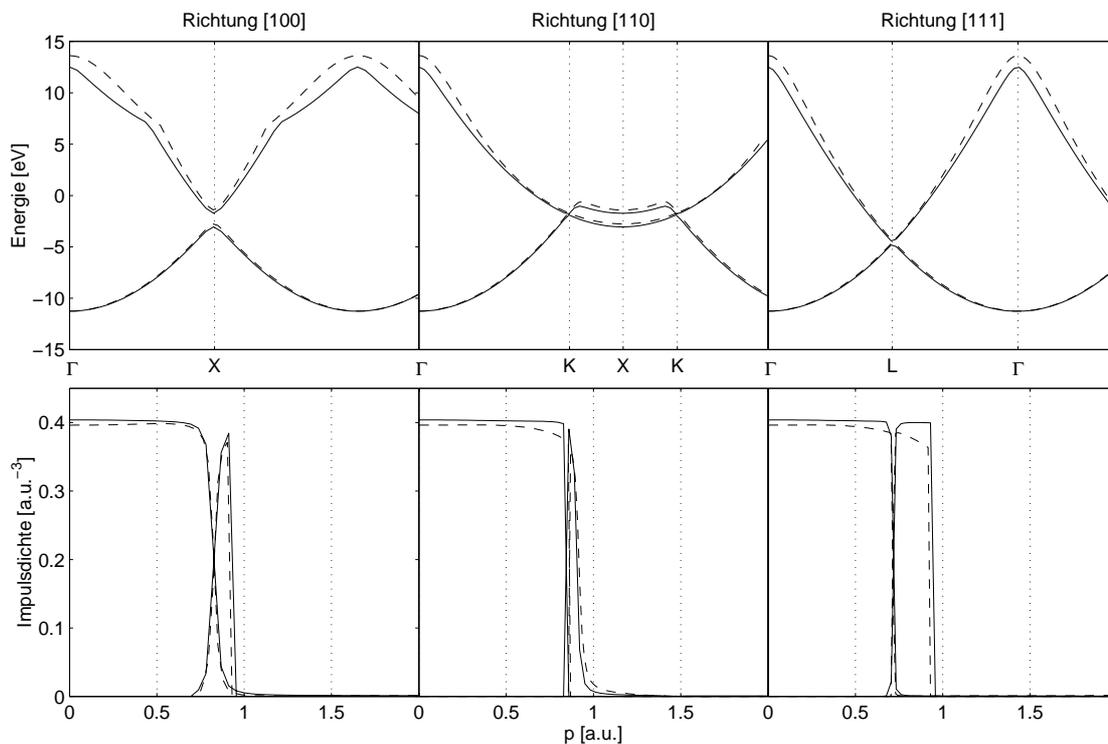


Abbildung 5.4: Die Dispersionsrelationen der Bänder und der zugehörigen Impulsdichten für Aluminium [72]. Die gestrichelten Linien zeigen das Ergebnis der ASA-LMTO, die durchgezogenen Linien das der FP-LMTO Rechnung.

das der FP-LMTO Rechnung. In beiden Darstellungen sind Unterschiede zwischen den Rechnungen zu erkennen und im folgenden Kapitel soll gezeigt werden, daß die Berechnung im Rahmen der FP-LMTO einen bessere Übereinstimmung mit den Meßdaten zeigt.

Da es sich bei der Probe um eine polykristalline Aluminiumfolie handelt, wurden die theoretischen Impulsdichten sphärisch gemittelt. Diese theoretischen Berechnungen bestimmen lediglich die Impulsdichten der drei Valenzelektronen von Aluminium und es muß der Anteil der verbleibenden 10 inneren Elektronen hinzugefügt werden. Dieser Anteil wird mit den atomaren Roothaan-Hartree-Fock Wellenfunktionen von Bunge et al. [73] berechnet und zu den Valenzelektronenimpulsdichten hinzuaddiert.

Schließlich wurde dem mit ERDA bestimmten Anteil von Al_2O_3 auf den Probenoberflächen (siehe Abschnitt 5.3.1) Rechnung getragen, indem ein entsprechender Anteil einer $\alpha - \text{Al}_2\text{O}_3$ -Impulsdichte zur Al-Impulsdichte addiert wurde. Die benutzte $\alpha - \text{Al}_2\text{O}_3$ -Impulsdichte ist eine ASA-LMTO Rechnung [74]. Das Austausch- und Korrelationspotential wurde hierbei durch die Parametrisierung von von Barth und Hedin [75] berücksichtigt. Abbildung 5.5 zeigt die sphärisch gemittelte FP-LMTO Elektronenimpulsdichte für Aluminium und die auf die gleiche Anzahl von Elektronen normierte Impulsdichte für $\alpha - \text{Al}_2\text{O}_3$. Die Impulsdichte von Al_2O_3 ist deutlich breiter und flacher als die Im-

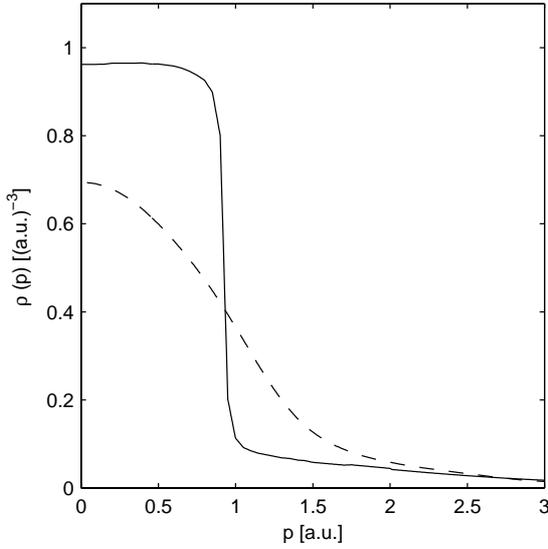


Abbildung 5.5: Die sphärisch gemittelten Elektronenimpulsdichten von Aluminium (durchgezogen) und Al_2O_3 (gestrichelt). Die beiden Impulsdichten sind auf die gleiche Anzahl von Elektronen normiert.

pulsdichte von Aluminium. Dies ist Ausdruck der Tatsache, daß Aluminium ein Leiter und Al_2O_3 ein Isolator ist.

Berechnung der Lam–Platzman Korrektur

Wie bereits in Kapitel 2.1 gezeigt, ist es notwendig, im Rahmen der DFT berechnete Elektronenimpulsdichten zu korrigieren. Ausgangspunkt für die Berechnung der Lam–Platzman Korrektur ist Gleichung (2.12). Es gilt einen Ausdruck für die Differenz $\Delta n = n^h(\vec{p}) - n^f(\vec{p})$ zu finden. Die Besetzungszahldichte $n^h(\vec{p})$ eines homogenen wechselwirkenden Elektronengases wurde mehrmals mit verschiedenen Methoden berechnet. Trotz Unterschieden in den Resultaten entsprechen sich die mit den verschiedenen Theorien berechneten Impulsdichten in drei wichtigen Punkten: $\rho(0) < 1$, eine starke Diskontinuität an der Fermikante p_F charakterisiert durch eine Renormalisierungskonstante $Z_{p_F} < 1$ und das von Yasuhara et al. [76] geforderte asymptotische $\left(\frac{p_F}{p}\right)^8$ Verhalten für große p . Die physikalische Erklärung des asymptotischen Verhaltens gibt Lundqvist [77]: Ein Einteilchen–Lochzustand koppelt an ein Plasmon und erzeugt dabei ein Quasiteilchen, welches Plasmaron genannt wird, mit einer Lebensdauererweiterung an der Fermikante. Hierdurch kommt es sowohl zu einer Verringerung der Diskontinuität an der Fermikante, als auch zu einem $\left(\frac{p_F}{p}\right)^8$ Verhalten für $p \rightarrow \infty$. Das spektrale Gewicht dieses Zustands ist direkt an die Renormalisierungskonstante Z_{p_F} gekoppelt und beschreibt somit die Verringerung der Diskontinuität an der Fermikante. Zudem führt ein $Z_{p_F} < 1$ dazu, daß ein Teil der Impulsdichte zu Impulsen oberhalb der Fermikante verschoben wird. Dieser Effekt wird kleiner mit größerer Ladungsdichte, was sich dadurch erklärt, daß die kinetische Energie mit dem Quadrat des inversen mittleren Abstands der Elektronen wächst, während die Coulomb–Wechselwirkung lediglich mit dem inversen mittleren Abstand wächst [78].

Abbildung 5.6 zeigt eine von Farid et al. [79] berechnete Impulsdichte eines wechsel-

wirkenden Elektronengases mit einer Dichte $r_s = 2.1$ a.u., was mit

$$\frac{4\pi}{3}r_s^3 = \frac{1}{n(\vec{r})} \quad (5.4)$$

der Dichte der Valenzelektronen von Aluminium entspricht. Die Renormalisierungskonstante Z_{p_F} hat ihre anschauliche Bedeutung in der Höhe des Sprunges der Diskontinuität an der Fermikante.

Die verschiedenen Berechnungen der Elektronenimpulsdichte eines wechselwirkenden Elektronengases unterscheiden sich unter anderem durch unterschiedliche Renormalisierungskonstanten. Daniel und Vosko [78] sowie Lundqvist [77] berechneten die Impulsverteilung eines wechselwirkenden Elektronengases innerhalb der ‘‘Random Phase Approximation’’ (RPA). Overhauser [80] betrachtet das Elektronengas als ein dielektrisches Medium und kombiniert in einem einfachen Modell Plasmon- und Einteilchen-Anregungen. Eine Berechnung mit der ‘‘Fermi Hypernetted-chain’’ (FHNC) Näherung veröffentlichte Lantto [81]. Farid et al. [79] interpoliert zwischen mehreren Berechnungen. Die aktuellste Berechnung wurde vom Holm und von Barth [82] durchgeführt, die in der GW-Näherung eine selbstkonsistente Greens-Funktion G benutzen, welche sie aus der Dyson-Gleichung erlangen. Abbildung 5.7 zeigt die Renormalisierungskonstante Z_{p_F} eines wechselwirkenden Elektronengases als Funktion des Wigner-Seitz Radius. Es sind die Ergebnisse der oben genannten Referenzen eingetragen. Die Ergebnisse unterscheiden sich über den gesamten r_s -Bereich signifikant (zum Vergleich: die Elektronendichte der Valenzelektronen von Aluminium entspricht einem $r_s = 2.1$ a.u., von Lithium einem $r_s = 3.3$ a.u. und Kalium einem $r_s = 4.9$ a.u. [20]).

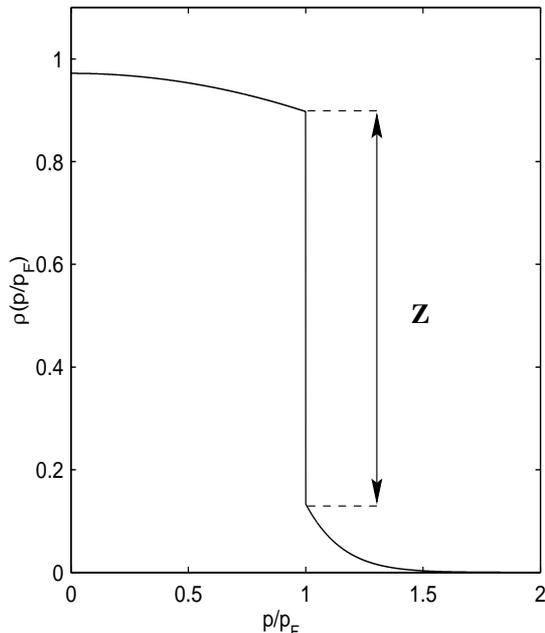


Abbildung 5.6: Impulsdichten eines wechselwirkenden Elektronengases mit einer Dichte $r_s = 2.1$ a.u., was der Dichte der Valenzelektronen von Aluminium entspricht.

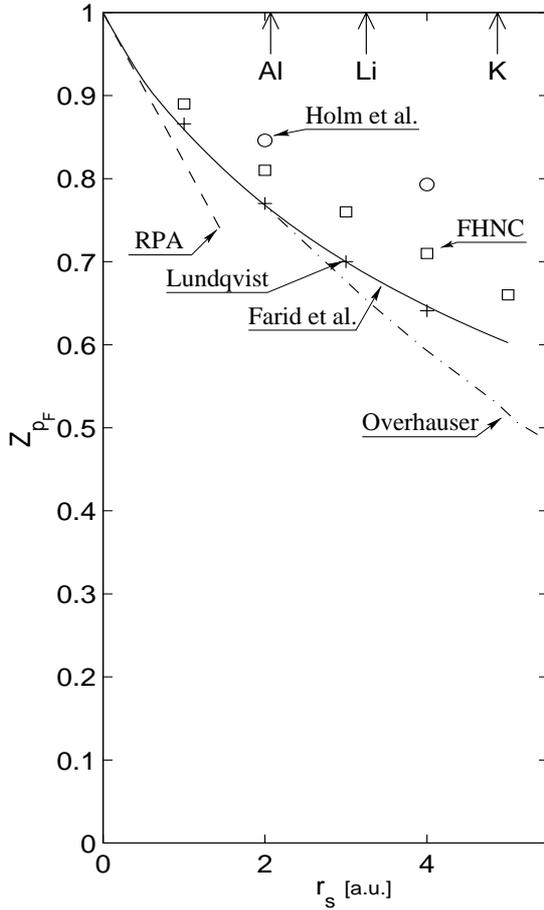


Abbildung 5.7: Renormalisierungskonstante Z_{p_F} eines wechselwirkenden Elektronengases als Funktion des Wigner-Seitz Radius. Gezeigt sind die Ergebnisse der Berechnungen von Daniel und Vosko (RPA) [78], Overhauser [80], Lantto (FHNC) [81], Farid et al. [79], Lundqvist [77] und Holm und von Barth [82]. Zum Vergleich sind die Elektronendichte der Valenzelektronen von Aluminium, Lithium und Kalium eingetragen.

Zur Berechnung des Integrals in Gleichung (2.12) wird eine analytische Form für Δn benutzt. Es werden im Folgenden zwei mögliche Parametrisierungen vorgestellt und miteinander verglichen, die beide die weiter oben genannten grundlegenden Eigenschaften der Besetzungszahldichte eines wechselwirkenden Elektronengases wiedergeben.

Eine Parametrisierung von Farid et al. [79] benutzt die vier Parameter μ_0 , μ_1 , ν_0 und ν_1 :

$$\Delta n = \begin{cases} \mu_0 - 1 + \mu_1 \left(\frac{p}{p_F}\right)^2 & \text{für } p \leq p_F \\ \nu_0 e^{\nu_1 (p/p_F)^2} + \frac{\zeta}{(p/p_F)^8} & \text{für } p \geq p_F \end{cases} \quad (5.5)$$

mit

$$\zeta = \frac{\omega_p^4 g(0)}{32 E_F^4} \quad (5.6)$$

$\omega_p = (3/r_s^3)^{1/2}$ ist die Plasmafrequenz, $g(0)$ die elektronische Paarkorrelations-Funktion $g(r)$ an der Stelle $r = |\vec{r} - \vec{r}'| = 0$ [83] und E_F die Fermienergie nichtwechselwirkender Elektronen. Die vier benutzten Parameter und damit auch der Fermiimpuls p_F und die Renormalisierungskonstante Z_{p_F} sind hierbei Funktionen des Wigner-Seitz Radius

5 Messungen und Resultate

r_s des Elektronengases. r_s wiederum ist eine Funktion der lokalen Dichte $n(\vec{r})$. Damit ist auch Δn eine Funktion von r_s und wird im Rahmen der LDA eine Funktion der Ladungsdichte $n(\vec{r})$. Bei Kenntnis der Ladungsdichte läßt sich das Integral in Gleichung (2.12) für diese berechnen.

Eine Parametrisierung mit der Renormalisierungskonstante Z_{p_F} als einzigem freien Parameter wurde von Schülke et al. [4] gegeben:

$$\Delta n = n^h(\vec{p}) - n^f(\vec{p}) = \begin{cases} -a - \frac{1}{2}(1 - a - Z_{p_F}) \left(\frac{p}{p_F}\right)^8 & \text{für } p \leq p_F \\ \frac{1}{2}(1 - a - Z_{p_F}) \left(\frac{p_F}{p}\right)^8 & \text{für } p \geq p_F \end{cases} \quad (5.7)$$

mit $a = 9(1 - Z_{p_F})/64$, gegeben durch die Normalisierungsbedingung

$$4\pi \int_0^\infty n^{h/f}(p) p^2 dp = (4\pi/3) p_F^3 \quad . \quad (5.8)$$

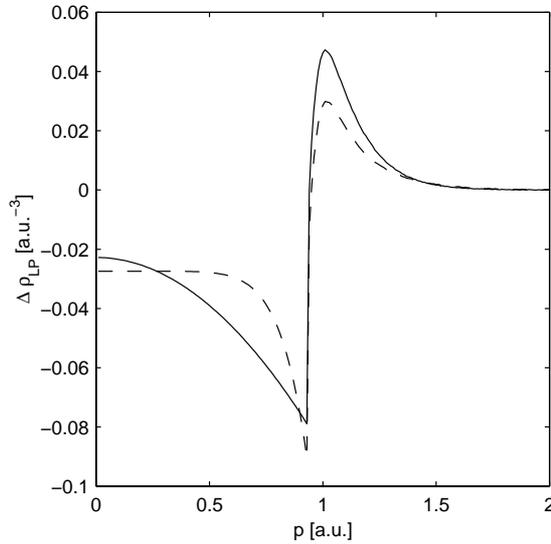


Abbildung 5.8: $\Delta\rho_{LP}$ nach Schülke (gestrichelt) und $\Delta\rho_{LP}$ (durchgezogen) nach Farid für Aluminium.

Abbildung 5.8 zeigt die Lam–Platzman Korrektur für Aluminium, berechnet mit den beiden beschriebenen Verfahren. Hierbei wurde die Muffin–Tin Ladungsdichte von Moruzzi et al. [84] benutzt. Die Parametrisierung von Schülke et al. erzeugt ein schärferes Minimum an der Fermikante, während das Maximum bei $p/p_F = 1.09$ niedriger ist als bei der Parametrisierung von Farid et al.

Zum Vergleich wurde auch der Anteil der Lam–Platzman Korrektur $\Delta\rho_{LP}^V$ berechnet, der durch die Valenzelektronen von Aluminium erzeugt wird. Die Valenzelektronen erzeugen eine konstante Ladungsdichte $\rho_V = 3/\Omega$, und Gleichung (2.12) vereinfacht sich damit zu

$$\Delta\rho_{LP}^V = \Delta n \Omega / (4\pi^3) \quad . \quad (5.9)$$

Benutzt man nun die Parametrisierung von Schülke et al., ergibt sich ein einfacher Zusammenhang zwischen $\Delta\rho_{LP}^V$ und der Renormalisierungskonstante Z_{p_F} . Abbildung 5.9

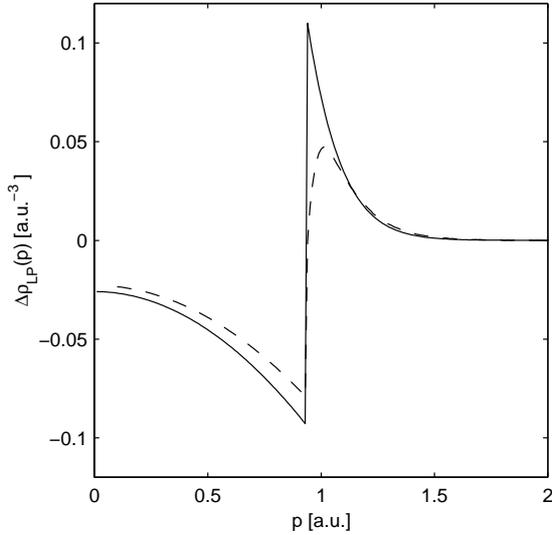


Abbildung 5.9: $\Delta\rho_{LP}^V$ (durchgezogen) und $\Delta\rho_{LP}$ (gestrichelt) für die Renormalisierungskonstante aus Referenz [79].

zeigt $\Delta\rho_{LP}$ und $\Delta\rho_{LP}^V$ berechnet mit der Parametrisierung von Schülke et al. Die benutzten Parameter für $\Delta\rho_{LP}^V$ sind $p_F = 0.93$ für den Fermiimpuls und $Z_{p_F} = 0.763$ für die Renormalisierungskonstante. Es ergibt sich ein Wigner-Seitz Radius von $r_s = 2.1$. Der benutzte Wert für Z_{p_F} entspricht der von Hedin [85] für $r_s = 2.1$ berechneten Renormalisierungskonstante. Hedin benutzt hierfür die G_0W_0 -Näherung des Eigenenergie-Operators. Der Vergleich zeigt, daß die Lam-Platzman Korrektur von den Valenzelektronen dominiert wird. Der Grund ist die höhere Ladungsdichte der Rumpfelektronen.

Králik et al. [86] vergleichen die Ergebnisse ihrer Rechnungen von Comptonprofilen von Silizium für verschiedene kristallographische Richtungen unter Benutzung einer “ab initio nonlocal pseudopotential variational quantum Monte Carlo” (VQMC) Technik mit einer DFT-LDA Rechnung des Comptonprofils. Innerhalb der VQMC-Rechnung wurden die Elektronenkorrelationseffekte innerhalb der Vielteilchenwellenfunktion über den Jastrow-Faktor berücksichtigt, während innerhalb der DFT-LDA Rechnung die Lam-Platzman Korrektur nicht berücksichtigt wurde. Die Differenz zwischen den beiden Rechnungen entspricht folglich dem Anteil der Lam-Platzman Korrektur an den Comptonprofilen für die verschiedenen Richtungen, wie sie die VQMC-Technik ergibt. Abbildung 5.10 zeigt die Differenzen der beiden Rechnungen für verschiedene kristallographische Richtungen. Ein Vergleich der isotropen Lam-Platzman Korrektur mit den Ergebnissen der VQMC-Rechnung für Silizium zeigt eine gute Übereinstimmung. Die Autoren dieser Veröffentlichung erwarten das gleiche Ergebnis für Systeme, deren Grundzustandseigenschaften innerhalb der LDA gut beschrieben werden, wie zum Beispiel einfache Metalle [86].

Der Korrekturterm wurde nun mit der vorgestellten Parametrisierung von Farid et al. [79] und der FP-LMTO Ladungsdichte berechnet. Die Renormalisierungskonstante Z_{p_F} ist hierbei eine Funktion der Ladungsdichte. In Abbildung 5.9 ist jedoch gezeigt, daß die so berechnete Lam-Platzman Korrektur in etwa der Lam-Platzman Korrektur eines wechselwirkenden Elektronengases mit einer Renormalisierungskonstante $Z_{p_F} = 0.76$

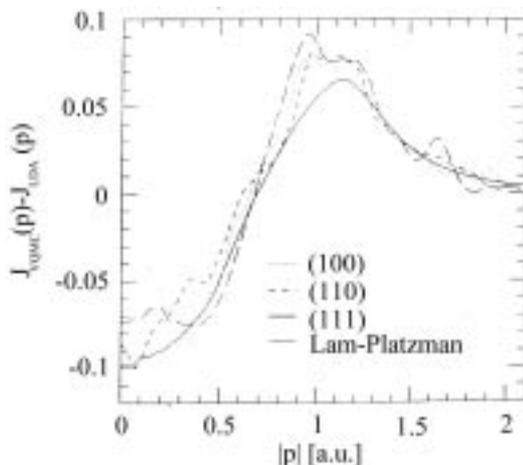


Abbildung 5.10: Vergleich der Differenz, der mit der VQMC-Technik berechneten Comptonprofile $J_{VQMC}(p)$ und den DFT-LDA Comptonprofilen $J_{LDA}(p)$ mit der Lam-Platzman Korrektur (aus Ref. [86]).

entspricht.

5.3.3 Resultate

Im Folgenden soll die gemessene Elektronenimpulsdichte mit den beiden theoretischen LMTO Impulsdichten, berechnet in der “atomic sphere” und der “full potential” Näherung, verglichen werden. Zudem soll überprüft werden, ob die Lam-Platzman Korrektur zu einer besseren Übereinstimmung mit der Messung führt und verbleibende Abweichungen diskutiert werden.

Die in diesem Kapitel beschriebenen Messungen wurden an einer $28 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ ($\simeq 104 \text{ nm}$) Al-Folie durchgeführt. Es wurden insgesamt $5.4 \cdot 10^5$ koinzidente Ereignisse aufgezeichnet. Die mittlere Zählrate bei einem durchschnittlichen Synchrotronstrom von 100 mA betrug 1.5 Hz.

Abbildung 5.11 zeigt ein Winkelkorrelationsprofil

$$I(p_x, p_y) = \int \rho(p_x, p_y, p_z) dp_z \quad (5.10)$$

der gemessenen Daten im Vergleich mit dem Ergebnis einer 2D-ACAR Messung [87] von Aluminium. Für die $(\gamma, e\gamma)$ -Messung wurde hierbei der aus der Monte-Carlo Simulation erhaltene Anteil von Elektronen abgezogen, die auf ihrem Weg zum Detektor gestreut wurden. Im Falle der 2D-ACAR Messung verschwindet die Intensität für Impulse oberhalb des Fermiimpulses $p_F = 0.93 \text{ a.u.}$ fast vollständig, während das Winkelkorrelationsprofil des $(\gamma, e\gamma)$ -Experiments bei diesen Impulsen noch Intensität zeigt. Der Hauptbeitrag an dieser Stelle kommt von den Rumpfelektronen. Der Grund für das Verschwinden der Intensität der 2D-ACAR Messung ist, daß die Aufenthaltswahrscheinlichkeit für Positronen in der Umgebung der Ionenrümpfe gering und die stark

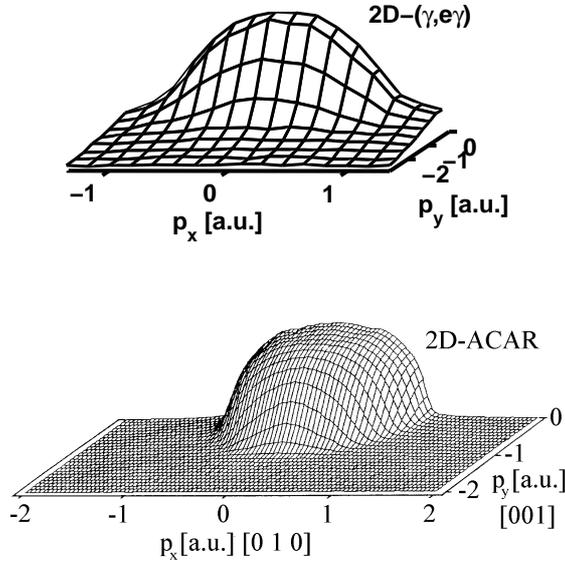


Abbildung 5.11: Zweidimensionale Winkelkorrelationsprofile des $(\gamma, e\gamma)$ Experiments und einer 2D-ACAR Messung [87] von Aluminium.

gebundenen Rumpfelektronen, welche an diesen Ionenrümpfen lokalisiert sind, für Positronen nicht meßbar sind. Diese Abbildung demonstriert deutlich die Tatsache, daß der Wirkungsquerschnitt eines Positronenannihilationsexperiments nicht proportional zur Elektronenimpulsdichte ist, sondern zur Elektronenimpulsdichte gewichtet mit der Aufenthaltswahrscheinlichkeit der Positronen in der Probe (siehe Abschnitt 2.4).

Um über den gesamten dreidimensionalen Impulsbereich einen Eindruck über die Güte der Übereinstimmung der Messung mit der Theorie zu bekommen, sind in Abbildung 5.12 die Impulsdichten gemessen mit den Pixeln des linken unteren Quadranten des Elektronendetektors im Vergleich zu den entsprechenden theoretischen Impulsdichten der FP-LMTO Rechnung mit Lam-Platzman Korrektur dargestellt. Auch für große $|\vec{p}|$ zeigt der Vergleich eine gute Übereinstimmung der Theorie mit dem Experiment. Die gleichmäßig gute Übereinstimmung in den drei Impulskoordinaten ist eine Bestätigung für die korrekte Einbeziehung der experimentellen Auflösung innerhalb der Monte-Carlo Simulation, da die anisotrope Auflösungsfunktion richtig reproduziert wird.

Eine quantitative Messung der Übereinstimmung der experimentellen Verteilungen mit der Theorie gewinnt man durch die Bildung der χ_L^2 -Likelihood-Verteilung

$$\chi_L^2 = (2/n) \sum_{i=1}^n (y_i - x_i + x_i \ln(x_i/y_i)) \quad , \quad (5.11)$$

wobei x_i die experimentellen und y_i die theoretischen Werte des Meßpunktes i sind.

Abbildung 5.13 zeigt einen Vergleich der experimentell gemessenen Elektronenimpulsdichte an der Stelle $\vec{p} = (0, 0, p_z)$ mit der theoretischen ASA-LMTO Impulsdichte, der FP-LMTO Impulsdichte ohne Lam-Platzman Korrektur und der FP-LMTO Impulsdichte mit Lam-Platzman Korrektur. Eine kontinuierliche Verbesserung der Über-



68

Abbildung 5.12: Darstellung der Impulsdichten gemessen mit den Pixeln des linken unteren Quadranten des Elektronendetektors (Punkte mit Fehlerbalken) im Vergleich zu den entsprechenden theoretischen Impulsdichten der FP-LMTO Rechnung mit Lam-Platzman Korrektur (durchgezogen).

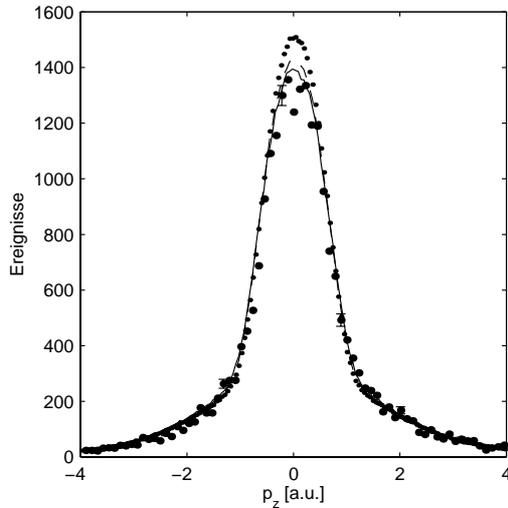


Abbildung 5.13: Die experimentelle Elektronenimpulsdichte $\rho(0, 0, p_z)$ (Punkte) verglichen mit der theoretischen ASA-LMTO Impulsdichte (gepunktet), der FP-LMTO Impulsdichte ohne Lam-Platzman Korrektur (gestrichelt) und der FP-LMTO Impulsdichte mit Lam-Platzman Korrektur (durchgezogen). Es ergeben sich $\chi_L = 3.5$ für die Lam-Platzman korrigierte FP-LMTO Impulsdichte, $\chi_L = 3.9$ für die nicht Lam-Platzman korrigierte FP-LMTO Impulsdichte und $\chi_L = 4.5$ für die nicht Lam-Platzman korrigierte ASA-LMTO Impulsdichte.

einstimmung der theoretischen Impulsdichten mit der Messung ist zu erkennen. Dies drückt sich aus in einem $\chi_L = 3.5$ für die Lam-Platzman korrigierte FP-LMTO Impulsdichte, $\chi_L = 3.9$ für die nicht Lam-Platzman korrigierte FP-LMTO Impulsdichte und $\chi_L = 4.5$ für die nicht Lam-Platzman korrigierte ASA-LMTO Impulsdichte. Der herausragende Unterschied zwischen den theoretischen Impulsdichten findet sich an der Stelle $p_z = 0$ a.u. und hat seinen Grund in dem Transfer von Elektronen von der Fermikugel nach außen, der sowohl bei dem Übergang von der ASA-Näherung zur FP-Näherung, als auch bei der Anwendung der Lam-Platzman Korrektur stattfindet. Dies bestätigt sich bei der Betrachtung der Elektronenimpulsdichte außerhalb der Fermikugel. Abbildung

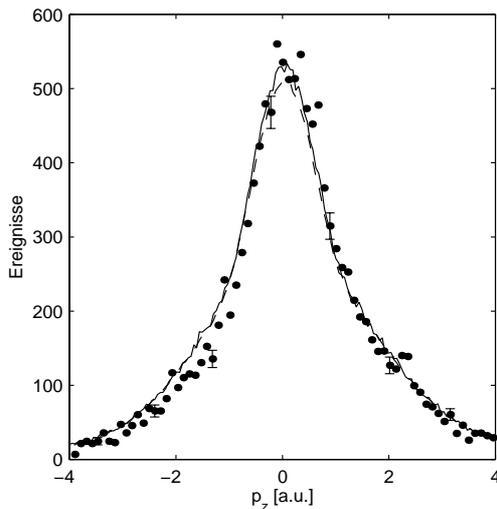


Abbildung 5.14: Die experimentelle Elektronenimpulsdichte $\rho(1.1 a.u., 0, p_z)$ (Punkte) verglichen mit der theoretischen der FP-LMTO Impulsdichte ohne Lam-Platzman Korrektur (gestrichelt) und der FP-LMTO Impulsdichte mit Lam-Platzman Korrektur (durchgezogen). Es ergeben sich $\chi_L = 5.8$ für die Lam-Platzman korrigierte FP-LMTO Impulsdichte und $\chi_L = 6.6$ für die nicht Lam-Platzman korrigierte FP-LMTO Impulsdichte.

5.14 zeigt einen Vergleich der experimentell gemessenen Elektronenimpulsdichte an der Stelle $\vec{p} = (1.1 a.u., 0, p_z)$, das heißt außerhalb der Fermikugel, mit der theoretischen FP-LMTO Impulsdichte ohne Lam-Platzman Korrektur und der FP-LMTO Impulsdichte

mit Lam-Platzman Korrektur. Auf die Darstellung der ASA-LMTO Impulsdichte wurde in diesem Fall verzichtet, da sie optisch nicht von der FP-LMTO Impulsdichte ohne Lam-Platzman Korrektur zu unterscheiden ist. An der Stelle $p_z = 0$ a.u. erzeugen die durch die Lam-Platzman Korrektur zu größeren Impulsen verschobenen Elektronen eine höhere Intensität, als die nichtkorrigierte Impulsdichte. Die experimentellen Daten bestätigen dies. Es ergeben sich $\chi_L = 5.8$ für die Lam-Platzman korrigierte FP-LMTO Impulsdichte und $\chi_L = 6.6$ für die nicht Lam-Platzman korrigierte FP-LMTO Impulsdichte. Ein Vergleich von Abbildung 5.13 mit Abbildung 5.14 läßt zudem den Unterschied in der Form der Impulsdichten innerhalb und außerhalb der Fermikugel erkennen. Während innerhalb der Fermikugel an den Stellen $p_z = \pm 0.93$ a.u. ein Knick in der Intensität aufgrund der Fermikante zu erkennen ist, zeigt die Impulsdichte außerhalb der Fermikugel einen kontinuierlichen Intensitätsabfall.

Eine weitere Möglichkeit des Vergleichs der theoretischen mit den experimentellen Impulsdichten ist die Berechnung des koinzidenten Comptonprofils

$$J_{coinc}(p_z) = \int_{p_x=-1.3a.u.}^{1.3a.u.} \int_{p_x=-2.4a.u.}^{2.4a.u.} \rho(\vec{p}) dp_x dp_y \quad . \quad (5.12)$$

Das Integral erstreckt sich hierbei über die in den Impulsraum transformierte Fläche des Elektronendetektors. Dadurch enthält es im Vergleich zu einem Comptonprofil, dessen Integration sich über die gesamte Ebene senkrecht zum Streuvektor erstreckt, einen geringeren Anteil an Rumpfelektronen. Experimentell unterscheidet es sich zudem durch die Tatsache, daß das koinzidente Comptonprofil aufgrund der Koinzidenzbedingung untergrundfrei ist.

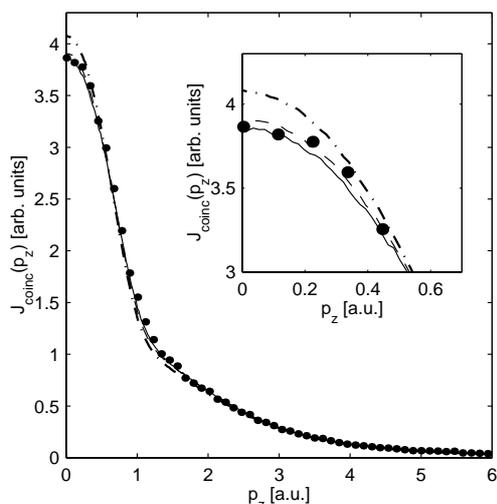


Abbildung 5.15: Das experimentelle koinzidente Comptonprofil J_{coinc} im Vergleich zu den entsprechenden Profilen der ASA-LMTO Rechnung (gestrichpunktet), der FP-LMTO Rechnung (gestrichelt) und der FP-LMTO Rechnung mit der Lam-Platzman Korrektur (durchgezogen). Der eingefügte Graph zeigt das koinzidente Comptonprofil bei kleinen Impulsen.

Abbildung 5.15 zeigt das experimentelle koinzidente Comptonprofil im Vergleich zu den entsprechenden Profilen der ASA-LMTO Rechnung (gestrichpunktet), der FP-LMTO Rechnung (gestrichelt) und der FP-LMTO Rechnung mit der Lam-Platzman Korrektur (durchgezogen). Es ergibt sich wiederum eine kontinuierliche Verbesserung

der Übereinstimmung zwischen Experiment und Theorie. Die ASA-LMTO Rechnung unterscheidet sich hierbei sowohl an der Stelle $p = 0$ a.u. als auch in dem Bereich um die Fermikante, wo sie eine stärkere Diskontinuität zeigt. Der Unterschied der Übereinstim-

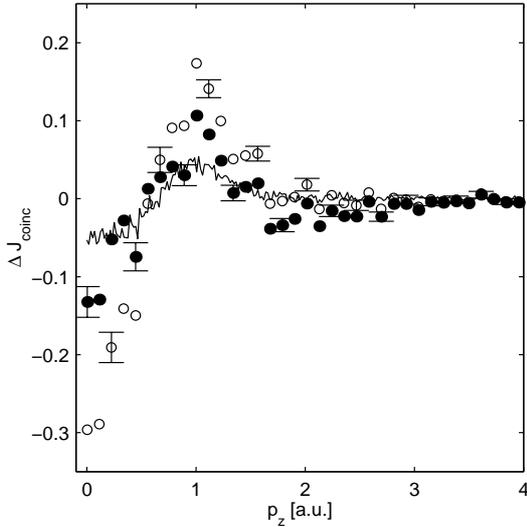


Abbildung 5.16: Die relativen Differenzen ΔJ_{coinc} zwischen Experiment und Theorie. Offene Kreise entsprechen der ASA-LMTO Rechnung, Punkte der FP-LMTO Rechnung und die durchgezogene Linie der Lam-Platzman Korrektur.

mung zwischen der Lam-Platzman korrigierten und der nichtkorrigierten FP-LMTO Rechnung wird deutlicher durch die Bildung der relativen Differenzen ΔJ_{coinc} zwischen dem Experiment und der Theorie. Abbildung 5.16 zeigt diese Differenz. Offene Kreise entsprechen der ASA-LMTO Rechnung, Punkte der FP-LMTO Rechnung und die durchgezogene Linie der Lam-Platzman Korrektur. Es ist klar ersichtlich, daß die Lam-Platzman Korrektur eine Verbesserung der Übereinstimmung zwischen dem Experiment und der Theorie bewirkt, es jedoch noch deutliche Abweichungen gibt.

Die Kenntnis der vollständigen dreidimensionalen Impulsdichte erlaubt grundsätzlich die Bestimmung der Fermifläche, welche ein Schnitt durch die Impulsdichte an der Stelle des Fermiimpulses ist. Um die Fermifläche aus den Ergebnissen eines $(\gamma, e\gamma)$ -Experiments näherungsweise zu bestimmen, ist es notwendig ein Maß für deren Position im Impulsraum zu finden. Ein mögliches Maß ist die Position der Extremwerte des Gradienten der Impulsdichte. Bei einem entsprechenden Versuch der Bestimmung der Fermifläche aus einer ACAR-Messung zeigte sich, daß die erwartete Position der Fermikante bedingt durch die experimentelle Auflösung nicht am Extremwert sondern sich an der Stelle befindet, an der der Betrag der ersten Ableitung etwa 80% des Extremwertes erreicht hat [88]. Es soll an dieser Stelle noch einmal betont werden, daß die Meßgröße einer ACAR-Messung nicht die Elektronenimpulsdichte ist und eine Verfälschung der Position der Fermikante zum Beispiel durch die Unterdrückung der Rumpfelektronen entstehen könnte.

Abbildung 5.17 zeigt den Betrag des Gradienten der Impulsdichte in p_x - und p_y -Ebenen für verschiedene p_z -Werte innerhalb und außerhalb der Fermikugel. Dargestellt sind diese Schnitte in der linken Spalte für die experimentelle Impulsdichte, in der mittleren Spalte für die die Ergebnisse der Monte-Carlo Simulation der FP-LMTO Impulsdichte und in der rechten Spalte für eine Kugel, deren Radius dem Fermiimpuls $p_F = 0.93$

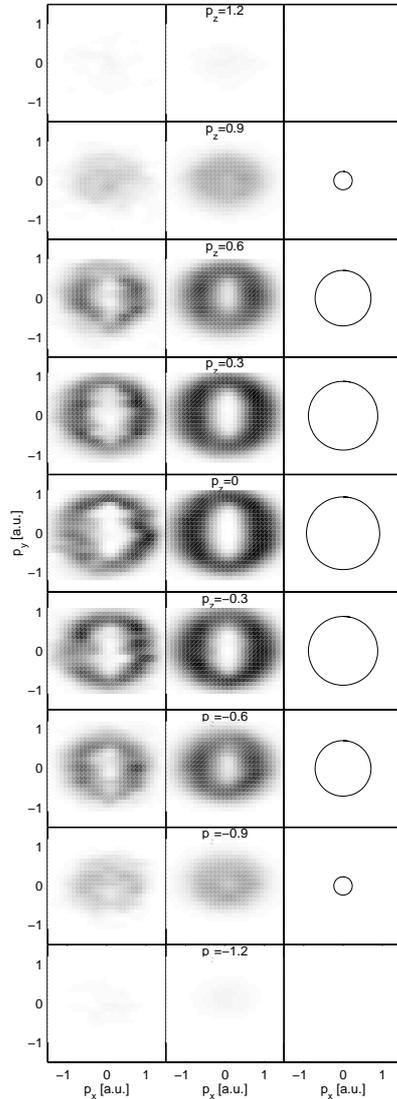


Abbildung 5.17: Die linke Spalte zeigt den Betrag des Gradienten der experimentellen Impulsdichte in p_x - und p_y -Ebenen für verschiedene p_z -Werte innerhalb und außerhalb der Fermikugel. Die mittlere Spalte zeigt die entsprechenden Schnitte der theoretischen FP-LMTO Impulsdichte mit Lam-Platzman Korrektur und die rechte Spalte Schnitte durch eine Kugel mit einem Radius, der dem Fermiimpuls $p_F = 0.93$ a.u. entspricht. Die entsprechenden p_z -Werte sind in der mittleren Spalte eingetragen.

a.u. entspricht. Solange die Schnitte durch die Fermikugel gehen, ist sowohl für die experimentelle Impulsdichte als auch für die theoretische Impulsdichte deutlich ein Kreis zu erkennen, dessen Durchmesser sich in Abhängigkeit von p_z ändert. Außerhalb der Fermikugel verschwinden diese Kreise.

5.3.4 Zusammenfassung

Die dreidimensionale Impulsdichte einer polykristallinen Aluminiumprobe wurde gemessen und mit verschiedenen theoretischen Impulsdichten verglichen. Ein Vergleich zweier LMTO Rechnungen innerhalb der “atomic sphere” sowie der “full potential” Näherung bestätigt die erwartete Überlegenheit der letzteren aufgrund der besseren Behandlung von entstehenden Zwischenbereichen bei der rotationssymmetrischen Beschreibung der

Einheitszelle. Eine weitere Verbesserung der Übereinstimmung konnte durch Einbeziehung der Lam-Platzman Korrektur erreicht werden. Für diese Korrektur wurde eine Renormalisierungskonstante von $Z_{pF} = 0.76$ benutzt, welche der eines wechselwirkenden Elektronengases mit $r_s = 2.1$ entspricht. Trotz guter Übereinstimmung zwischen der Lam-Platzman korrigierten FP-LMTO Rechnung und der Messung verbleiben Differenzen, die auf eine kleinere Renormalisierungskonstante oder einen anderen, unbeachteten Effekt hindeuten. Aus Abbildung 5.7 ist zu ersehen, daß die gewählte Renormalisierungskonstante bereits die kleinste ist, die aktuelle Rechnungen eines wechselwirkenden Elektronengases ergeben.

Frühere Messungen der Comptonprofile von Aluminium durch Cardwell und Cooper [89, 90] wurden ebenfalls auf den Einfluß von Elektronenkorrelationseffekten auf die Elektronenimpulsdichte untersucht und eine Verbesserung der Übereinstimmung zwischen Theorie und Experiment durch Einbeziehung der Lam-Platzman Korrektur wurde beobachtet.

Es wurde die Möglichkeit aufgezeigt die dreidimensionale Form der Fermikugel mit $(\gamma, e\gamma)$ -Spektroskopie zu messen. Die Auflösung und die statistische Genauigkeit des Experiments ist jedoch zu gering, um quantitative Aussagen zu treffen.

5.4 Graphit und Fullerene

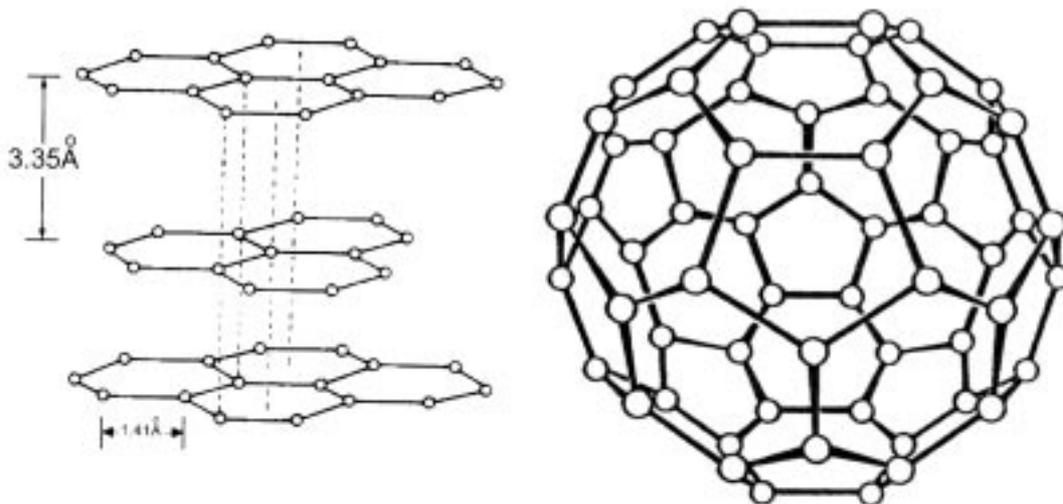


Abbildung 5.18: Graphit und ein C_{60} -Fulleren: auf der linken Seite die Anordnung der Kohlenstoffatome in einem Graphitkristall, auf der rechten Seite in einem C_{60} Molekül.

Kohlenstoff ist ein Element der 4. Hauptgruppe mit der Kernladungszahl 6 und einer atomaren Elektronenkonfiguration $[1s^2 2s^2 2p^2]$. Fester Kohlenstoff existiert in 4 verschiedenen Formen: Graphit, Diamant, amorph und Fullerite.

Die unterschiedlichen Kristallstrukturen von Diamant und Graphit führen zu unterschiedlichen molekularen Bindungen. Im Fall von Diamant bilden die vier Valenzelektronen gleichwertige Bindungen (sp^3 -Hybridisierung), so daß jedes Atom im Zentrum eines Tetraeders sitzt. Die Graphitstruktur entsteht durch lediglich drei gleichwertige Valenzelektronen, die eine sp^2 -Hybridisierung ausbilden. Dies führt zu einer ebenen Bindung, in der jeweils sechs Kohlenstoffatome ein Hexagon bilden. Das vierte Valenzelektron ist delokalisiert und bildet eine van der Waals Bindung senkrecht zu den Ebenen.

Mitte der 80er Jahre wurden erstmals Fullereene, außergewöhnlich stabile Cluster, bestehend aus 60 Kohlenstoffatomen, durch Laserverdampfung hergestellt [91]. Ihre Stabilität erlangen diese Cluster durch ihre kugelförmige Struktur, die sich wie ein Fußball aus 12 fünfeckigen und 20 sechseckigen Ringen zusammensetzt (siehe Abb. 5.18). Damit ist jedes Kohlenstoffatom an drei weitere Kohlenstoffatome gebunden. Fullereene ähneln in stärkerem Maße der Graphitstruktur als der Diamantstruktur, bei der jedes Kohlenstoffatom an vier Nachbaratome gebunden ist. Auch die zwischenatomaren Bindungslängen von Fullerenen liegen mit 1.391 Å und 1.455 Å [92] deutlich näher an der Bindungslänge von 1.421 Å von Graphit als an den 1.54 Å von Diamant. Krätschmer et al. [93] gelang die Herstellung makroskopischer Mengen von Fullerenen und die Erzeugung von Fullerenkristallen (Fullerit). Abbildung 5.18 zeigt auf der linken Seite die Anordnung der Kohlenstoffatome in einem Graphitkristall, auf der rechten Seite in einem C_{60} Molekül.

Es werden im folgenden Messungen diskutiert, die an Graphitfolien und an auf Graphitfolien aufgedampften C_{60} -Fullerenen durchgeführt wurden.

5.4.1 Herstellung und Charakterisierung der Proben

Die Herstellung der Graphitproben erfolgte durch Laserplasmaablation und Deposition [94] im Targetlabor der Technischen Universität München, die der Fullereneproben durch Verdampfung im Targetlabor der Ludwig-Maximilians Universität München.

Bei der Methode der Laserplasmaablation und Deposition wird in einer Vakuumkammer auf ein spektroskopisch reines Stück Graphit ein Nd:YAG-Laserstrahl mit einer Leistungsdichte von 1 GW/cm² gerichtet. Dieser Strahl erzeugt auf der Oberfläche des Graphit ein Plasma, wodurch die molekularen Bindungen aufgebrochen werden und einzelne Kohlenstoffatome und Ionen das Plasma verlassen. Dieser Teilchenstrom lagert sich auf mit Betain beschichteten Mikroskopiegläsern ab, von welchen die entstehende Folie mit der gleichen Vorgehensweise wie bei der Herstellung der Aluminiumproben freitragend auf die Probenträger aufgebracht wird. Durch Lichtabsorptionsmessungen kann die Dicke der Graphitfolien bestimmt werden [94].

Da die benötigten dünnen Fullerenefolien nicht ausreichend stabil sind um freitragend hergestellt zu werden, wurden sie auf eine dünne Graphitfolie aufgedampft. Als Ausgangsmaterial wird hierbei kommerziell erhältliches Fullerenepulver verwandt.

5.4.2 Theoretische Elektronenimpulsdichten von Graphit und Fullerenen

Für Graphit standen zum Vergleich mit dem Experiment zwei mit unterschiedlichen Methoden berechnete Impulsdichten zur Verfügung. Eine Rechnung von Lou Yongming [95]

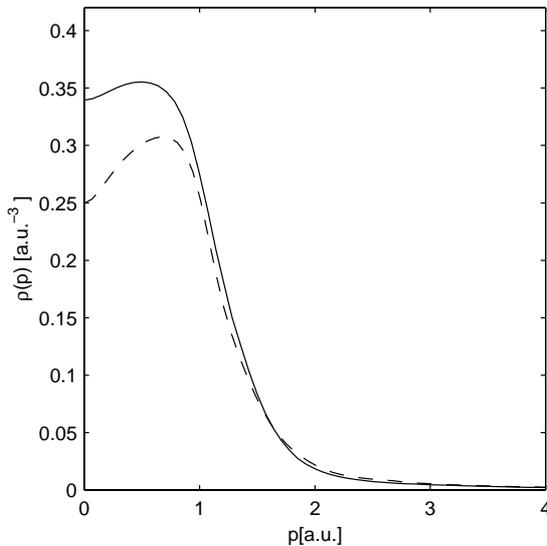


Abbildung 5.19: Sphärisch gemittelte Elektronenimpulsdichten von Graphit, durchgezogen die FP-LMTO Rechnung, gestrichelt die PP Rechnung.

benutzt eine empirische Pseudopotentialmethode (PP), und eine Rechnung von A. S. Kheifets und D. R. Lun benutzt wiederum die in Kapitel 5.3.2 beschriebene FP-LMTO Methode. Da die Probe aus polykristallinem Graphit bestand, wurden die Impulsdichten sphärisch gemittelt. Abbildung 5.19 zeigt die beiden theoretischen Impulsdichten. Die PP Impulsdichte unterscheidet sich von der FP-LMTO Impulsdichte durch eine deutlich geringere Intensität bei Impulsen unterhalb von 2 a.u., welche durch eine höhere Intensität bei Impulsen oberhalb von 2 a.u. ausgeglichen wird. Diese nach außen verschobene Intensität verursacht das deutlich stärkere lokale Minimum bei $p = 0$ a.u.

Zum Vergleich mit den C_{60} -Meßdaten wurde eine Molekularorbitalrechnung innerhalb der DFT herangezogen. Diese Rechnung benutzt im Rahmen der lokalen Dichtenäherung (LDA) ein Vosko-Wilk-Nusair Potential [96]. Sowohl experimentell bestimmte Comptonprofile, als auch theoretische Betrachtungen [97] zeigten, daß die Einbindung von Fullerenen in einen Kristall und die damit entstehenden Festkörpereffekte nur sehr geringen Einfluß auf die Elektronenimpulsdichte hat und somit vernachlässigbar ist.

Abbildung 5.20 zeigt die so erhaltene sphärisch gemittelte Impulsdichte im Vergleich zur FP-LMTO Impulsdichte von Graphit. Der größte Unterschied zwischen den beiden Impulsdichten ist die erhöhte Intensität der C_{60} -Dichte bei kleinen Impulsen. Eine Erklärung hierfür ergibt sich, wenn man Fullerene als zu Kugeln verformte Graphit-Basalebene betrachtet. Diese Verformung führt zu einer Änderung der Hybridisierung der σ - und π -Bindungen, indem jeder Bindungsart ein Teil der anderen beige-mischt wird. Somit entsteht eine Mischform zwischen der Graphit sp^2 - und der Diamant sp^3 -Hybridisierung. Der Anteil dieser Rehybridisierung ist hierbei abhängig von der Krümmung der Fullereneoberfläche. Dennoch ist der Gesamtcharakter der Bindung, beschrieben durch die jeweiligen Anteile der Beimischungen, in jedem Fall näher an Graphit als an Diamant [98, 99]. Für die Ladungsdichte eines C_{60} -Moleküls führt dies zu einer Verschiebung der Intensität aus den Bereichen zwischen den Graphitschichten zu den C_{60} -Kugeln. DFT-Rechnungen der Ladungsdichte in der lokalen Dichtenäherung

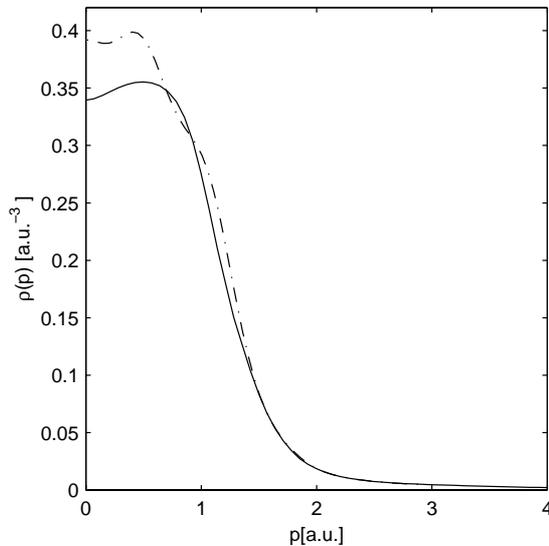


Abbildung 5.20: Die sphärisch gemittelte Impulsdichte von C_{60} (gestrichpunktet) im Vergleich zur FP-LMTO Impulsdichte von Graphit (durchgezogen).

zeigen folglich eine erhöhte Dichte zwischen den benachbarten Kohlenstoffatomen im C_{60} -Molekül im Vergleich zur Ladungsdichte von Graphit [97]. Diese Delokalisierung ist der Grund für die Erhöhung der Intensität der C_{60} Impulsdichte bei kleinen Impulsen.

Die beschriebenen theoretischen Elektronenimpulsdichten von Graphit und Fullerenen wurden im Rahmen der Dichtefunktionaltheorie berechnet und müssen folglich mit der in Abschnitt 2.1 beschriebenen Lam-Platzman Korrektur behaftet werden. Wie schon für Aluminium wurde die Parametrisierung von Farid et al. [79] verwendet. Als Ladungsdichte $\rho(\vec{r})$ wurde die mit Röntgenstreuung experimentell bestimmte Valenzladungsdichte von Chen et al. [100] benutzt, der die atomare Ladungsdichte der ($1s^2$) Rumpfelektronen von Bunge et al. [73] hinzugefügt wurde. Abbildung 5.21 zeigt die so erhaltene Lam-Platzman Korrektur für Graphit. Für den Impuls $p = 0$ a.u. entspricht die Korrektur einer Verringerung der Impulsdichte um 3.5%. Da, wie weiter oben beschrieben, die zwischenatomaren Bindungslängen von Fullerenen der von Graphit in den Basalebene sehr ähnlich sind, wurde für die C_{60} -Impulsdichte die gleiche Korrektur verwendet.

5.4.3 Resultate

Es sollen im folgenden die Ergebnisse der Messungen an Graphit und Fullerenen mit den oben vorgestellten Theorien verglichen werden. Für die Messung an Fullerenen soll zudem überprüft werden, ob ein $(\gamma, e\gamma)$ -Experiment in der Lage ist, die Impulsdichten von Graphit und Fullerenen zu unterscheiden.

Die Graphitprobe war eine polykristalline $3 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ ($\simeq 13$ nm) dicke freistehende Folie an der $2.5 \cdot 10^5$ koinzidente Ereignisse gemessen wurden. Die Fullereneprobe war eine polykristalline $3 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ ($\simeq 13$ nm) dicke Graphitfolie auf der bei 400°C $19 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ ($\simeq 58$ nm) C_{60} aufgedampft wurde. Von dieser Folie wurden $7.2 \cdot 10^5$ koinzidente Ereignisse gemessen.

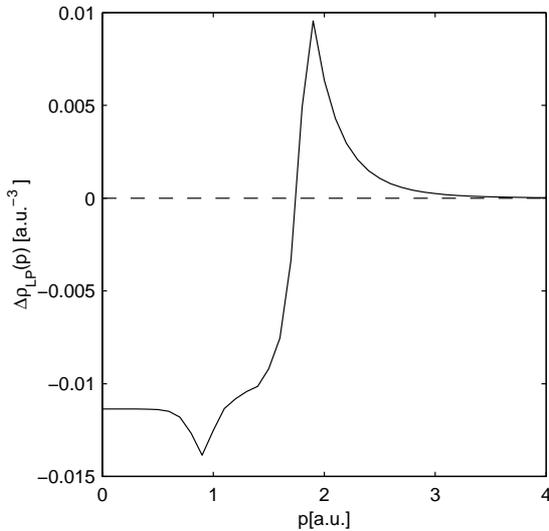
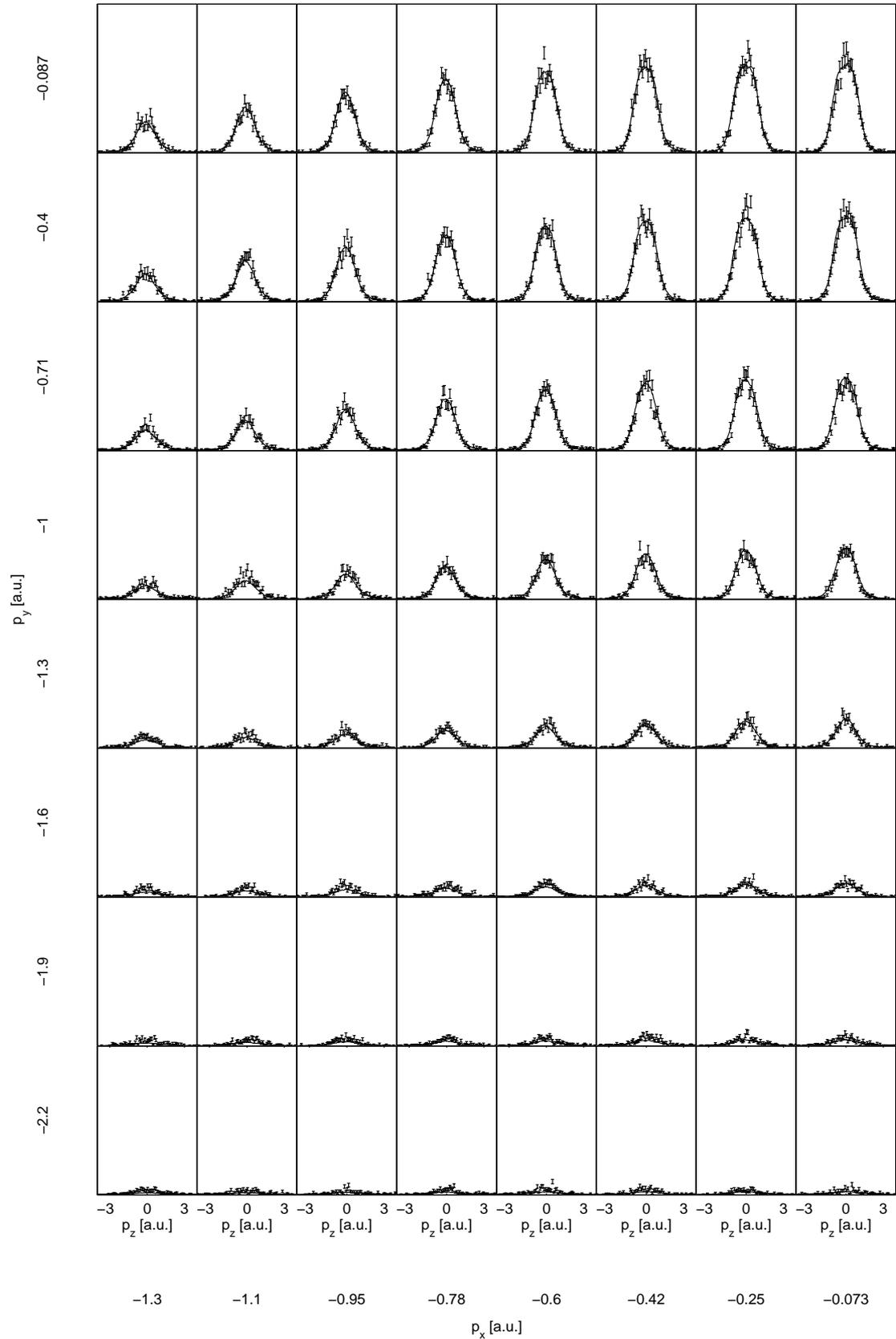


Abbildung 5.21: Die Lam-Platzman Korrektur $\Delta\rho_{LP}$ für Graphit und Fullerene als Funktion des Elektronenimpulses p .

In Abbildung 5.22 ist ein Teil der Impulsdichte von Graphit, gemessen mit den Pixeln des linken unteren Quadranten des Elektronendetektors, im Vergleich zu der theoretischen FP-LMTO Impulsdichte dargestellt. Die allgemeine Übereinstimmung ist sehr gut. Das Gleiche gilt für Abbildung 5.23, auf der die entsprechenden Spektren für C_{60} im Vergleich zu der molekularen LDA-Theorie dargestellt sind.

In Abbildung 5.24 sind drei verschiedene Schnitte durch die experimentelle Impulsdichte für Graphit im Vergleich zu der FP-LMTO Theorie und der PP Theorie dargestellt. Teilbild a zeigt $\rho(p_x, 0, 0)$, Teilbild b $\rho(0, p_y, 0)$ und Teilbild c $\rho(0, 0, p_z)$. Es ist unmittelbar zu erkennen, daß die experimentellen Daten von der FP-LMTO Theorie gut beschrieben werden, während die PP Theorie starke Abweichungen vom Experiment zeigt. Das lokale Minimum der Impulsdichte bei $p = 0$ a.u., welches in Abbildung 5.19 zu sehen ist, verschwindet durch die Verschmierung der Theorie mit der experimentellen Auflösung und der Elektronenvielfachstreuung für die FP-LMTO Theorie vollständig, und für die PP Theorie ist es lediglich ansatzweise zu erkennen. Die beiden theoretischen Impulsdichten wurden mit der Lam-Platzman Korrektur behaftet, deren Einfluß jedoch kleiner ist, als die Fehlerbalken der experimentellen Impulsdichte. Das leichte lokale Minimum, welches in früheren $(\gamma, e\gamma)$ -Messungen gesehen wurde [15], konnte durch das Experiment nicht bestätigt werden. Lou Yongming beschreibt in seiner Veröffentlichung der PP Theorie [95], daß das lokale Minimum stark von Variationen der Potentialparameter abhängig ist. Durch geeignete Wahl dieser Parameter konnte es völlig zum Verschwinden gebracht werden.

In Abbildung 5.25 ist analog zu Abbildung 5.11 ein Vergleich zwischen einem $(\gamma, e\gamma)$ -Winkelkorrelationsprofil und einer 2D-ACAR Messung von Graphit [101] gezeigt. Die Probe der 2D-ACAR Messung war sogenanntes “Highly Oriented Pyrolytic Graphite” (HOPG), bei dem die c -Achsen ausgerichtet sind und lediglich durch die Mosaizität des Kristalls von dieser Orientierung abweichen. Daher ist der Vergleich mit dem $(\gamma, e\gamma)$ -Winkelkorrelationsprofil einer polykristallinen Graphitprobe nur bedingt möglich. Die



78

Abbildung 5.22: Darstellung der Impulsdichten von Graphit gemessen mit den Pixeln des linken unteren Quadranten des Elektronendetektors (Punkte mit Fehlerbalken) im Vergleich zu den entsprechenden theoretischen Impulsdichten der FP-LMTO Rechnung mit Lam-Platzman Korrektur (durchgezogen).

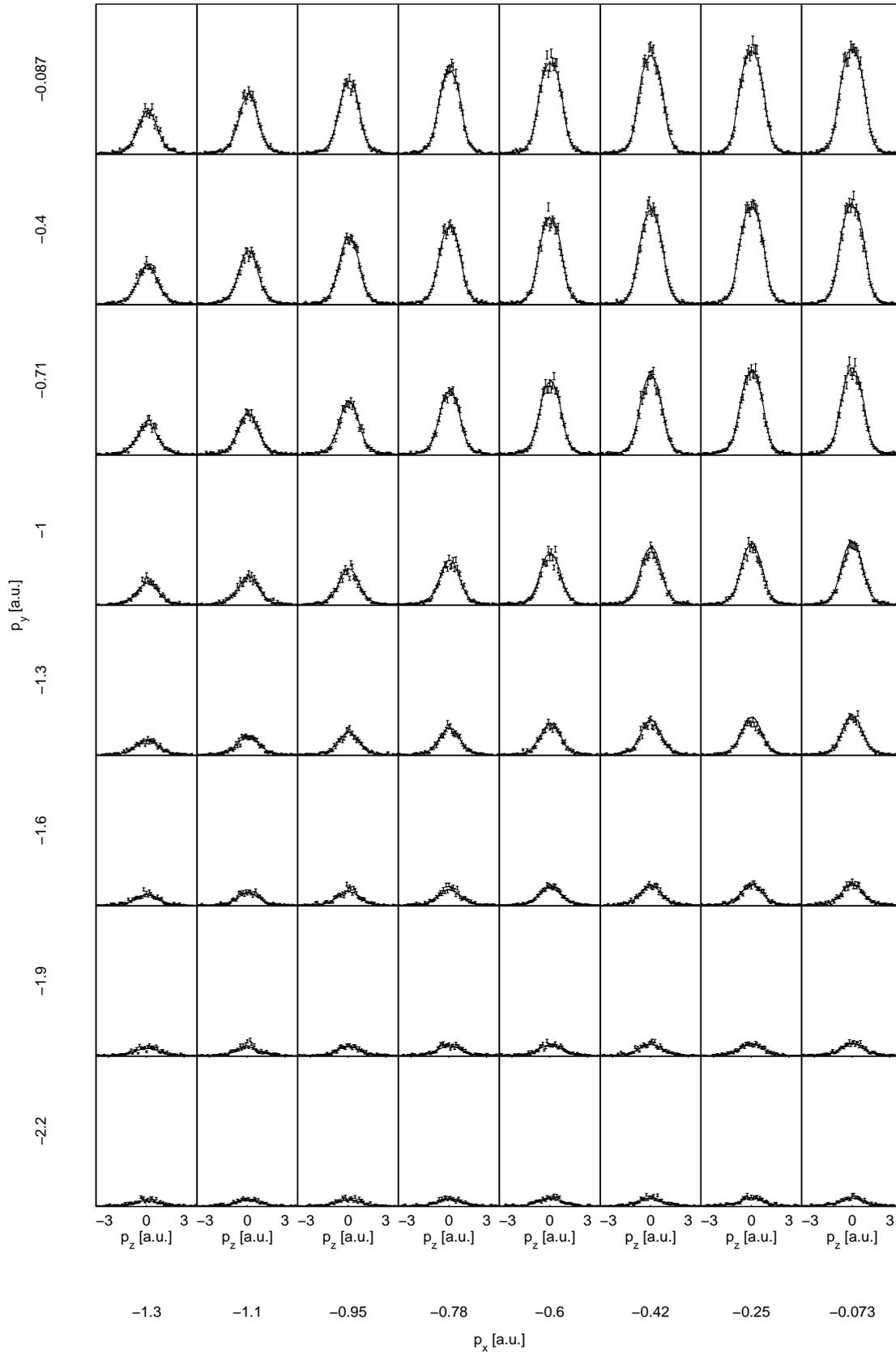


Abbildung 5.23: Darstellung der Impulsdichten von C_{60} gemessen mit den Pixeln des linken unteren Quadranten des Elektronendetektors (Punkte mit Fehlerbalken) im Vergleich zu den entsprechenden theoretischen Impulsdichten der Molekularorbitalrechnung mit Lam-Platzman Korrektur (durchgezogen).

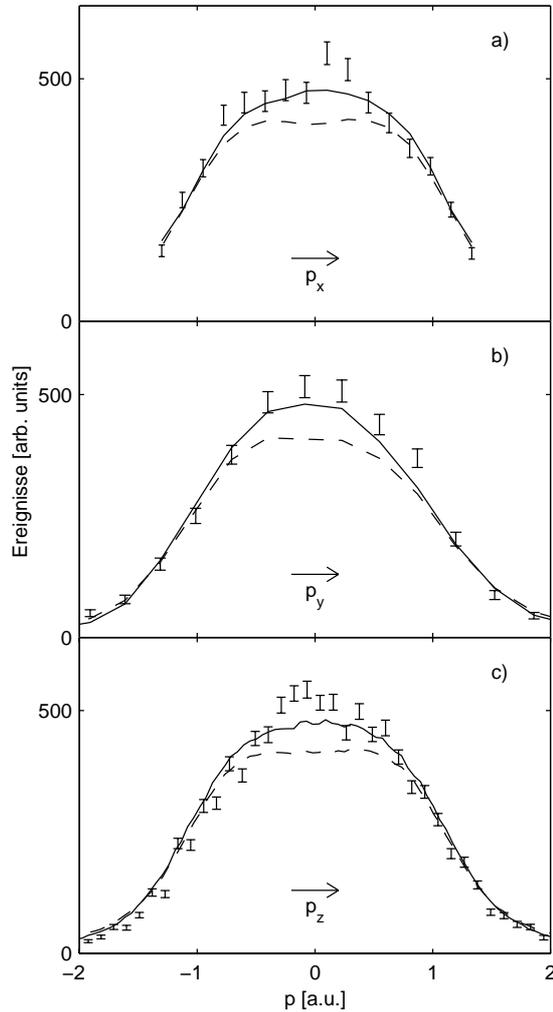
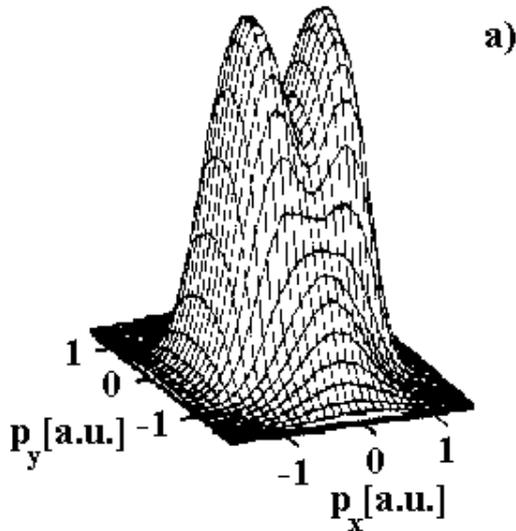


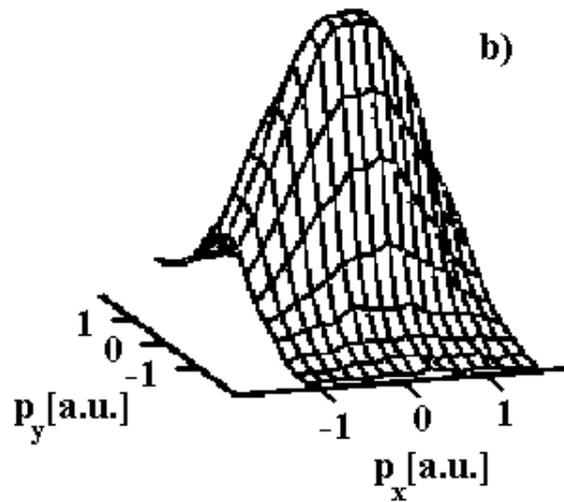
Abbildung 5.24: Die experimentelle Impulsdichte von Graphit mit Fehlerbalken im Vergleich zu der FP-LMTO Impulsdichte (durchgezogen) und der PP-Impulsdichte (gestrichelt). Teilbild a zeigt $\rho(p_x, 0, 0)$, Teilbild b $\rho(0, p_y, 0)$ und Teilbild c $\rho(0, 0, p_z)$.

2D-ACAR Messung zeigt ein sehr ausgeprägtes lokales Minimum an der Stelle $p = 0$, welches durch eine sphärische Mittelung verringert werden würde. Die experimentellen Daten zeigen eine schmalere Verteilung und ein stärkeres lokales Minimum als die Theorie es erwarten läßt. Sie erklären dies mit der erhöhten Annihilationswahrscheinlichkeit der Positronen zwischen den Basalebenen an π -Elektronen. Diese Elektronen besitzen p -Charakter und haben dadurch eine deutlich stärkere Anisotropie als die σ -Elektronen. Somit kommt es zu einer Überbetonung dieser Anisotropie und damit zu einer stärkeren Ausprägung des lokalen Minimums.

Im Falle der C_{60} -Messung konnte bei eindimensionalen Schnitten durch die Impulsdichte nicht zwischen der theoretischen FP-LMTO Impulsdichte für Graphit und der Molekularorbitalrechnung für C_{60} unterschieden werden. Daher wurde wie schon für Aluminium das koinzidente Comptonprofil gebildet, um den statistischen Fehler zu verkleinern. Abbildung 5.26 zeigt das koinzidente Comptonprofil der Meßdaten im Vergleich mit den beiden Theorien. Die Molekularorbitalrechnung für C_{60} zeigt eine sehr gute



a)



b)

Abbildung 5.25: Vergleich von Winkelkorrelationsprofilen von Graphit, gemessen mit 2D-ACAR (HOPG) [101] (Teilbild 5a) und mit $(\gamma, e\gamma)$ Spektroskopie (Teilbild 5b).

Übereinstimmung mit der Messung, während die FP-LMTO Impulsdichte von Graphit die gemessene Impulsdichte von Fullerenen nicht so gut beschreibt. Wie aus Abbildung 5.20 zu erwarten, weist die FP-LMTO Impulsdichte bei kleinen Impulsen eine geringere Intensität als die C_{60} Impulsdichte auf. Dies wird noch deutlicher durch Bildung der relativen Differenz

$$\Delta J_{coinc} = (J_{exp} - J_{theor})/J_{exp} \cdot 100 \quad , \quad (5.13)$$

wobei J_{exp} die experimentellen und J_{theor} die theoretischen Werte sind. Die offenen Kreise in Abbildung 5.27 zeigen die relative Differenz zwischen der FP-LMTO Theorie und den experimentellen Werten, die schwarzen Punkte die relative Differenz zwischen der Molekularorbitaltheorie und dem Experiment. Die Molekularorbitaltheorie beschreibt die Messung deutlich besser als die FP-LMTO Theorie. Durch die Bildung der relativen Differenz wird zudem die Abweichung der FP-LMTO Theorie oberhalb von $p = 1.6$ a.u. betont.

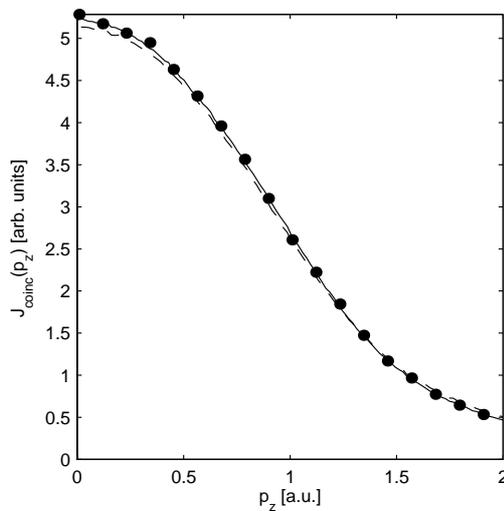


Abbildung 5.26: Das experimentelle koinzidente Comptonprofil von C_{60} (Punkte) im Vergleich mit der molekularen C_{60} Rechnung (durchgezogen) und der FP-LMTO Rechnung für Graphit (gestrichelt).

5.4.4 Zusammenfassung

Es wurden die dreidimensionalen Elektronenimpulsdichten einer Graphit- und einer C_{60} -Probe gemessen und mit verschiedenen Theorien verglichen. Im Falle der Graphit-Probe waren dies eine PP Rechnung von Lou Yongming [95] und eine FP-LMTO Theorie von A. S. Kheifets und D. R. Lun. Für Schnitte durch die Impulsdichte zeigte die FP-LMTO Theorie eine eindeutig bessere Übereinstimmung mit der Messung, als die PP Theorie. Diese bessere Übereinstimmung entsteht durch das im Vergleich zur PP Theorie schwächere lokale Minimum bei kleinen Impulsen. Der Einfluß der Lam-Platzman Korrektur ist vernachlässigbar.

Die C_{60} Messung zeigt eine sehr gute Übereinstimmung mit einer molekularen Pseudopotentialrechnung. Koinzidente Comptonprofile erlauben eine Unterscheidung zwischen der FP-LMTO Graphitrechnung und der C_{60} Rechnung und bestätigen somit die theoretischen Voraussagen einer stärkeren Delokalisierung der Elektronen in C_{60} als in Graphit.

5.5 Kupfer-Nickel Schichtsystem und Legierung

Als drittes Probensystem wurde die Elektronenimpulsdichte eines Kupfer-Nickel Schichtsystems und einer Kupfer-Nickel Legierung (Cu_xNi_{1-x}) untersucht. Ziel dieses Experiments war es, Unterschiede der Impulsdichte zu messen, die durch die Legierungsbildung entstehen.

Kupfer-Nickel Legierungen sind über den gesamten Bereich ihrer relativen Zusammensetzungen lückenlos mischbar und damit ein Prototyp ungeordneter fcc-Legierungen [102]. Die Änderung der Gitterkonstante beim Übergang von reinem Nickel zu reinem Kupfer beträgt lediglich 2% und die der Dichte 0.3% [103]. Dies, in Verbindung mit dem guten Verständnis der elektronischen Strukturen von Kupfer und Nickel, bietet dieses System als eine Probe für die Untersuchung von Einflüssen der Legierungsbildung auf

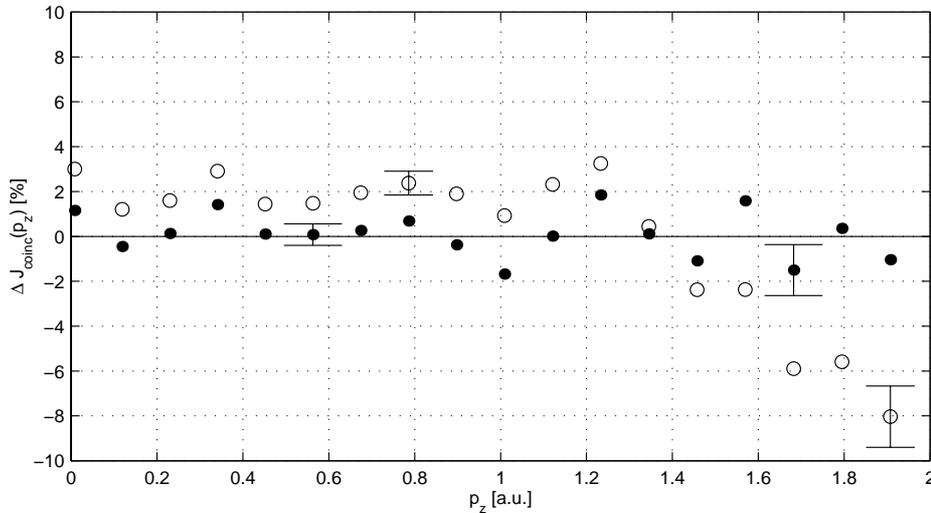


Abbildung 5.27: Die relative Differenz ΔJ_{coinc} für die FP-LMTO Rechnung von Graphit (offene Kreise) und die molekulare C_{60} Rechnung (Punkte).

die Elektronenimpulsdichte an. Auch in der Entwicklung einer theoretischen Beschreibung der elektronischen Struktur ungeordneter Legierungen spielte die Betrachtung von $\text{Cu}_x\text{Ni}_{1-x}$ Systemen eine wichtige Rolle [104].

Es wurde zunächst eine Probe, bestehend aus einer $20 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ ($\simeq 22 \text{ nm}$) Schicht Kupfer und einer $20 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ ($\simeq 22 \text{ nm}$) Schicht Nickel, die auf eine $8 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ ($\simeq 36 \text{ nm}$) Graphitfolie aufgedampft wurden, gemessen und anschließend mit einer Probe gleicher Zusammensetzung, jedoch in einem Vakuumofen für zwei Stunden auf 500°C geheizt, verglichen. Aufgrund der gleichen elementaren Zusammensetzungen der Proben sollten hierbei die Beiträge der Graphitfolie und der Elektronenvielfachstreuung zur Impulsdichte bei einer Differenzbildung verschwinden.

5.5.1 Herstellung und Charakterisierung der Proben

Die Kupfer–Nickel Proben wurden wiederum im Targetlabor der Ludwig–Maximilians–Universität München hergestellt. Sehr dünne Kupfer– und Nickel–Schichten weisen nicht die nötige Stabilität auf, um als freitragende Proben hergestellt zu werden. Daher wurde, wie schon bei den Fullereneproben, eine Graphitfolie als Probensubstrat benutzt.

Ziel der Messung ist es, durch Differenzbildung der gemessenen Elektronenimpulsdichten des Kupfer–Nickel Schichtsystems und der Kupfer–Nickel Legierung den Effekt der Legierungsbildung zu messen. Dies setzt eine identische elementare Zusammensetzung und Dicke der beiden Proben voraus. Dies gilt auch für die Kohlenstoffsubstratfolien auf denen sich die Kupfer–Nickel Systeme befinden. Dies wurde beim Herstellungsprozeß berücksichtigt, indem zwei Substratfolien der selben Herstellungsserie verwandt wurden. Diese Folien wurden anschließend auf zwei benachbarten Positionen in der Bedampfanlage simultan zunächst mit Kupfer und daraufhin mit Nickel bedampft. Die Flächen-

belegung der beiden Schichten war jeweils $20 \mu\text{g}/\text{cm}^2$, was für Kupfer bei einer mittleren Dichte von $8.93 \text{ g}/\text{cm}^3$ und für Nickel bei einer mittleren Dichte von $8.91 \text{ g}/\text{cm}^3$ jeweils einer Dicke von etwa 22 nm entspricht. Eine der beiden Folien wurde nun der Anlage entnommen, während die zweite in der gleichen Anlage geheizt wurde.

Die Temperatur und Dauer dieses Heizvorgangs muß so gewählt werden, daß eine völlige Durchmischung der Kupfer- und Nickelschicht gewährleistet ist. Um eine Abschätzung der Diffusionsgeschwindigkeiten zu erhalten, wurde der experimentell bestimmte Diffusionskoeffizient D_{Ni} von Nickel in Kupfer-Einkristalle benutzt. Almazouzi et al. [105] gibt diesen mit

$$D_{Ni} = (0.62_{-0.21}^{+0.31}) \times 10^{-4} \times \exp(-2.32 \pm 0.025 \text{ eV}/kT) \text{ m}^2 \text{ s}^{-1} \quad (5.14)$$

an, wobei k die Boltzmann-Konstante ist und T die Temperatur. Die Konzentration des diffundierenden Materials ergibt sich aus der Lösung des 2. Fickschen Gesetzes [19] mit geeigneten Randbedingungen. Diese Lösungen haben alle, unabhängig von den Randbedingungen, eine charakteristische Länge $d = 2\sqrt{Dt}$ [106], bestimmt durch den Diffusionskoeffizienten D und die Zeit t . Diese charakteristische Länge beschreibt den mittleren, von den diffundierenden Atomen zurückgelegten Weg. Mit dem oben angegebenen Diffusionskoeffizienten, einer Temperatur von 500° C und einer Zeit von zwei Stunden ergibt sich d zu 36 nm. Dies entspricht etwa der Dicke des Schichtsystems. Almazouzi et al. bestimmten den oben gegebenen Diffusionskoeffizienten durch Messungen an Einkristallen, bei den hier untersuchten Proben handelt es sich jedoch um polykristalline aufgedampfte Schichten mit einer Vielzahl von Korngrenzen und Defekten. Insbesondere bei niedrigen Temperaturen läuft Diffusion an solchen Defekten um Größenordnungen schneller ab, als in Einkristallen, so daß dieser Diffusionskoeffizient lediglich eine untere Grenze setzt [107, 108, 109].

Es ist dennoch notwendig zu überprüfen, ob das Heizen der Probe bei 500° C während zwei Stunden zu einem vollständigen Ineinanderdiffundieren der Kupfer- und Nickelschicht geführt hat. Hierzu wurden die beiden Proben mit der Methode der "Secondary Ion Mass Spectroscopy" (SIMS) [110] untersucht. Bei dieser Methode werden durch Sputtern Atome ionisiert und aus der Probe herausgeschlagen. Diese Ionen werden daraufhin in einem Massenspektrometer identifiziert und gezählt. Durch das langsame Abtragen der Atome in der Probe ist es möglich, diese Zählraten tiefenabhängig zu bestimmen.

Das Verhältnis zwischen den detektierten Ionen und der Konzentration des entsprechenden Elementes innerhalb der Probe ist abhängig von der Ionisationswahrscheinlichkeit der Atome, welche wiederum von zahlreichen Parametern abhängt [110]. Allgemein ist eine Berechnung der Ionisationswahrscheinlichkeit nicht möglich [111], und somit sind Absolutmessungen elementarer Konzentrationen nur mit geeigneten Eichproben möglich. Zur Bestimmung relativer Konzentrationen und insbesondere zum Vergleich von Konzentrationen zweier Proben ist SIMS jedoch eine leistungsfähige Methode.

Abbildung 5.28 zeigt den Vergleich der SIMS-Tiefenprofile von Kupferatomen und Nickelatomen in den beiden gemessenen Proben. Die linke Seite zeigt das Tiefenprofil des Kupfer-Nickel Schichtsystems. Eine Trennung der Signale von Kupfer und Nickel ist zu erkennen, es kommt jedoch zu einer Überlappung der beiden Kurven. Grund hierfür

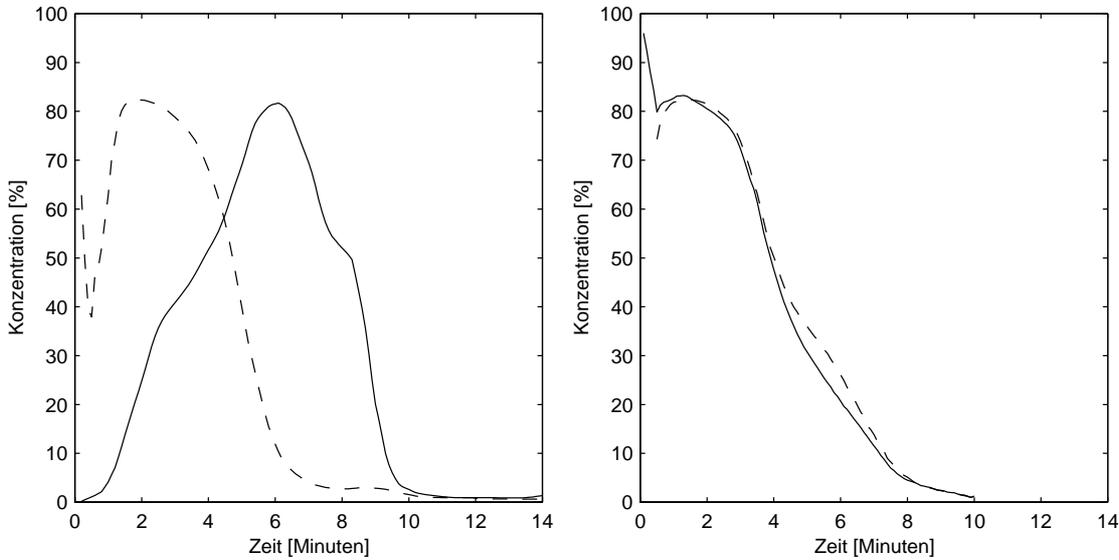


Abbildung 5.28: SIMS-Tiefenprofile von Kupferatomen (durchgezogen) und Nickelatomen (gestrichelt) in den beiden gemessenen Proben. Die linke Seite zeigt das Tiefenprofil des Kupfer–Nickel Schichtsystems, die rechte das der Kupfer–Nickel Legierung.

ist nicht eine Ineinanderdiffusion der beiden Elemente, sondern die Inhomogenität der Schichtdicken innerhalb des $150 \times 150 \mu\text{m}^2$ Strahlflecks. Auf der rechten Seite von Abbildung 5.28 sind die SIMS Tiefenprofile der Legierungsprobe zu sehen. Es ist deutlich zu erkennen, daß eine völlige Vermischung von Kupfer und Nickel zustande gekommen ist. Derartige Tiefenprofile wurden an fünf zufälligen Orten auf der Probe durchgeführt und ergaben die gleichen Ergebnisse.

Untersuchungen, ob es bei der Herstellung von Legierungen zu Bildung kurzreichweitiger Cluster kommt wurden mit diffuser Neutronenstreuung durchgeführt [112, 113]. Diese Messungen ergaben für $\text{Cu}_{0.5}\text{Ni}_{0.5}$ Legierungen eine Wahrscheinlichkeit von 0.56 ein Atom der gleichen Sorte als nächsten Nachbarn vorzufinden. Dies ist sehr nahe an einer Wahrscheinlichkeit von 0.5 für eine vollständig ungeordnete Legierung und der Effekt der Clusterbildung ist somit vernachlässigbar.

Zur Bestimmung der elementaren Zusammensetzung der Proben wurde wiederum die ERDA-Methode genutzt. Abbildung 5.29 zeigt das DEER-Spektrum für eine der beiden Proben. Die Kupfer und Nickel Anteile sind klar zu erkennen und voneinander getrennt. Auch das Signal des Kohlenstoffsubstrats ist zu sehen sowie ein kleiner Anteil von Stickstoff- und Sauerstoffverunreinigungen. Das Ergebnis einer quantitativen Analyse der Spektren der beiden Proben zeigt Tabelle 5.5.1. Innerhalb weniger Prozent stimmen sowohl die absoluten als auch die relativen Anteile der Elemente überein. Bei der Auflösung und statistischen Genauigkeit der durchgeführten Experimente können diese geringen Abweichungen der Zusammensetzungen der beiden Proben vernachlässigt werden, und die Differenzbildung zur Ermittlung der Legierungseffekte wird möglich.

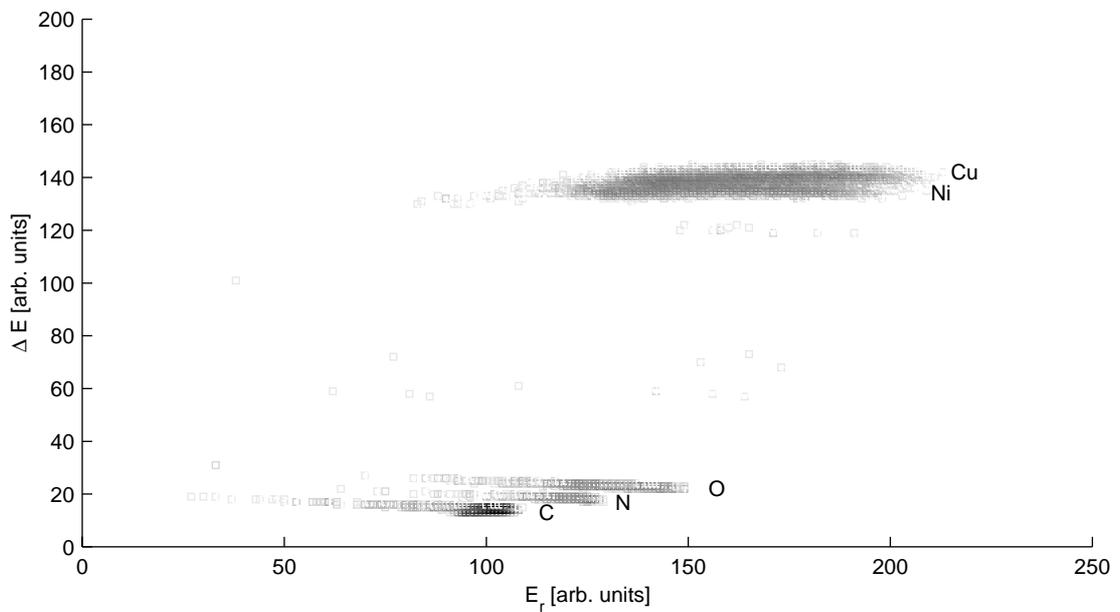


Abbildung 5.29: Zweidimensionales $\Delta E - E_r$ Spektrum der Messung an einer der Cu/Ni-Folien. Die verschiedenen Signale von Kupfer, Nickel, Sauerstoff, Stickstoff und Kohlenstoff sind deutlich voneinander getrennt.

5.5.2 Theoretische Elektronenimpulsdichte

Die Diffusion von Nickel in Kupfer führt zu einer ungeordneten Legierung $\text{Cu}_x\text{Ni}_{1-x}$, bei der die regulären Gitterplätze der fcc-Struktur statistisch in Anteilen x und $1 - x$ mit Atomen der beiden Elementen besetzt sind. Aufgrund dieser statistischen Verteilung geht die Translationssymmetrie des Kristalls verloren, und das Blochtheorem ist nicht mehr gültig [20]. Dies erschwert in hohem Maße die Berechnung theoretischer Elektronenimpulsdichten. Erst durch die Entwicklung der “Korringa-Kohn-Rostoker coherent potential approximation” (KKR-CPA) Methode [114, 115] wurde die Berechnung der elektronischen Struktur ungeordneter Legierungen mit der gleichen Genauigkeit wie für periodische Materialien möglich [116]. Berechnungen der Elektronenimpulsdichte ungeordneter Legierungen wurden im Rahmen der KKR-CPA Methode erstmals von Mijnaerds und Bansil [117, 118] durchgeführt.

Die Schwierigkeiten in der Berechnung der elektronischen Struktur einer ungeordneten Legierung sind das Aufstellen eines Potentials, welches durch die zufällig auf den Gitterplätzen verteilten Atomrümpfe entsteht und die anschließende Lösung der Schrödingergleichung für alle möglichen Konfigurationen dieser Atomrümpfe. Um dieses Problem zu umgehen, erfolgt die Beschreibung des ungeordneten Legierungssystems durch ein effektives geordnetes Medium, welches für die Elektronen in diesem Medium wie ein ungeordnetes System erscheint [104]. Dies geschieht, indem an den einzelnen Gitterplätzen

Element	Kupfer–Nickel Schichtsystem		Kupfer–Nickel Legierung	
	Ereignisse	Anteil in %	Ereignisse	Anteil in %
Cu	8098	24.5	7631	24.5
Ni	8502	26	8929	28.5
C	11300	45	11060	46.5
N	413	1.7	104	0.4
O	730	2.8	330	0.1

Tabelle 5.2: Elementare Anteile der beiden Kupfer–Nickel Proben bestimmt mit ERDA.

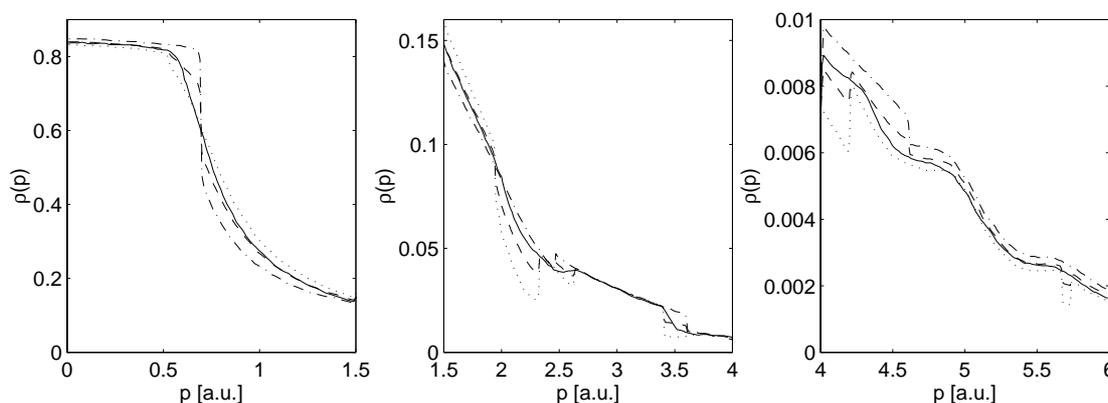


Abbildung 5.30: Vergleich der theoretischen Elektronenimpulsdichten eines $\text{Cu}_{0.5}\text{Ni}_{0.5}$ Schichtsystems (gestrichelt), einer $\text{Cu}_{0.5}\text{Ni}_{0.5}$ Legierung (durchgezogen), reinen Kupfers (gestrichpunktet) und reinen Nickels (gepunktet).

anstatt der Streufunktion der Atomsorten der Legierung an jedem Gitterplatz die selbe effektive Streufunktion angesetzt wird. Die Forderung nach Selbstkonsistenz wird eingeführt und damit eine “single site” t -Matrix erlangt. Die Berechnung der Bandstruktur dieses effektiven Mediums mit einer effektiven Streufunktion erfolgt im Rahmen des KKR–Formalismus [119, 120], der die Benutzung des Streuformalismus unterstützt.

Abbildung 5.30 zeigt die Ergebnisse einer KKR–CPA Rechnung von Bansil et al. [121] der Elektronenimpulsdichten einer $\text{Cu}_{0.5}\text{Ni}_{0.5}$ Legierung sowie Ergebnisse von KKR Rechnungen für reines Kupfer, reines Nickel und eines $\text{Cu}_{0.5}\text{Ni}_{0.5}$ Schichtsystems. Die Impulsdichte des Schichtsystems wurde berechnet, indem der Mittelwert der Impulsdichten von reinem Kupfer und reinem Nickel gebildet wurde. Die Berechnung der Impulsdichten erfolgte für polykristalline Proben aus den Impulsdichten für einkristalline Proben, indem die “special direction” Methode [122] angewandt wurde. Vergleiche der KKR–CPA Rechnungen für Legierungen mit sehr hohem Kupfer– beziehungsweise Nickelanteil mit den KKR Rechnungen der reinen Materialien zeigten die Konsistenz der beiden Methoden in diesen Grenzfällen [116].

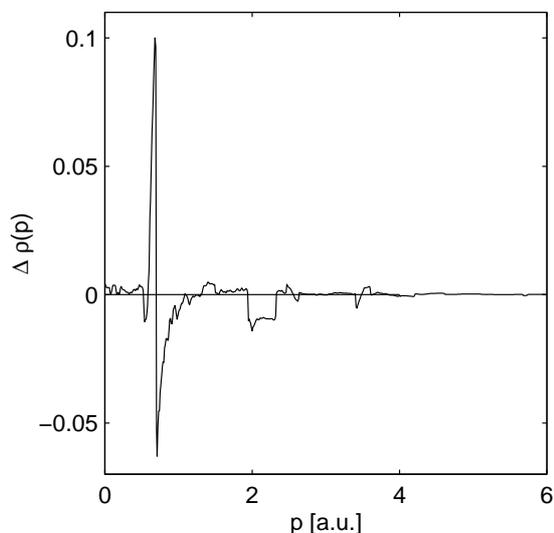


Abbildung 5.31: Differenz der in Abbildung 5.30 gezeigten Elektronenimpulsdichten des $\text{Cu}_{0.5}\text{Ni}_{0.5}$ Schichtsystems und der $\text{Cu}_{0.5}\text{Ni}_{0.5}$ Legierung.

Auf Abbildung 5.30 ist zunächst zu erkennen, daß die stark ausgeprägte Diskontinuität der Impulsdichte von Kupfer an der Fermikante bei 0.65 a.u. in der Impulsdichte der Legierung vollständig verschwindet, während sie bei dem Schichtsystem noch klar erkennbar ist. Grund für diese Abrundung der Fermikante in der Legierungsimpulsdichte ist die Dämpfung der Elektronenzustände an der Fermienergie [118]. Der zweite bemerkenswerte Unterschied befindet sich bei 2 a.u., welcher durch die Eigenschaften der Nickel Impulsdichte hervorgerufen wird. Dies wird noch deutlicher in Abbildung 5.31, in der die Differenz

$$\Delta\rho = \frac{1}{2}(\rho_{\text{Cu}} + \rho_{\text{Ni}}) - \rho_{\text{Cu}_{0.5}\text{Ni}_{0.5}} \quad (5.15)$$

der Impulsdichten des Schichtsystems und der Legierung aufgetragen ist.

5.5.3 Resultate

Es wurden Messungen an einem Schichtsystem mit $20 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ ($\simeq 22$ nm) Nickel und $20 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ ($\simeq 22$ nm) Kupfer auf einem $8 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ ($\simeq 36$ nm) Kohlenstoffsubstrat und an einer $40 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ ($\simeq 44$ nm) Cu/Ni-Legierung auf einem $8 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ ($\simeq 36$ nm) Kohlenstoffsubstrat durchgeführt. Die beiden Proben wurden abwechselnd über mehrere Tage gemessen, und an jeder Probe wurden insgesamt $1.4 \cdot 10^6$ koinzidente Ereignisse aufgenommen.

Wie Abbildung 5.31 zeigt, sind für die Elektronenimpulsdichte die stärksten Effekte im Bereich der Fermikanten von Nickel und Kupfer zu erwarten, daß heißt im Bereich $0.5 \text{ a.u.} \leq |p| \leq 1.0 \text{ a.u.}$ Abbildung 5.32 zeigt $\rho(p_z)$ der beiden Proben für $\sqrt{p_x^2 + p_y^2} = 0.5 \text{ a.u.}$ Innerhalb des statistischen Fehlers können keine Differenzen beobachtet werden. Es zeigt sich, daß die Statistik über den gesamten gemessenen Impulsbereich nicht ausreichend ist, um Differenzen in den gemessenen Elektronenimpulsdichten zu sehen.

Daher wurde wiederum das Verfahren der Bildung der koinzidenten Comptonprofile benutzt, um den statistischen Fehler zu verkleinern. Anschließend wurde die Dif-

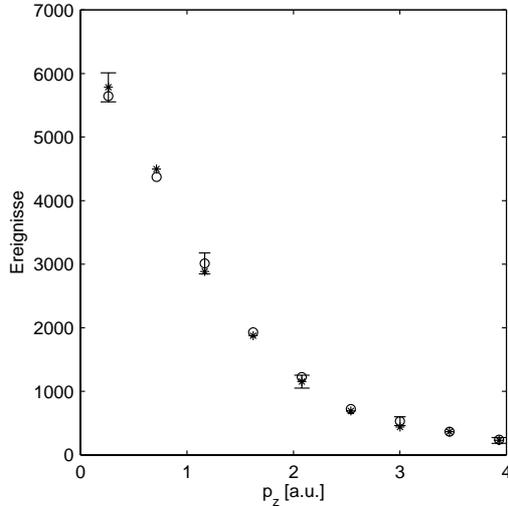


Abbildung 5.32: Die Impulsdichte $\rho(p_z)$ der beiden Proben an der Stelle $\sqrt{p_x^2 + p_y^2} = 0.5$ a.u.. Offene Kreise kennzeichnen die Daten des Schichtsystems, Sterne die der Legierung.

ferenz der beiden koinzidenten Comptonprofile des $\text{Cu}_{0.5}\text{Ni}_{0.5}$ Schichtsystems und der $\text{Cu}_{0.5}\text{Ni}_{0.5}$ Legierung gebildet, wobei die integrale Zählrate der beiden Messungen auf die gleiche Zahl normiert wurde. Diese Differenz soll mit der analogen experimentellen und der theoretischen Differenz aus der Veröffentlichung von Benedek et al. [116] verglichen werden.

Benedek et al. vergleichen experimentelle Comptonprofile von $\text{Cu}_x\text{Ni}_{1-x}$ Legierungen für $x = (0.40, 0.50, 0.55, 0.60, 0.65)$ sowie von reinem Kupfer und reinem Nickel mit der in Abschnitt 5.5.2 vorgestellten Theorie. Zum Vergleich mit der $(\gamma, e\gamma)$ -Messung wurde das experimentelle Comptonprofil der $\text{Cu}_{0.5}\text{Ni}_{0.5}$ Legierung Tabelle 1 dieser Veröffentlichung entnommen. Das Comptonprofil des $\text{Cu}_{0.5}\text{Ni}_{0.5}$ Schichtsystems wurde aus den Comptonprofilen für reines Kupfer und reines Nickel aus Tabelle 1 durch Mittelwertbildung berechnet. Die entsprechende theoretische Differenz wurde Figur 8 der gleichen Veröffentlichung entnommen. In dieser Abbildung ist die zweite Ableitung des Comptonprofils $J(p)$ nach der Kupferkonzentration x aufgetragen. Diese erhalten Benedek et al. analytisch aus der Anpassung der theoretischen Comptonprofile mit der Parametrisierung

$$J_{fit}(p, x) = a(p) + b(p)(x - 1/2) + c(p)(x - 1/2)^2 \quad (5.16)$$

mit den freien Parametern $a(p)$, $b(p)$ und $c(p)$, und es ergibt sich

$$\partial J_{fit}(p, x)/\partial x = 2c(p) \quad . \quad (5.17)$$

Gleichzeitig ergibt sich aus Gleichung (5.16)

$$1/2 (J_{fit}(p, 1) + J_{fit}(p, 0)) - J_{fit}(p, 0.5) = 1/4c(p) \quad (5.18)$$

und dies entspricht der Differenz zwischen dem Comptonprofil eines $\text{Cu}_{0.5}\text{Ni}_{0.5}$ Schichtsystems $1/2 (J_{fit}(p, 1) + J_{fit}(p, 0))$ und einer $\text{Cu}_{0.5}\text{Ni}_{0.5}$ Legierung $J_{fit}(p, 0.5)$.

Abbildung 5.33 zeigt die Differenz des koinzidenten Comptonprofils des $\text{Cu}_{0.5}\text{Ni}_{0.5}$ Schichtsystems und der $\text{Cu}_{0.5}\text{Ni}_{0.5}$ Legierung im Vergleich mit den entsprechenden theoretischen und experimentellen Differenzen von Benedek et al. [116]. Die koinzidenten

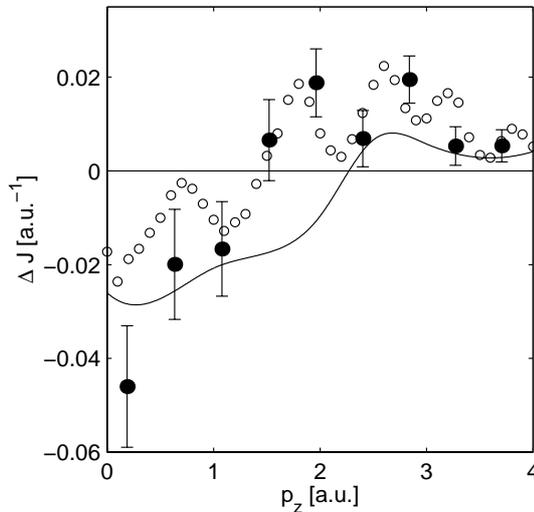


Abbildung 5.33: Die Differenz der koinzidenten Comptonprofile (Punkte) im Vergleich zu der entsprechenden theoretischen (durchgezogen) und experimentellen (offene Kreise) Differenz von Benedek et al. [116].

Comptonprofile wurden hierbei auf die absolute Anzahl von Elektronen innerhalb des Integrationsvolumen normiert. Dies wird möglich durch die Benutzung der Monte-Carlo Simulation indem das Verhältnis der Anzahl der bei dem gegebenen Aufbau detektierbaren Ereignisse mit der Gesamtanzahl der simulierten Streuprozesse verglichen wird. Ein Vergleich zwischen der Differenz der Comptonprofile und der der koinzidenten Comptonprofile ist trotz des unterschiedlichen Integrationsvolumen möglich, da die Differenzen aufgrund der Legierungsbildung ausschließlich durch Veränderungen der Valenzelektronendichte entstehen, welche sich innerhalb des Integrationsvolumen der koinzidenten Comptonprofile befinden und daher im gleichen Maße zu einem koinzidenten, wie zu einem nichtkoinzidenten Comptonprofil beitragen.

Mit dieser verbesserten Statistik ist deutlich ein Effekt der Legierungsbildung zu beobachten. Die beiden Messungen geben das Verhalten der Theorie in etwa wieder. Das grobe Verhalten der theoretischen Differenz für kleine Impulse wird von beiden Experimenten reproduziert. Die Position des Nulldurchgangs liegt bei der $(\gamma, e\gamma)$ -Messung bei einem kleineren Impuls als von der Theorie erwartet. Der Nulldurchgang der experimentellen Daten von Benedek et al. ist aufgrund der starken Oszillationen schwer zu bestimmen. Die Oszillation der experimentellen Differenz von Benedek et al. erklären die Autoren mit Artefakten, die durch benutzte numerische Methoden entstehen.

5.5.4 Zusammenfassung

Es wurden Elektronenimpulsdichten eines $\text{Cu}_{0.5}\text{Ni}_{0.5}$ Schichtsystems und einer $\text{Cu}_{0.5}\text{Ni}_{0.5}$ Legierung gemessen mit dem Ziel Veränderung der Impulsdichte aufgrund der Bildung einer ungeordneten Legierung zu messen. Die beiden Proben wurden auf ihre identische elementare Zusammensetzung und im Falle der Legierung auf vollständige Durchmischung der beiden Materialien mit ERDA und SIMS untersucht. Die Statistik der Messung war nicht ausreichend, um Effekte der Legierungsbildung in Impulsdichten zu beobachten. Die experimentellen Daten wurden daher zu koinzidenten Comptonprofilen

5.5 *Kupfer–Nickel Schichtsystem und Legierung*

zusammengefaßt und mit Ergebnissen einer theoretischen Berechnung im Rahmen des KKR–CPA Formalismus sowie mit experimentellen Comptonprofilen verglichen. Die Differenz der koinzidenten Comptonprofile reproduziert innerhalb des statistischen Fehlers die theoretische Differenz recht gut.

5 *Messungen und Resultate*

6 Zusammenfassung und Ausblick

Im Rahmen dieser Arbeit wurde an der “European Synchrotron Radiation Facility” ein vollständiges $(\gamma, e\gamma)$ -Spektrometer zur Messung der Elektronenimpulsdichte von Festkörpern aufgebaut. Das Detektorsystem dieses Spektrometers besteht aus einem Ge-Photonendetektor und einem 256-Pixel Elektronendetektor, welche mittels einer dafür konzipierten schnellen Elektronik koinzident ausgelesen werden. Der modulare Aufbau des Elektronendetektors und die Konzeption der Streukammer erlauben mehrere Möglichkeiten der Anpassung des Spektrometers an die experimentellen Anforderungen. Für die in dieser Arbeit beschriebene Konfiguration des Spektrometers ergab sich in den drei Komponenten des Elektronenimpulses eine Auflösung von $\sigma=(0.14, 0.38, 0.19)$ a.u..

Um die experimentellen Verteilungen auf einfache Art und Weise mit theoretischen Impulsdichten zu vergleichen, wurde ein Monte-Carlo Simulationsprogramm entwickelt, welches sowohl das Auflösungselement des Spektrometers als auch die Elektronenviel-fachstreuung berücksichtigt. Es konnte über den gesamten dreidimensionalen Impulsbereich eine sehr gute Übereinstimmung der experimentellen Verteilungen mit den Ergebnissen des Simulationsprogramms erzielt werden.

Es wurde die vollständige dreidimensionale Elektronenimpulsdichte einer $28 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ Aluminiumfolie gemessen. Die gemessenen Verteilungen wurden mit zwei theoretischen LMTO-Impulsdichten verglichen, welche in der “atomic sphere” (ASA), beziehungsweise der “full potential” (FP) Näherung durchgeführt wurden. Erwartungsgemäß zeigte die Rechnung in der “full potential” Näherung eine bessere Übereinstimmung mit den experimentellen Daten. Der Grund hierfür ist die korrektere Behandlung zwischenatomarer Bereiche durch dieses Näherungsverfahren. Weiterhin wurde untersucht, ob die verbleibenden Abweichungen der experimentellen von der theoretischen Impulsdichte durch Einbeziehung der Lam-Platzman Korrektur beschrieben werden können. Diese Korrektur berücksichtigt Elektronenaustausch- und Korrelationseffekte, die nicht in dem effektiven Potential zur Berechnung der Impulsdichte enthalten sind. Die so korrigierte theoretische Impulsdichte zeigte erneut eine verbesserte Übereinstimmung mit den experimentellen Verteilungen. Dennoch verbleiben Differenzen, die mit den vorgestellten Theorien nicht erklärt werden konnten.

Es wurden Messungen an einer $3 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ Graphitfolie und an einer $19 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ Fullereneprobe durchgeführt. Der Vergleich der Graphitmessungen mit einer empirischen Pseudopotentialrechnung und einer FP-LMTO Rechnung zeigte eine deutlich bessere Übereinstimmung der experimentellen Impulsdichten mit der FP-LMTO Rechnung. Dies hat seine Ursache in der unterschiedlich starken Ausprägung des lokalen Minimums bei $p = 0$ a.u. in den Beschreibungen durch die beiden Theorien. Die Fullerenemessung

wurde mit einer Molekularorbitalrechnung verglichen. Die experimentellen Daten zeigen eine sehr gute Übereinstimmung mit dieser Rechnung. Bemerkenswert ist hierbei, daß sich die Fullereneprobe auf einer Kohlenstoffsubstratfolie befand, deren Einfluß auf die experimentelle Impulsdichte durch das Monte–Carlo Programm korrekt reproduziert wurde. Es konnten zudem die Unterschiede zwischen den Impulsdichten von Graphit und Fullerenen verifiziert werden, welche durch den unterschiedlichen Charakter der Atombindungen entstehen.

Mit den Experimenten an einem $\text{Cu}_{0.5}\text{Ni}_{0.5}$ Schichtsystem und einer $\text{Cu}_{0.5}\text{Ni}_{0.5}$ Legierung konnte erstmals die dreidimensionalen Elektronenimpulsdichten eines zweiatomigen Systems mit $(\gamma, e\gamma)$ –Spektroskopie gemessen werden. Diese Daten wurden auf Effekte der Legierungsbildung auf die Impulsdichte untersucht und hierzu mit einer KKR–CPA Rechnung und einer Comptonprofilmessung verglichen. Innerhalb des statistischen Fehlers konnten jedoch keine Unterschiede zwischen den beiden gemessenen Impulsdichten festgestellt werden. Erst durch Bildung koinzidenter Comptonprofile konnten Legierungseffekte beobachtet werden. Die Ergebnisse stimmen innerhalb der immer noch recht großen statistischen Ungenauigkeit mit den Ergebnissen der KKR–CPA Rechnung überein.

Die statistische Genauigkeit der gemessenen Verteilungen sollte in zukünftigen Experimenten weiter verbessert werden. Bei den beschriebenen Experimenten mußte in mehreren Fällen ein koinzidentes Comptonprofil herangezogen werden, um kleine Effekte sichtbar zu machen. Diese wünschenswerte Erhöhung der Zählrate wird an der ESRF in Zukunft durch den Einsatz eines 13–Element Photonendetektors erreicht werden. Damit sollte zum Beispiel eine direkte Messung der Legierungseffekte eines Cu/Ni–Systems auf die Elektronenimpulsdichte möglich werden. Diese zukünftige Erhöhung der Zählrate bietet zudem die Möglichkeit, die experimentelle Auflösung in zumindest einer Komponente derart zu verbessern, daß sie in den Bereich hochauflösender Comptonpektrometer gelangt.

Es wurde in dieser Arbeit aufgezeigt, daß es durch den vorgestellten Monte–Carlo Code möglich ist die experimentellen Verteilungen mehratomiger Systeme und auf Substratfolien aufgetragener Proben korrekt zu simulieren. Dies erweitert in beträchtlichem Maße die für $(\gamma, e\gamma)$ –Spektroskopie geeigneten Proben. So wäre das Studium von $\text{Cu}_x\text{Ni}_{1-x}$ über einen größeren x –Bereich oder anderer ungeordneter Legierungen denkbar. Auch die Messung einkristalliner Proben sollte in Zukunft möglich sein. Dies würde in einem stärkeren Maße als bisher die Möglichkeit der Messung dreidimensionaler Impulsdichten ausnutzen.

7 Literaturverzeichnis

- [1] P. Hohenberg und W. Kohn, Phys.Rev. **163**, (1964).
- [2] F.F. Kurp, M. Vos, Th. Tschentscher, A.S. Kheifets, J.R. Schneider, E. Weigold und F. Bell, Phys. Rev. **B55**, 5440 (1997).
- [3] J. Mader, S. Berko, H. Krakauer und A. Bansil, Phys. Rev. Lett. **37**, 1232 (1976).
- [4] W. Schülke, G. Stutz, F. Wohlert und A. Kaprolat, Phys. Rev. **B54**, 12381 (1996).
- [5] A.H. Compton, Phys. Rev. **21**, 207 (1923).
- [6] J.W.M. DuMond, Phys. Rev. **33**, 643 (1929).
- [7] J.W.M. DuMond, Rev. Mod. Phys. **5**, 1 (1933).
- [8] M.J. Cooper, Rep. Prog. Phys. **48**, 415 (1985).
- [9] B. Williams, *Compton scattering* (McGraw–Hill, New York, 1977).
- [10] W. Bothe und H. Geiger, Z. Phys **32**, 639 (1925).
- [11] W. Bothe und H. Maier-Leibnitz, Z. Phys **102**, 143 (1936).
- [12] W.G. Cross und N.F. Ramsey, Phys. Rev. **80**, 929 (1950).
- [13] A.J. Rollason, F. Bell, J.R. Schneider und W. Drube, Solid State Commun. **72**, 297 (1989).
- [14] Th. Tschentscher, J.R. Schneider und F. Bell, Phys. Rev. **B48**, 16965 (1993).
- [15] F.F. Kurp, Th. Tschentscher, H. Schulte–Schrepping, J.R. Schneider und F. Bell, Europhys. Lett. **35**, 61 (1996).
- [16] Th. Tschentscher, Doktorarbeit, Fachbereich Physik der Universität Hamburg, 1993.
- [17] W. Kohn und P. Vashishta, in *Theory of the inhomogeneous electron gas*, edited by S. Lundqvist und N.H. March (Plenum Press, New York, 1983).
- [18] W. Kohn und L.J. Sham, Phys.Rev. **140**, (1965).

- [19] Ch. Kittel, *Einführung in die Festkörperphysik*, 10. Auflage (Oldenburg Verlag, München, 1993).
- [20] N.W. Ashcroft und N.D. Mermin, *Solid State Physics* (Holt–Saunders international editions, Philadelphia, 1976).
- [21] G.E.W. Bauer, Phys. Rev. **B27**, 5912 (1983).
- [22] L. Lam und P.M. Platzman, Phys. Rev. **B9**, 5122 (1974).
- [23] J.M. Jauch und F. Rohrlich, *The Theory of Photons and Electrons*, second expanded ed. (Springer–Verlag, Berlin, 1976).
- [24] R. Ribberfors, Phys. Rev. **B12**, 2067 (1975).
- [25] P. Eisenberger und W.A. Reed, Phys. Rev. **B9**, 3237 (1974).
- [26] P. Holm, Phys. Rev. **A37**, 3706 (1988).
- [27] F. Bell, A.J. Rollason, J.R. Schneider und W. Drube, Phys. Rev. **B41**, 4887 (1990).
- [28] F. Bell, Th. Tschentscher, J.R. Schneider und A.J. Rollason, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **24**, L 533 (1991).
- [29] M. Ito, S. Kishimoto, H. Kawata, H. Sakurai und F. Itoh, J. Synchr. Rad. **5**, 676 (1998).
- [30] F.F. Kurp, Doktorarbeit, Fachbereich Physik der Universität Hamburg, 1997.
- [31] M.Y. Puska und R.M. Nieminen, Rev. Mod. Phys. **66**, 841 (1994).
- [32] M. Vos, A.S. Kheifets, E. Weigold, S.A. Canney und F.F. Kurp, J. Electr. Spectr. Rel. Phenom. **87**, 231 (1998).
- [33] S. Berko und J.J. Mader, Appl. Phys. **5**, 287 (1975).
- [34] R.M. Singru, J. Phys. Chem. Solids **35**, 33 (1974).
- [35] A.A. Manuel, in *Positron Solid–State Physics*, Proceedings of the International School of Physics "Enrico Fermi", course LXXXIII, edited by W. Brandt und A. Dupasquier (North–Holland, Amsterdam, 1983).
- [36] A. Shukla, Ph.D. thesis, Faculté des Sciences de l'Université de Genève, 1995.
- [37] S. Berko, in *Positron Solid–State Physics*, Proceedings of the International School of Physics "Enrico Fermi", course LXXXIII, edited by W. Brandt und A. Dupasquier (North–Holland, Amsterdam, 1983).
- [38] I.E. McCarthy und E. Weigold, Rep. Prog. Phys. **54**, 789 (1991).
- [39] R. Jones und A.L. Ritter, J. Electr. Spectr. Rel. Phenom. **40**, 285 (1986).

- [40] ESRF, in *ESRF Beamline Handbook*, edited by R. Mason (ESRF User Office, Grenoble, 1995).
- [41] R.D. Schlueter, in *Synchrotron Radiation Sources*, edited by H. Winick (World Scientific, Singapore, 1995).
- [42] K. Wille, *Physik der Teilchenbeschleuniger und Synchrotronstrahlungsquellen* (B.G. Teubner, Stuttgart, 1992).
- [43] P. Suortti und K.-D. Liß, *ID15A Beamline Handbook* (ESRF, World Wide Web: http://www.esrf.fr/exp_facilities/ID15A/handbook/handbook.html, 1998).
- [44] P. Suortti und Th. Tschentscher, *Rev. Sci. Instr.* **66**, 1798 (1995).
- [45] J.R. Schneider, O.D. Goncalves, A.J. Rollason, U. Bonse und W. Zulehner, *Nucl. Instr. Meth.* **B29**, 661 (1988).
- [46] P. Suortti und W. Thomlinson, *Nucl. Instr. Meth.* **A269**, 639 (1988).
- [47] P. Suortti, D. Chapman, J.R. Schneider und Th. Tschentscher, *J. Appl. Cryst.* **25**, 432 (1992).
- [48] W.R. Leo, *Techniques for Nuclear and Particle Physics Experiments*, second revised ed. (Springer-Verlag, Berlin, 1994).
- [49] R. Singh, *Nucl. Instr. Meth.* **136**, 543 (1976).
- [50] CANBERRA, *Timing filter amplifier 2111 Operator's Manual* (PUBLISHER, ADDRESS, 1995).
- [51] G.F. Knoll, *Radiation detection and measurement* (Wiley, ADDRESS, 1989).
- [52] K. Hämäläinen, *Nucl. Instr. Meth.* **A297**, 521 (1990).
- [53] P.R. Bevington und D.K. Robinson, *Data Reduction and Error Analysis for the Physical Sciences*, 2nd ed. (McGraw-Hill, New York, 1992).
- [54] H. Raether, *Springer Tracts Mod. Phys.* (Springer, Heidelberg, 1965).
- [55] A.J. Rollason und M.B.J. Woolf, *J. Phys.: Condens. Matter* **7**, 7939 (1995).
- [56] F. Salvat, J.D. Martinez, R. Mayol und J. Parellada, *Comp. Phys. Commun.* **42**, 93 (1986).
- [57] F. Salvat, J.D. Martinez, R. Mayol und J. Parellada, *Phys. Rev.* **A36**, 467 (1987).
- [58] F. Salvat, *Phys. Rev.* **A43**, 578 (1991).
- [59] C. Metz, Th. Tschentscher, P. Suortti, A.S. Kheifets, R.D. Lun, T. Sattler, J.R. Schneider und F. Bell, *to be published in Phys. Rev. B*.

7 Literaturverzeichnis

- [60] B. Stroustrup, *Die C++ Programmiersprache*, zweite überarbeitete Auflage (Addison–Wesley, Bonn, 1992).
- [61] R. Dimper, in *ESRF Beamline Handbook*, edited by R. Mason (ESRF User Office, Grenoble, 1995).
- [62] W.A. Press, B.P. Flannery, S.A. Teukolsky und W.T. Vetterling, *Numerical Recipes* (Cambridge University Press, ADDRESS, 1986).
- [63] T. Adye, O. Dahl und H.-J. Trost, *Phys. Rev.* **D50**, 1283 (1994).
- [64] P. Suortti, Th. Buslaps, P. Fajardo, V. Honkimäki, M. Kretzschmer, U. Lienert, J.E. McCarthy, M. Renier, A. Shukla, Th. Tschentscher und T. Meinander, *submitted to J. Synchr. Rad.* (1998).
- [65] I.P. Batra und L. Kleinman, *J. Electron. Spectrosc. Relat. Phenom.* **33**, 175 (1984).
- [66] F.C. Fuggle, L.M. Watson, D.J. Fabian und S. Affrossman, *Surf. Science* **49**, 61 (1975).
- [67] S.A. Canney, M. Vos, A.S. Kheifets, X. Guo, I.E. McCarthy und E. Weigold, *Surface Science* **382**, 241 (1997).
- [68] W. Assmann, P. Hartung, H. Huber, P. Staat, H. Steffens und Ch. Steinhausen, *Nucl. Instr. Meth.* **B85**, 726 (1994).
- [69] W. Assmann, (1997), persönliche Mitteilung.
- [70] H.L. Skriver, *The LMTO Method* (Springer, Berlin, 1984).
- [71] S.Y. Savrasov, *Phys. Rev.* **B54**, 16470 (1996).
- [72] S.A. Canney, M. Vos, A.S. Kheifets, N. Clisby, I.E. McCarthy und E. Weigold, *J. Phys.: Condens. Matter* **9**, 1931 (1997).
- [73] C.F. Bunge, J.A. Barrientos und A.V. Bunge, *At. Data and Nucl. Data Tables* **53**, 113 (1993).
- [74] X. Guo, S. Canney, A.S. Kheifets, M. Vos, Z. Fangand, S. Utteridge, I.E. McCarthy und E. Weigold, *Phys. Rev.* **B54**, 17942 (1996).
- [75] U. von Barth und L. Hedin, *J. Phys.* **C5**, 1629 (1972).
- [76] H. Yasuhara und Y. Kawazoe, *Physica* **A85**, 416 (1976).
- [77] B.I. Lundqvist, *Phys. kondens. Materie* **7**, 117 (1968).
- [78] E. Daniel und S.H. Vosko, *Phys. Rev.* **120**, 2041 (1960).
- [79] B. Farid, V. Heine, G.E. Engel und I.J. Robertson, *Phys. Rev.* **B48**, 11602 (1993).

- [80] A.W. Overhauser, Phys. Rev. **B3**, 1888 (1971).
- [81] L.J. Lantto, Phys. Rev. **B22**, 1380 (1980).
- [82] B. Holm und U. von Barth, Phys. Rev. **B57**, 2108 (1998).
- [83] H. Yasuhara, Solid State Commun. **11**, 1481 (1972).
- [84] V.L. Moruzzi, J.F. Janak und A.R. Williams, *Calculated Electronic Properties of Metals* (Pergamon, New York, 1978).
- [85] L. Hedin, Phys. Rev. **139**, (1965).
- [86] B. Králik, P. Delaney und S.G. Louie, Phys. Rev. Lett. **80**, 4253 (1998).
- [87] S. Berko, M. Haghgoie und J.J. Mader, Phys. Lett. **63A**, 335 (1977).
- [88] L. Oberli, A.A. Manuel, R. Sachot, P. Descouts und M. Peter, Phys. Rev. **B31**, 6104 (1985).
- [89] D.A. Cardwell und M.J. Cooper, Phil. Mag. **B54**, 37 (1986).
- [90] D.A. Cardwell und M.J. Cooper, J. Phys.: Condens. Matter **1**, 9357 (1989).
- [91] H.W. Kroto, J.R. Heath, S.C. O'Brien, R.F. Curl und R.E. Smalley, Nature **318**, 162 (1985).
- [92] W.I.F. David, R.M. Ibberson, J.C. Matthewman, K. Prassides, T.J.S. Dennis, J.P. Hare, H.W. Kroto, R. Taylor und D.R.M. Walton, Nature **353**, 147 (1991).
- [93] W. Krätschmer, L.D. Lamb, K. Fostiropoulos und D.R. Huffman, Nature **347**, 354 (1990).
- [94] G. Dollinger, P. Maier-Komor und A. Mitwalski, Nucl. Instr. Meth. **A303**, 79 (1991).
- [95] Y. Lou, B. Johansson und R.M. Nieminen, J. Phys.: Condens. Matter **3**, 1699 (1991).
- [96] M. Vos, S.A. Canney, I.E. McCarthy, S. Utteridge, M.T. Michalewicz und E. Weigold, Phys. Rev. **B56**, 1309 (1997).
- [97] J. Moscovici, G. Loupiaz, S. Rabii, S. Erwin, A. Rassat und C. Fabre, Europhys. Lett. **31**, 87 (1995).
- [98] R.C. Haddon, Acc. Chem. Res. **25**, 127 (1992).
- [99] R. Taylor und D.R.M. Walton, Nature **363**, 685 (1993).
- [100] R. Chen, P. Trucano und R.F. Stewart, Acta Cryst. **A33**, 823 (1977).

7 Literaturverzeichnis

- [101] R.R. Lee, E.C. von Stetten, M. Hasegawa und S. Berko, *Phys. Rev. Lett.* **58**, 2363 (1987).
- [102] M. Hasegawa, T. Suzuki und M. Hirabayashi, *J. Phys. Soc. Japan* **37**, 85 (1974).
- [103] W.B. Pearson, *Electronic Band Structure and its Applications* (Pergamon, New York, 1958).
- [104] B.L. Györffy und G.M. Stocks, in *NATO Advanced Study Institute on Electrons in Disordered Metals and at Metallic Surfaces*, edited by P. Phariseau, B.L. Györffy und L. Scheire (Plenum Press, New York, 1979).
- [105] A. Almazouzi, M.-P. Macht, V. Naundorf und G. Naumann, *Phys. Rev.* **B54**, 857 (1996).
- [106] P.G. Shewmon, *Diffusion in Solids* (McGraw-Hill, New York, 1963).
- [107] A.E. Austin und N.A. Richard, *J. Appl. Phys.* **32**, 1462 (1961).
- [108] T.J. Renouf, *Phil. Mag.* **22**, 359 (1973).
- [109] J. Bernardini und J. Cabane, *Acta Met.* **21**, 1571 (1973).
- [110] M.-P. Macht und V. Naundorf, *J. Appl. Phys.* **53**, 7551 (1982).
- [111] K. Wittmaack, *Nucl. Instr. Meth.* **168**, 343 (1980).
- [112] B. Mozer und D.T. Keating, *Phys. Rev.* **175**, 868 (1968).
- [113] J. Vrijen und S. Radelaar, *Phys. Rev.* **B17**, 409 (1978).
- [114] A. Bansil, in *Positron Annihilation*, edited by P.G. Coleman, S.C. Sharma und L. Diana (North-Holland, Amsterdam, 1982).
- [115] J.S. Faulkner, in *Progress in Material Science*, edited by T. Massalski (Pergamon, New York, 1982).
- [116] R. Benedek, R. Prasad, S. Manninen, B.K. Sharma, A. Bansil und P.E. Mijna-rends, *Phys. Rev.* **B32**, 7650 (1985).
- [117] P.E. Mijna-rends und A. Bansil, *Phys. Rev.* **B13**, 2381 (1976).
- [118] P.E. Mijna-rends und A. Bansil, *Phys. Rev.* **B19**, 2912 (1976).
- [119] J. Koringa, *Physica* **13**, 392 (1947).
- [120] W. Kohn und N. Rostoker, *Phys. Rev.* **94**, 1111 (1954).
- [121] A. Bansil, R.S. Rao, P.E. Mijna-rends und L. Schwartz, *Phys. Rev.* **B23**, 3608 (1981).
- [122] A. Bansil, *Solid State Commun.* **16**, 885 (1975).

Danksagung

Bei meinem Doktorvater Prof. Friedhelm Bell möchte ich mich an dieser Stelle für die Betreuung meiner Arbeit und seine ständige Bereitschaft zu fördernden Diskussionen bedanken. Auch für seine Gastfreundschaft in München und seine zahlreichen Besuche in Grenoble möchte ich mich herzlichst bedanken.

Herrn Dr. Thomas Tschentscher gilt mein Dank zunächst dafür, daß er mir das Vertrauen für die Durchführung dieser Arbeit geschenkt hat und seine ständige Unterstützung, insbesondere während den Strahlzeiten, aber auch für viele gemeinsam verbrachte Stunden außerhalb der ESRF.

Als Doktorand in der High Energy Scattering Gruppe der ESRF konnte ich in hohem Maße von dem Fachwissen und der ausgezeichneten Atmosphäre in dieser Gruppe profitieren. Hier bedanke ich mich besonders bei Prof. Pekka Suortti, der diese gute Atmosphäre stets förderte und für die Durchführung meiner Arbeit die nötige Unterstützung an der ESRF gab. Auch bei allen anderen Mitgliedern der Gruppe und Praktikanten möchte ich mich herzlichst bedanken für zahlreiche Ratschläge und tatkräftige Hilfe. Eine hoffentlich vollständige Liste: Veijo Honkimäki, Abhay Shukla, Joanne McCarthy, Agnes Royer, Thomas Buslaps, Klaus-Dieter Liss, Michael Ohler, Rainer Hock, Mogens Kretzschmer, Anthony Mauro, Tommi Laukkanen.

Philippe Chappelet sowie den Herren Thillosen und Schürmann bin ich dankbar für die Unterstützung bei dem Aufbau und der Inbetriebnahme der Elektronik.

Bei den Mitarbeitern aus München möchte ich mich für die Bereitstellung der Proben und deren Charakterisierung bedanken, Frau D. Frischke aus dem Targetlabor der LMU für die Herstellung der Proben, Herrn Dr. W. Assmann für die ERDA Messungen und Herrn Dr. K. Wittmaack für die SIMS Messungen.

Für die Hilfe während den Strahlzeiten bin ich T. Sattler, Dr. F. Kurp und Dr. K. Höppner vom HASYLAB dankbar.

Dr. Anatoli Kheifets stellte freundlicherweise seine Rechnungen der Aluminium- und Graphit-Impulsdichten zur Verfügung und beantwortete viele Fragen während seines Aufenthalts in Grenoble.

Schließlich bedanke ich mich bei meinen Eltern dafür, daß sie mir das Studium der Physik ermöglicht haben und für alle Art der Unterstützung aus Deutschland während meines Aufenthalts in Frankreich.

Bettina danke ich für das aufmerksame Korrekturlesen. Und Cécile danke ich für all die anderen Dinge.

Lebenslauf

Christian Metz
geboren am 26. April 1968 in Mannheim

Schulbildung

1974-1978: Pestalozzi Grundschule, Mannheim

1978-1987: Liselotte-Gymnasium Mannheim

Juni 1987: Abitur

1/88-3/89: 15 Monate Grundwehrdienst

Studium

3/89-9/95: Physikstudium an der Universität Heidelberg

Dezember 1991: Vordiplom

September 1995: Diplom

Diplomarbeit:

“Messungen zur Bestimmung der β -Asymmetrie im
Neutronenzerfall mit PERKEO II”