



Forschungszentrum Karlsruhe
Technik und Umwelt

Wissenschaftliche Berichte
FZKA 5893

**Winkelaufgelöste ultraviolette
Photoemissionsrechnungen
an $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ und Sr_2RuO_4**

E. Seibel

Institut für Nukleare Festkörperphysik

April 1997

Forschungszentrum Karlsruhe

Technik und Umwelt

Wissenschaftliche Berichte

FZKA 5893

**Winkelaufgelöste ultraviolette Photoemissionsrechnungen
an $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ und Sr_2RuO_4**

Edmund Seibel

Institut für Nukleare Festkörperphysik

**Von der Fakultät für Physik der Universität Karlsruhe (TH)
genehmigte Dissertation**

Forschungszentrum Karlsruhe GmbH, Karlsruhe

1997

Als Manuskript gedruckt
Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor

Forschungszentrum Karlsruhe GmbH
Postfach 3640, 76021 Karlsruhe

ISSN 0947-8620

Winkelaufgelöste ultraviolette Photoemissionsrechnungen an $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ und Sr_2RuO_4

Zusammenfassung

Bei der Interpretation von winkelaufgelösten Photoemissionsmessungen (ARUPS) treten grundlegende Schwierigkeiten auf. Wir erklären am Beispiel von $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ und Sr_2RuO_4 die Struktur und Zusammensetzung von ARUPS-Meßkurven. Zunächst errechnen wir basierend auf Keldysh-Diagrammen aus LMTO-Bandstrukturdaten die ARUPS-Kurven in einer quantenfeldtheoretischen 1-Stufen-Rechnung. Durch die ausgezeichnete Übereinstimmung zwischen Messung und Rechnung beantwortet dann eine genaue Analyse der Rechnung alle wichtigen Fragen zu den Meßkurven. So werden Punkte wie Photonenenergieabhängigkeit der Normalmessung, Banddispersion, Bandamplituden und Peakbreiten geklärt. Zusätzlich geben wir nützliche Kriterien an, um aus ARUPS-Meßkurven die Fermioberfläche besser ablesen zu können.

Angle-resolved ultraviolet photo spectroscopy calculations of $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ and Sr_2RuO_4

Abstract

Without theoretical considerations it is impossible to interpret angle-resolved ultraviolet photo spectroscopy (ARUPS) measurements. In this work we present a theory proving able to provide such an interpretation and apply it to explain the structure and the composition of measured ARUPS curves of $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ and Sr_2RuO_4 . We calculate the ARUPS photocurrent on the basis of Keldysh-diagrams using bandstructure data in a one-step method. Due to the excellent agreement between theory and experiment we are in the position to explain all the details of the curves, especially the photon-energy-dependence of the measurements, the heights and widths of the peaks and their connection with banddispersions, characters of Bloch-states and electron lifetimes. In addition we derive useful criteria for determining the precise positions and shapes of the Fermisurfaces.

Inhaltsverzeichnis

1. Einleitung	1
2. ARUPS-Experiment.....	3
2.1 Prinzip.....	3
2.2 Energie- und Impulserhaltung bei ARUPS	4
2.3 Banddispersion und Fermifläche aus ARUPS-Messungen.....	5
3. Bestimmung der Bandstruktur	9
3.1 Vielteilchenschrodingergleichung	9
3.2 Dichtefunktionaltheorie	9
3.3 Bandstrukturmethoden.....	13
3.3.1 Allgemeines.....	13
3.3.2 KKR-Methode.....	13
3.3.3 LMTO-Methode	14
3.3.4 LMTO+SIC-Methode.....	15
3.3.5 Überprüfung der Bandstrukturergebnisse	16
3.4 Berechnung von Zustandsdichten, Fermienergie und Fermifläche	16
4. Bestimmung des Photostroms.....	18
4.1 Diagrammtechnik für nichtlineare Abweichungen vom thermo- dynamischen Gleichgewicht.....	18
4.2 Anwendung der Keldysh-Diagrammtechnik zur Berechnung des Photostroms.....	22
4.3 Bulk-ARUPS-Rechnung (BAR).....	25
4.4 Vielschicht-ARUPS-Rechnung (VAR)	29
4.5 Vielschicht-ARUPS-Rechnung (VAR) mit Festkörperpotential	32
4.6 Zusätzliche Effekte	39
5. YBa₂Cu₃O₇	45
5.1 Eigenschaften und Struktur	45
5.2 Bandstrukturergebnisse.....	47

5.3	ARUPS-Meßergebnisse.....	59
5.4	Berechnete ARUPS-Kurven.....	65
5.4.1	Bulk-ARUPS-Rechnung (BAR) zu der Messung von Sakisaka et al. mit LMTO+SIC-Daten	65
5.4.2	Vielschicht-ARUPS-Rechnung (VAR) zu der Messung von Sakisaka et al. mit LMTO+SIC-Daten	67
5.4.3	Vielschicht-ARUPS-Rechnung (VAR) mit Festkörperpotential zu der Messung von Sakisaka et al. mit LMTO+SIC-Daten.....	70
5.4.4	Selbstenergiekorrigierte ARUPS-Rechnung (SEKAR) zu der Messung von Sakisaka et al. mit LMTO+SIC-Daten.....	73
5.4.5	Analyse der Messung von Sakisaka et al.	75
5.4.6	Selbstenergiekorrigierte ARUPS-Rechnung (SEKAR) zu der Messung von Sakisaka et al. mit LMTO-Daten.....	81
5.4.7	Selbstenergiekorrigierte ARUPS-Rechnung (SEKAR) zu der Messung von Tobin et al. mit LMTO+SIC-Daten	84
5.4.8	Selbstenergiekorrigierte ARUPS-Rechnung (SEKAR) zu der Messung von Lui et al. mit LMTO+SIC- und LMTO-Daten	87
6.	Sr₂RuO₄	94
6.1	Eigenschaften und Struktur	94
6.2	Bandstrukturergebnisse.....	96
6.3	ARUPS-Meßergebnisse.....	105
6.4	Berechnete ARUPS-Kurven.....	110
6.4.1	Selbstenergiekorrigierte ARUPS-Rechnung (SEKAR) zu der Messung von Cummins et al. mit LMTO1-Daten	110
6.4.2	Selbstenergiekorrigierte ARUPS-Rechnung (SEKAR) zu der Messung von Lu et al. mit LMTO1-Daten	120
7.	Zusammenfassung der Ergebnisse	131
8.	Vergleich mit der Literatur	136

Anhang:

Anhang1: Eigenschaften der zeitabhängigen Greenschen Funktion.....	138
Anhang2: Umwandlung der zeitabhängigen Greenschen Funktionen in energieabhängige Greensche Funktionen	141
Anhang3: Ausführliche Herleitung der BAR-Formel	142
Anhang4: Symmetrieoperationen	147
Anhang5: Ausführliche Herleitung der VAR-Formel.....	151
Anhang6: Ausführliche Herleitung der VAR+FP-Formel	153
Anhang7: Selbstenergiematrix Σ_{jj}	162
Anhang8: Photonenenergieabhängigkeit der Vielschichtrechnung ohne Matrixelemente.....	166
Anhang9: Näherung der komplexen Selbstenergie	167

Literaturverzeichnis	169
-----------------------------------	------------

§1 Einleitung

Trotz intensiver Bemühungen innerhalb der letzten Jahre ist es noch nicht gelungen, eine vollständige Theorie der Supraleitung aufzustellen. Bevor man die elektrische Struktur der Supraleiter im supraleitenden Zustand verstehen kann, muß man zunächst deren Elektronenstruktur im normalleitenden Zustand genau und vollständig kennen. Also besteht eine wichtige Aufgabe darin, die Elektronenstruktur im normalleitenden Zustand zu messen. Dazu stehen uns eine Reihe von modernen Meßmethoden zur Verfügung, die spezifisch den besetzten- bzw. unbesetzten Anteil der Elektronenstruktur ausmessen. Am Institut für Nukleare Festkörperphysik INFP werden neben anderen Messungen wie NEXAFS (near-edge x-ray absorption fine structure) auch ARUPS (angle-resolved ultraviolet photo spectroscopy)- Messungen durchgeführt. Bei dieser Meßmethode wird nicht nur die Energie der Photoelektronen hochgenau gemessen, sondern zusätzlich auch noch deren Impuls. Dadurch enthalten die gemessenen Kurven Informationen über die komplette Banddispersion aller Bandelektronen, über den besetzten Anteil der Zustandsdichte und über die genaue Gestalt der Fermioberflächen. Die hohe Empfindlichkeit der ARUPS-Meßmethode für im Ultrahochvakuum gesplattene einkristalline Proben ermöglicht es sogar, die geringen Unterschiede der elektronischen Struktur zwischen normalleitendem und supraleitendem Zustand in Hochtemperatursupraleitern, wie z. B. $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$, zu messen. Leider verursacht die große Informationsdichte in den ARUPS-Kurven eine erhebliche Schwierigkeit: Die gemessenen Kurven lassen sich nur sehr schwer analysieren und in bestimmten Fällen kommt es zu krassen Fehlinterpretationen. Es stellt sich die Frage: Ist es möglich, ARUPS-Messungen mit einfachen Mitteln vollständig zu analysieren und damit möglichst viele Informationen über die Elektronenstruktur zu gewinnen? Die Aufgabe dieser Arbeit ist es, dieser Frage nachzugehen. Dazu werden zunächst aus Bandstrukturdaten ARUPS-Photoströme berechnet. Die ARUPS-Meßkurven sind äußerst oberflächenempfindlich. Da wir aber in erster Linie an der Elektronenstruktur des Bulks interessiert sind, werden wir versuchen, ohne spezielle Oberflächenzustände und nur unter Verwendung von Bulk-Daten eine gute Übereinstimmung der Rechenergebnisse mit den Messungen zu erhalten. Zudem erklären wir die Entstehung und Zusammensetzung der ARUPS-Kurven und beantworten alle wichtigen Fragen. Seit C. W. Chu und M. K. Wu¹ 1987 in $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ eine Sprungtemperatur von ca. 90 K beobachteten, hat dieses Material eine große Bedeutung in der Physik gewonnen. Zudem gibt es für dieses Material von verschiedenen Gruppen zahlreiche ARUPS-Messungen. Aus diesen Gründen wurde $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ als Beispiel für die vorliegende Arbeit gewählt. Zusätzlich bot sich, wegen seiner Isostruktur zu La_2CuO_4 , Sr_2RuO_4 an.

§2 ARUPS-Experiment (angle-resolved ultraviolet photo spectroscopy)

§2.1 Prinzip

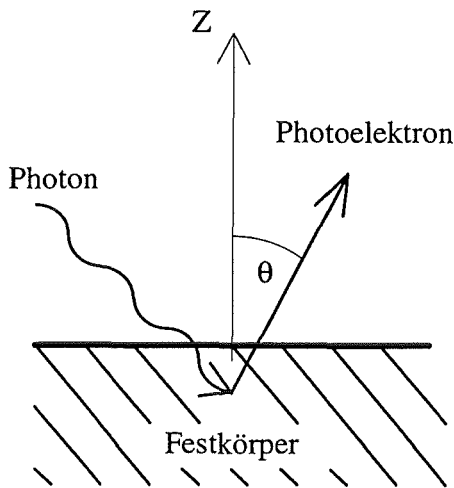


Abb. 2.1.1 Prinzip der Photoemission

Durch Beleuchten mit monochromatischem ultraviolettem Licht wird ein Festkörper zur Emission von Photoelektronen angeregt. Ein geeigneter Analysator mißt die kinetische Energie der Photoelektronen und durch die Platzierung des Analysators auch deren Impuls. Dadurch gewinnt man Informationen über die Elektronenstruktur im Festkörper.

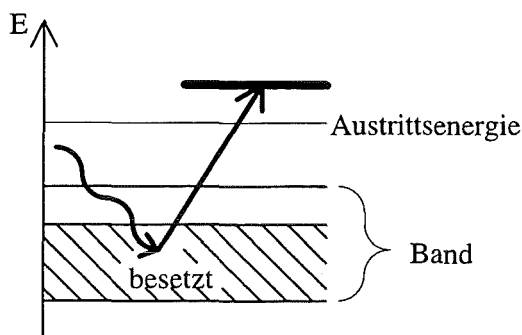


Abb. 2.1.2 Photoemission aus besetzten Bändern

Bei $T=0$ sind die Bänder eines Festkörpers bis zur Fermienergie vollständig mit Elektronen aufgefüllt, oberhalb der Fermienergie sind die Bänder unbesetzt. Die Bandelektronen absorbieren die eingestrahlenen Photonen, nehmen deren Energie auf und werden dadurch auf ein Energieniveau oberhalb der Austrittsenergie angehoben. Sie sind nicht mehr in einem gebundenen Zustand und verlassen den Festkörper.

In der Praxis haben sich zwei fundamental verschiedene Lichtquellen bewährt:

Synchrotron:

Das linear polarisierte Synchrotronlicht wird mit einem Monochromator auf ein schmales Frequenzband reduziert. Man erhält bei Photonenenergien um 25 eV eine Linienbreite von 5-10 meV. Die Photonenenergie kann durch den Monochromator einfach variiert werden.

Entladungslampe:

Bei der Neonlampe erzeugen die NeI-Linie bei 16,85 eV und die Satellitenlinie bei 16,67 eV unpolarisiertes Licht mit einer Linienbreite von ca. 3 meV. Bei dieser preiswerten Lichtquelle kann die Frequenz der Photonen nicht variiert werden.

Elektronenanalysator:

Zur Messung der Photoelektronen wird oft ein Halbkugelanalysator verwendet, dessen energieabhängige Empfindlichkeitskurve ungefähr die Form einer Gaußkurve hat. Die Halbwertsbreiten liegen im Bereich von 10-100 meV und die Winkelauflösung beträgt ca. 1°.

Um eine hohe Auflösung der ARUPS-Meßkurven zu erhalten, sollte die Linienbreite der Lichtquelle wesentlich kleiner sein als die Energieauflösung des Elektronenanalysators.

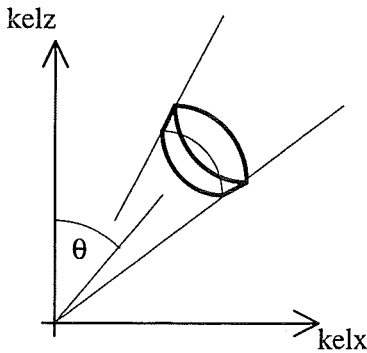


Abb. 2.1.3: k-Volumen der Photoelektronen

Die Impulse \vec{k}_{el} der analysierten Photoelektronen liegen alle in einem Bereich der Form eines Kegelstumpfs mit sphärisch gewölbter Grund- und Deckfläche. Die Energieauflösung des Analysators liefert eine Kugelschale und die Winkelauflösung schneidet daraus einen Kegel aus. Aufgrund der energieabhängigen Empfindlichkeitskurve des Analysators trägt aber nicht jedes Volumenelement aus diesem Bereich gleich viel zum gemessenen Photostrom bei.

§2.2 Energie- und Impulserhaltung bei ARUPS

Energieerhaltung (1) $\boxed{E_{el} = E_{\vec{q},\lambda} + E_{\gamma}}$

E_{el} = Photoelektronenenergie

$E_{\vec{q},\lambda}$ = Bandelektronenenergie

E_{γ} = Photonenenergie

Impulserhaltung (2) $\boxed{k_{elx} = q_x + k_{\gamma x} + G_x}$

\vec{k}_{el} = Photoelektronenimpuls

\vec{q} = Bandelektronenimpuls

$\boxed{k_{ely} = q_y + k_{\gamma y} + G_y}$

\vec{k}_{γ} = Photonenimpuls

\vec{G} = reziproker Gittervektor

Für die z-Komponenten der Impulse gilt kein so einfacher Zusammenhang. Dadurch kann z. B. nur der Schnitt der Fermioberfläche mit der (q_x, q_y) -Ebene ermittelt werden.

§2.3 Banddispersion und Fermifläche aus ARUPS-Messungen

Die korrekte Interpretation von ARUPS-Meßkurven ist schwierig, deshalb beginnen wir mit einer einfachen idealisierten ARUPS-Kurve. Darin wird der Photostrom über der Bandedelektroenenenergie angetragen. Den Elektronenanalysator denken wir uns vom Festkörper aus gesehen genau in x-Richtung positioniert. Die Photoelektronen haben also nur Impulse in x-Richtung. (Unser idealisierter Analysator hat eine sehr gute Winkelauflösung). Der x-Impuls steigt mit der kinetischen Energie an gemäß $E=k^2/2m$.

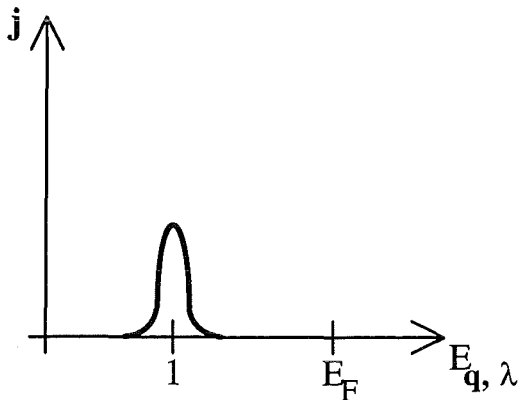


Abb. 2.3.1 Idealisierte ARUPS-Kurve

h. jede ARUPS-Meßkurve liefert pro Peak (Band) nur einen Punkt der Banddispersion.

Um die vollständige Dispersion eines Bandes zu ermitteln, muß man das Band durch die Brillouin-Zone verfolgen, indem man die Position des Elektronenanalysators variiert. Die beiden folgenden Bilder sollen das verdeutlichen:

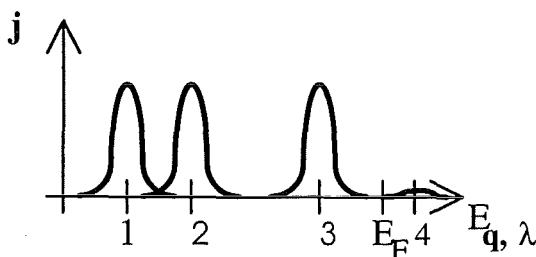


Abb. 2.3.2 4 Idealisierte ARUPS-Kurven

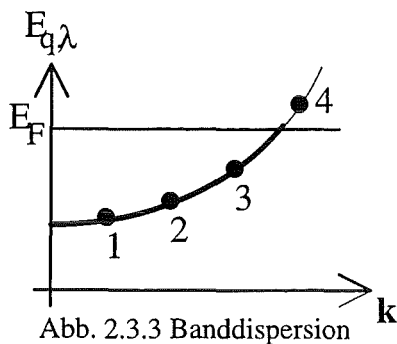


Abb. 2.3.3 Banddispersion

Diese idealisierte ARUPS-Kurve hat ein Peak an der Position E_1 . Wir ordnen dem Peak ein Band zu und lesen direkt den Energiewert bezüglich der Fermienergie aus der Kurve ab. Mit dem zugehörigen Photoelektronenimpuls und bekanntem Photonenimpuls gehen wir in die Impulserhaltungsgleichung (2) ein und erhalten bei verschwindendem Gittervektor den Bandedelektroenenimpuls. Damit haben wir einen Punkt in der Banddispersion $E(\vec{k})$ des Festkörpers ermittelt, d.

In Abb. 2.3.2 sind 4 ARUPS-Kurven übereinandergemalt.

Die erste Messung liefert einen Bandpeak bei E_1 und \vec{k}_1 . Um den Bandverlauf zu verfolgen, werden weitere Messungen mit veränderten Detektorpositionen durchgeführt. Aus den Meßkurven 2 und 3 lesen wir die Punkte 2 und 3 in der Banddispersion ab. In der vierten Meßkurve ist kein Bandpeak mehr vorhanden, d. h. das Band hat die Fermienergie überquert und ist unbesetzt. Punkt 4 liegt also in der Banddispersion oberhalb E_F . Die Fermienergie liegt damit irgendwo zwischen den Punkten \vec{k}_3 und \vec{k}_4 .

Bei realen ARUPS-Meßkurven ergeben sich zusätzliche Komplikationen:

- Oft ist es schwierig aus einer Meßkurve die exakte Peakposition abzulesen, weil die Bänder durch Selbstenergieeffekte verschmiert sind und zudem mit einer nicht zu vernachlässigenden Energieauflösung gemessen sind.
- Auch kann ein Peak in Wahrheit aus mehreren sich teilweise überlappenden eng beieinanderliegenden Bändern bestehen.
- Ein durch stark verschmierte energetisch tieferliegende Bänder verursachter Untergrund kommt erschwerend hinzu.
- Zur genauen Festlegung der Fermioberfläche reicht das Verschwinden eines Bandes nicht aus.

Wir betrachten nun die Kreuzung eines Bandes mit der Fermioberfläche genauer. Dabei gehen wir von einfachen idealisierten Annahmen aus, fügen Schritt für Schritt Verbesserungen ein und erhalten zuletzt eine realistische Beschreibung.

Prinzipiell sind zwei Größen besonders wichtig: Die Amplitude des Peaks und sein Wert bei $E=E_F$. Die hervorgehobene Kurve kennzeichnet immer den Schnitt des Bandes mit der Fermioberfläche. Die Zahlen sollen helfen das Band besser von links nach rechts zu verfolgen.

Begriffsdefinition: Die Höhe eines Peaks, die ein Band in einer ARUPS-Kurve erzeugt, nennen wir Bandamplitude.

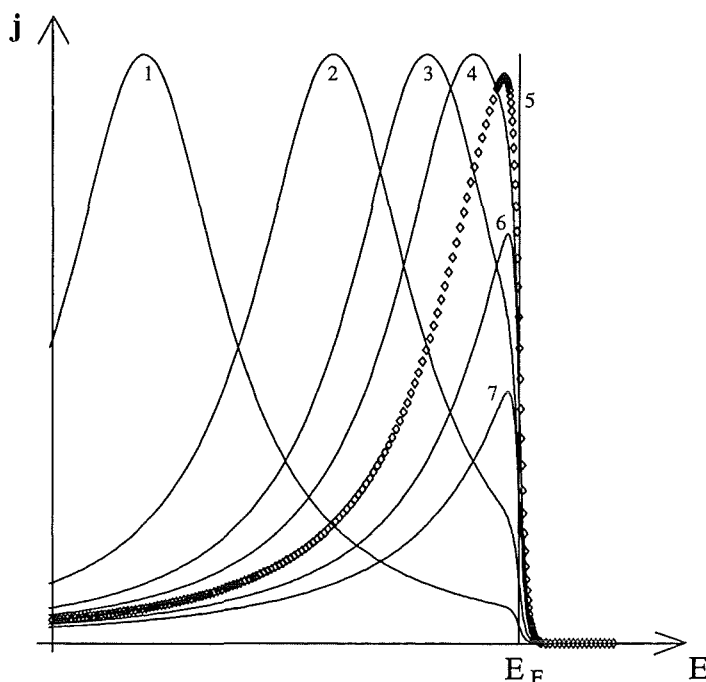


Abb. 2.3.4 Band kreuzt die Fermioberfläche

Annahme 1: $\text{Im}\Sigma = \text{konstant}$ $\Delta E = 0$
 Wir vernachlässigen die Energieauflösung des Detektors ΔE und setzen den Imaginärteil der Selbstenergie Σ des Bandes konstant. Der Peak läuft von links nach rechts mit fester Halbwertsbreite und konstanter Amplitude. Erst in der Nähe der Fermienergie wird er von der Fermifunktion abgeschnitten und die Amplitude sinkt etwas ab. Der Wert bei $E=E_F$ beträgt exakt 0,5 der Ursprungsamplitude.

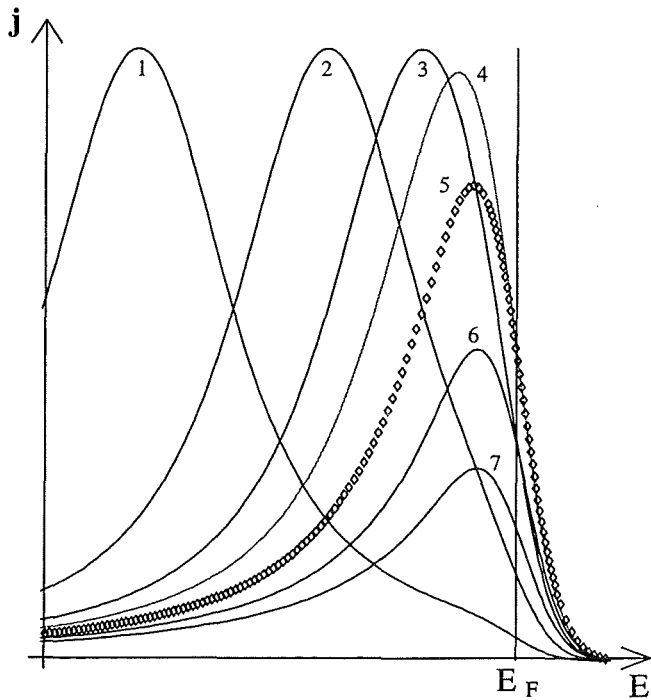


Abb. 2.3.5 Band kreuzt die Fermioberfläche

Band die Fermioberfläche schneidet (also bei $E < E_F$).

Annahme 2: $\text{Im}\Sigma = \text{konstant}$

Wir setzen nur noch den Imaginärteil der Selbstenergie Σ des Bandes konstant. Die Energieauflösung des Analysators verschmiert das Band. Dadurch ergeben sich folgende Änderungen der Kurvenform:

- Die Amplitude des Bandes um E_F nimmt stark ab (Die Fermifunktion schneidet z. B. den halben Peak ab, ΔE verschmiert den Rest bei Erhaltung der Fläche unter der Kurve und die Amplitude ist kleiner)
- Der Peak reicht weiter in den Bereich oberhalb E_F hinein.
- Der Wert bei $E = E_F$ beträgt weniger als 0,5 und ist maximal, kurz bevor das

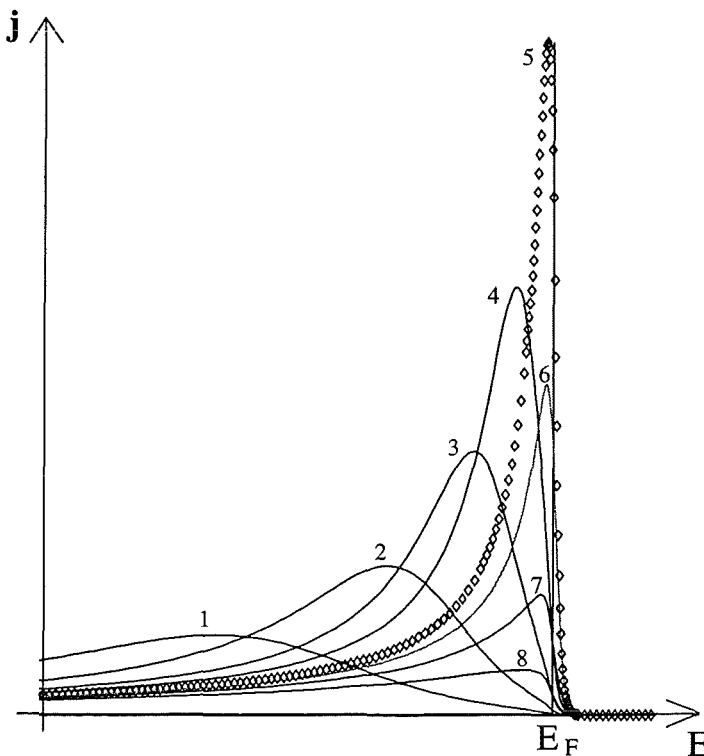


Abb. 2.3.6 Band kreuzt die Fermioberfläche

Der Wert bei $E = E_F$ beträgt deutlich mehr als 50% der Bandamplitude. Wenn das Band die Fermifläche schneidet, ist sowohl die Amplitude als auch der Wert der Meßkurve bei $E = E_F$ maximal.

Annahme 3: $\text{Im}\Sigma = \text{linear } \Delta E = 0$

In einem Übergangsmetall schließt sich nach einem energetisch sehr schmalen Bereich eines quadratischen Anstiegs des Imaginärteils der Selbstenergie ein großer stark strukturierter und materialabhängiger Bereich an. Für unsere Zwecke genügt es, einen einfachen linearen Anstieg für den ganzen Energiebereich zu wählen, d. h. der Imaginärteil der Selbstenergie steigt von der Fermienergie aus linear an. Je weiter das Band also von der Fermienergie entfernt ist, desto stärker verschmiert ist der Peak. Umgekehrt: Wenn sich das Band der Fermioberfläche nähert, wird der Peak schmaler und höher.

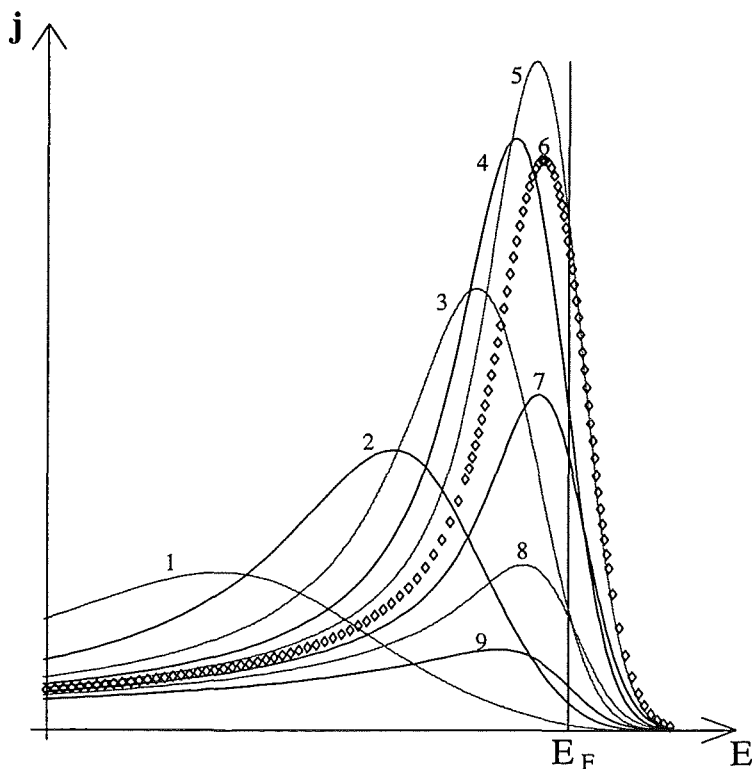


Abb. 2.3.7 Band kreuzt die Fermioberfläche

Annahme4:

$\text{Im}\Sigma = \text{linear } \Delta E = \text{konstant}$

Nun berücksichtigen wir Selbstenergie, Energieauflösung und Fermifunktion. Die Amplitude der Meßkurve ist bereits vor der Fermioberfläche maximal, sinkt bis zur Fermifläche leicht ab und fällt für $E > E_F$ sehr rasch auf kleine Werte ab.

Der Wert bei $E = E_F$ beträgt deutlich mehr als 50% der Bandamplitude. Bildet man den Quotient (Wert bei $E = E_F$)/Bandamplitude so steigt er für $E \rightarrow E_F$ rasch an, ist exakt bei E_F maximal und sinkt dann für wachsende $E > E_F$ langsam ab.

Der im Bereich der Fermienergie

durch tieferliegende Bänder verursachte Untergrund verkleinert den Quotienten. Der Quotient von Band und Untergrund wird also bei geringem Untergrund über 0,5 liegen und bei großem Untergrund deutlich tiefer liegen. Die Energieabhängigkeit des Quotienten (Anstieg, Maximum bei $E = E_F$ und Abfall) ist aber vom Untergrund unabhängig.

Wir empfehlen folgende Kriterien, um aus ARUPS-Kurven die Lage der Fermioberfläche zu bestimmen:

- Die Amplitude eines Bandes fällt stark ab, wenn es die Fermioberfläche überquert.
- Der Quotient $\frac{\text{Wert bei } E = E_F}{\text{Bandamplitude}}$ nimmt bis zu Fermifläche zu, ist dort maximal und fällt danach langsam ab.

Bandamplitude: Die Höhe eines Peaks, die ein Band in einer ARUPS-Kurve erzeugt.

§3 Bestimmung der Bandstruktur

§3.1 Vielteilchenschrodingergleichung

Um einen Festkörper quantenmechanisch exakt zu beschreiben, muß eine Vielteilchenwellengleichung gelöst werden. Mit

N_K = Anzahl der Kerne

N_e = Anzahl der Elektronen

hat diese Gleichung folgende Form:

$$\hat{H}|\Psi\rangle = E|\Psi\rangle$$

mit dem Hamiltonoperator: $\hat{H} = \hat{H}_e + \hat{H}_K + \hat{H}_{K-e}$

und

$$\hat{H}_e = -\sum_{i=1}^{N_e} \nabla_i^2 + \sum_{i=1}^{N_e} \sum_{\substack{j=1 \\ (j \neq i)}}^{N_e} \frac{1}{|\vec{r}_i - \vec{r}_j|}$$

Kinetische Energie der Elektronen und elektrostatische Wechselwirkung der Elektronen untereinander

$$\hat{H}_K = -\sum_{\alpha=1}^{N_K} \frac{m_e}{M_\alpha} \nabla_\alpha^2 + \sum_{\alpha=1}^{N_K} \sum_{\substack{\beta=1 \\ (\beta \neq \alpha)}}^{N_K} \frac{Z_\alpha Z_\beta}{|\vec{R}_\alpha - \vec{R}_\beta|}$$

Kinetische Energie der Kerne und elektrostatische Wechselwirkung der Kerne untereinander

$$\hat{H}_{K-e} = -2 \sum_{\alpha=1}^{N_K} \sum_{i=1}^{N_e} \frac{Z_\alpha}{|\vec{R}_\alpha - \vec{r}_i|}$$

Elektrostatische Wechselwirkung der Kerne und Elektronen untereinander.

Die totale Energie des Systems $E = \langle \Psi | \hat{H} | \Psi \rangle$ ist im Grundzustand $|\Psi_0\rangle$ minimal.

$$E_0 = \langle \Psi_0 | \hat{H} | \Psi_0 \rangle = \text{minimal}$$

Eine exakte Lösung dieser Gleichungen ist nicht möglich, da sich in einem Festkörper größenordnungsmäßig 10^{23} Teilchen befinden.

§3.2 Dichtefunktionaltheorie

Näherung: Die Kernpositionen werden fest vorgegeben ($\vec{R}_\alpha = \text{fest}$)

Kohn und Sham³ haben gezeigt, daß alle Größen eines paramagnetischen Elektronengases im Grundzustand ein eindeutiges Funktional des Erwartungswertes der

Elektronendichte $n(\vec{r})$ und äußerer Felder ist. Für ein Elektronengas im äußeren Potential $\Phi(\vec{r})$ ergibt sich für die Gesamtenergie E :

$$\boxed{E\{n\} = E_{kin}\{n\} + E_{\Phi}\{n\} + E_H\{n\} + E_{xc}\{n\}} \quad (1)$$

wobei $E_{kin}\{n\}$ die kinetische Energie eines Elektronengases der Dichte $n(\vec{r})$ ist.

$$E_{kin}\{n\} = \left\langle \Psi_0 \left| - \sum_{i=1}^{N_e} \nabla_i^2 \right| \Psi_0 \right\rangle \quad (2)$$

Dabei ist $|\Psi_0\rangle$ die Grundzustandswellenfunktion des Elektronengases.

$E_{\Phi}\{n\}$ ist das Potential des Elektronengases im äußeren Potential $\Phi(\vec{r})$

$$E_{\Phi}\{n\} = \int n(\vec{r})\Phi(\vec{r})d\vec{r} \quad (3)$$

$E_H\{n\}$ (Hartree-Term) ist die mittlere Coulomb-Abstoßung zwischen den Elektronen im Elektronengas

$$E_H\{n\} = \iint \frac{n(\vec{r})n(\vec{r}')}{|\vec{r} - \vec{r}'|} d\vec{r} d\vec{r}' \quad (4)$$

$E_{xc}\{n\}$ ist ein Austausch und Korrelationsterm, enthält also alle in den ersten drei Summanden nicht enthaltenen Beiträge.

Kohn und Sham haben gezeigt, daß die Energie des Grundzustandes einem Variationsprinzip genügt. Sie ist stationär und minimal bezüglich einer Änderung $\Delta n(\vec{r})$ der Dichte

$$\frac{dE(n)}{dn} = 0 \quad \text{mit der Nebenbedingung} \quad \int \delta n(\vec{r}) d\vec{r} = 0 \quad (5)$$

Außerdem läßt sich die Dichte durch einen Satz orthonormierter Einteilchenwellenfunktionen $|\varphi_i\rangle$ darstellen:

$$n(\vec{r}) = \sum_{i=1}^{N_e} |\varphi_i(\vec{r})|^2 \quad (6)$$

Damit lassen sich die folgenden **Einteilchenwellengleichungen** aufstellen:

$$\boxed{\left\{ -\frac{1}{2} \nabla^2 + \Phi(\vec{r}) + V_H(\vec{r}, n) + V_{xc}(\vec{r}, n) \right\} |\varphi_i\rangle = \varepsilon_i |\varphi_i\rangle} \quad (7)$$

ϵ_i ist der Energieeigenwert der i -ten Einteilchenbasisfunktion.
Die Coulombwechselwirkung mit den Kernen lautet:

$$\Phi(\vec{r}) = -2 \sum_{\alpha=1}^{N_k} \frac{Z}{|\vec{R}_\alpha - \vec{r}|} \quad (8)$$

Die Coulombwechselwirkung in Hartree-Näherung ist analog zu (4) für ein Teilchen im Elektronengas:

$$V_H(\vec{r}, n) = 2 \int \frac{n(\vec{r}')}{|\vec{r} - \vec{r}'|} d\vec{r}' \quad (9)$$

Für das Austausch und Korrelations-Potential $V_{XC}(\vec{r}, n)$ gilt:

$$V_{xc}(\vec{r}, n) = \frac{dE_{xc}(n)}{dn} \quad (10)$$

Bei bekanntem Austausch und Korrelations-Potential $V_{XC}(\vec{r}, n)$ kann nun das Problem iterativ bis zur Selbstkonsistenz gelöst werden:

- a Startpotential vorgeben
- b Einteilchenschrodingergleichung lösen und damit die $|\varphi_i\rangle$ und ϵ_i bestimmen
- c Dichte $n(\vec{r})$ aus $|\varphi_i\rangle$ berechnen
- d Neues Potential aus $n(\vec{r})$ berechnen und dem alten Potential beimischen

Ändert sich das Potential nicht mehr, so ist Selbstkonsistenz erreicht.

Das Hauptproblem liegt also noch in dem unbekanntem Austausch und Korrelations-Potential $V_{XC}(\vec{r}, n)$. Die häufigste und auch in dieser Arbeit verwendete Näherung für das Potential ist die **lokale Dichte Näherung LDA** (local-density-approximation).

Näherung: Die Austausch-Korrelationsenergie E_{XC} ist ein Integral über das Volumen des Festkörpers, dessen Integrand nur vom lokalen Wert der Dichte abhängt.

$$E_{xc}\{n\} \equiv \int n(\vec{r}) \epsilon_{xc}(n) d\vec{r} \quad (11)$$

$\epsilon_{xc}(n)$ ist die Austausch-Korrelationsenergie, die ein Teilchen in einem homogenen Elektronengas der Dichte $n=n(\vec{r})$ hätte. Damit hängt das Potential $V_{XC}(\vec{r}, n)$ ebenfalls nur noch von der lokalen Dichte $n(\vec{r})$ ab.

$$V_{xc}(\bar{r}, n(\bar{r})) \cong \frac{d}{dn} \left\{ n \varepsilon_{xc}(n) \right\} \Big|_{n=n(\bar{r})} \quad (12)$$

$\varepsilon_{xc}(n)$ ist numerisch berechenbar.

In der Parameterisierung von Hedin und Lundqvist lauten die Gleichungen für den Austauschteil:

$$\varepsilon_x(n) = -\frac{3e^2}{4\pi} \left(\frac{9\pi}{4} \right)^{1/3} \frac{1}{r_s} \quad \text{mit} \quad \frac{4\pi}{3} r_s^3 = \frac{1}{n} \quad \text{und} \quad V_x(n) = \frac{4}{3} \varepsilon_x(n)$$

und für den Korrelationsteil:

$$\varepsilon_c(n) = -0,045 \frac{e^2}{2} \left\{ \left(1 + x^3\right) \ln\left(1 + \frac{1}{x}\right) + \frac{x}{2} - x^2 - \frac{1}{3} \right\}$$

$$\text{mit } x = \frac{r_s}{21} \quad \text{und} \quad v_c(n) = -0,045 \frac{e^2}{2} \ln\left(1 + \frac{1}{x}\right)$$

§3.3 Bandstrukturmethoden

§3.3.1 Allgemeines

Die Lösung $\Psi_{\vec{q},\lambda}(\vec{r})$ der Einteilchenschrodingergleichung

$$\left(-\nabla^2 + V(\vec{r}) - E_{\vec{q},\lambda}\right)\Psi_{\vec{q},\lambda}(\vec{r}) = 0 \quad (13)$$

erfüllt die Blochbedingung

$$\Psi_{\vec{q},\lambda}(\vec{r} + \vec{R}) = e^{i\vec{q}\vec{R}}\Psi_{\vec{q},\lambda}(\vec{r}) \quad (14)$$

\vec{R} ist dabei ein beliebiger Gittervektor. Das ist eine Folge der Translationssymmetrie des Kristallpotentials $V(\vec{r} + \vec{R}) = V(\vec{r})$. Man kann sich also bei der Lösung der Einteilchenschrodingergleichung auf eine Wigner-Seitz-Zelle beschränken. Damit ist es günstig, die Ortsvektoren folgendermaßen zu zerlegen:

$$\vec{r} = \vec{R}_j + \vec{r}_\kappa + \vec{\rho} \quad (15)$$

\vec{R}_j zeigt auf die j-te Elementarzelle

\vec{r}_κ zeigt innerhalb der Elementarzelle auf das Atom κ

$\vec{\rho}$ ist der Ortsvektor innerhalb des Atoms κ

§3.3.2 KKR-Methode

Diese Methode der Behandlung des oben formulierten Problems wurde von Korringa, Kohn und Rostoker 1954 entwickelt^{4,5}.

Die Differentialgleichung (13) wird in eine Integralgleichung umgewandelt

$$\Psi_{\vec{q},\lambda}(\vec{\rho}, \kappa) = \sum_{\kappa'} \int d\vec{\rho}' G_{\vec{q}}(\vec{\rho} + \vec{\kappa} - \vec{\rho}' - \vec{\kappa}', E_{\vec{q},\lambda}) V(\vec{\rho}' + \vec{\kappa}') \Psi_{\vec{q},\lambda}(\vec{\rho}' + \vec{\kappa}') \quad (16)$$

dabei ist G die Greensche Funktion eines freien Teilchens mit der Blochschen Periodizitätsbedingung.

$$G_{\vec{q}}(\vec{\rho} + \vec{\kappa} - \vec{\rho}' - \vec{\kappa}', E_{\lambda}) = \sum_{\vec{G}_n} \frac{e^{i(\vec{q} + \vec{G}_n)(\vec{\rho} + \vec{\kappa} - \vec{\rho}' - \vec{\kappa}')}}{E_{\vec{q}, \lambda} - q^2 + i\eta}$$

\vec{G}_n sind die Translationsvektoren des reziproken Gitters.

Muffin-tin-Näherung:

Die Elementarzelle wird zerlegt in sphärisch symmetrische Bereiche um die Orte der Atomkerne. In diesen, sich nicht überlappenden Kugeln wird das Potential V kugelsymmetrisch angesetzt. Im restlichen Bereich der Elementarzelle, dem sogenannten interstitiellen Bereich, wird ein konstantes Potential angenommen.

$$V(\vec{r}) = V(|\vec{r}|) \quad \text{für } |\vec{r}| < \text{Muffin-tin-Radius}$$

$$V(\vec{r}) = \text{konstant} \quad \text{für } |\vec{r}| > \text{Muffin-tin-Radius}$$

Die Blochwellenfunktionen $\Psi_{\vec{q}, \lambda}$ werden nach reellen Kugelwellenfunktionen Y_{lm} entwickelt

$$\Psi_{\vec{q}, \lambda}(\vec{\rho}, \kappa) = \sum_{l=0}^{l_{\max}} \sum_{m=-l}^l c_{lm\kappa}^{\vec{q}\lambda} R_l(\rho, \kappa) Y_{lm}(\hat{\rho}) \quad (17)$$

R_l ist Lösung der radialen Schrödingergleichung

$$\left(-\frac{1}{\rho^2} \frac{d}{d\rho} \rho^2 \frac{d}{d\rho} + \Phi_{\text{eff}}(\rho, \kappa) - E \right) R_l(\rho, \kappa) = 0$$

und die Blochkoeffizienten $c_{lm\kappa}$ sind komplexe Zahlen.

Weitere mathematische Umformungen von Gleichung (16) im Rahmen der KKR-Methode führen auf ein nichtlineares Gleichungssystem für die Energieeigenwerte $E_{\vec{q}, \lambda}$. Dadurch ist die KKR-Methode mit einem erheblichen numerischen Aufwand verbunden.

§3.3.3 LMTO-Methode

Die LMTO (linear combination of muffin-tin orbitals) kann in gewisser Weise als linearisierte Formulierung der KKR angesehen werden und geht auf Arbeiten von Andersen⁷ zurück. Um ein nichtlineares Gleichungssystem zu vermeiden, wird die Radialwellenfunktion $R_l(\kappa, \rho, E)$ linear nach der Energie ε entwickelt.

$$R_l(\kappa, \rho, E_{\bar{q}, \lambda}) = R_l(\kappa, \rho, E_{0, \lambda}) + (E_{\bar{q}, \lambda} - E_{0, \lambda}) \left. \frac{\partial R_l(\kappa, \rho, E_{\bar{q}, \lambda})}{\partial E} \right|_{E=E_{0, \lambda}} \quad (18)$$

Da die Näherung um so schlechter wird, je weiter man sich energetisch von der Stützstelle $E_{0, \lambda}$ entfernt, werden häufig für aufeinanderfolgende Energiebereiche (panels) mehrere Stützstellen verwendet.

Die Kriterien für die Festlegung der Kugeln sind bei der LMTO andere als bei der KKR. In der LMTO muß die Summe der Volumina der Kugeln in einer Elementarzelle exakt gleich dem Volumen der Elementarzelle sein. Dadurch überlappen sich die ASA(atomic sphere approximation)-Kugeln, d. h. manche Volumenelemente werden doppelt gewichtet. Es gibt auch kleine Volumenbereiche, die nicht innerhalb einer Kugel liegen. Diese erhalten das Gewicht 0. Wichtig ist auch, daß innerhalb jeder Kugel in etwa Ladungsneutralität vorliegt. Wie in der KKR wird in jeder Kugel ein kugelsymmetrisches Potential angenommen. Für die Blochwellenfunktionen ergibt sich folgende Darstellung:

$$\Psi_{\bar{q}, \lambda} = \sum_{l=0}^{l_{\max}} \sum_{m=-l}^l \sum_{\nu=1}^2 c_{lm\kappa\nu}^{\bar{q}\lambda} R_{l\nu}(\rho, \kappa) Y_{lm}(\hat{\rho}) \quad (19)$$

Die Summe über ν berücksichtigt die lineare Entwicklung der Radialwellenfunktion.

§3.3.4 LMTO+SIC-Methode

Die LMTO+SIC (self-interaction-corrected) ist eine Modifikation der LMTO und geht, was ihre Anwendung in dieser Arbeit betrifft, auf Entwicklungen von W. M. Temmerman, Z. Szotek und H. Winter⁸ zurück. Der wesentliche Unterschied zur LMTO liegt in der Wahl der Zustände. Wurden in der LMTO alle Zustände durch ausgedehnte Blochwellenfunktionen beschrieben, werden in der LMTO+SIC einige dieser Zustände durch räumlich lokalisierte Wellenfunktionen ersetzt. Ein Problem dabei ist, durch physikalischen Sachverstand zu erkennen, welche Zustände des jeweiligen Festkörpers auf enge räumliche Bereiche beschränkt sind. Außerdem wird berücksichtigt, daß sich ein Elektron nicht wie bei der normalen LMTO im Potential aller Elektronen, sondern nur im Potential der anderen Elektronen bewegt. Diese Verbesserung bedingt eine deutliche Erhöhung des numerischen Aufwands, weil für jeden Zustand ein eigenes Potential selbstkonsistent berechnet werden muß.

§3.3.5 Überprüfung der Bandstrukturergebnisse

Die angeführten Bandstrukturmethoden sind mit erheblichem numerischen Aufwand verbunden und enthalten numerische Unsicherheiten. Deshalb ist es notwendig die Bandstrukturergebnisse auf ihre Richtigkeit zu überprüfen. So ist sichergestellt, daß die verwendeten numerischen Verfahren im ganzen Anwendungsbereich Gültigkeit haben und die benutzten Näherungsverfahren auch physikalisch sinnvolle Resultate liefern.

Prüfkriterien:

- Stetigkeit der Energiebänder $\varepsilon_{\bar{q},\lambda}$
- Stetigkeit und Differenzierbarkeit der Radialwellenfunktionen $R_{l,\nu}$
- Lage der Fermienergie E_F
- Erfüllen der Blochbedingung (Gleichung 14)
- Annähernde Ladungsneutralität der ASA-Kugeln bei LMTO
- Orthogonalität der Wellenfunktionen

$$\int_{Vol_{EZ}} d\bar{r} \Psi_{\bar{q},\lambda}(\bar{r}) \Psi_{\bar{q}',\lambda'}^*(\bar{r}) = \delta_{\lambda,\lambda'} \delta_{\bar{q},\bar{q}'}$$

- Vollständigkeit der Wellenfunktionen

$$\sum_{\lambda} \Psi_{\bar{q},\lambda}^*(\bar{r}) \Psi_{\bar{q},\lambda}(\bar{r}') = \delta(\bar{r} - \bar{r}')$$

§3.4 Berechnung von Zustandsdichten, Fermienergie und Fermifläche

Aus der Kenntnis der Banddispersion läßt sich die Zustandsdichte $Z(E)$ berechnen

$$Z(E) = 2 \sum_{\lambda} \int_{BZ} \frac{1}{Vol_{BZ}} \delta(E - E_{\bar{q},\lambda}) d\bar{q} \quad (20)$$

Wünscht man Informationen über die Zusammensetzung der Zustandsdichte, so berechnet man mit Hilfe der Blochkoeffizienten partielle Zustandsdichten.

Für KKR-Daten:

$$Z_{\lambda,\kappa,l,m}(E) = \int_{BZ} \frac{1}{Vol_{BZ}} \left| c_{lm\kappa}^{\bar{q}\lambda} \right|^2 \delta(E - E_{\bar{q},\lambda}) d\bar{q}$$

Für LMTO-Daten:

$$Z_{\lambda,\kappa,l,m}(E) = \int_{BZ} \frac{1}{Vol_{BZ}} \sum_{\nu=1}^2 |c_{lm\kappa\nu}^{\vec{q}\lambda}|^2 I_{l\kappa\nu} \delta(E - E_{\vec{q},\lambda}) d\vec{q} \quad \text{mit } I_{l\kappa\nu} = \int \rho^2 d\rho |R_{l\kappa\nu}(\rho)|^2 \quad (21)$$

Diese partiellen Zustandsdichten können beliebig aufaddiert werden. Benötigt man z. B. den Gesamtbeitrag der Zustandsdichte für $l=1$ und $m=0$ so summiert man einfach über die restlichen Indizes λ und κ .

Um die Fermienergie zu berechnen, füllt man die Zustandsdichte mit den Elektronen der Elementarzelle auf

$$N = \frac{1}{Vol_{EZ}} \int_{-\infty}^{E_F} Z(E) dE \quad (22)$$

N ist die Anzahl der Elektronen in der Elementarzelle (EZ).

Die Fermioberfläche ist durch die Punkte \vec{q} , welche die Bedingung $E_{\vec{q},\lambda} = E_F$ erfüllen, festgelegt. Falls diese für mehrere Bänder bereichsweise erfüllt ist, kann sie aus mehreren Schalen bestehen. Im Folgenden legen wir einen schmalen Energiebereich ΔE um E_F und ordnen alle Punkte \vec{q} , deren Bandenergie $E_{\vec{q},\lambda}$ innerhalb des schmalen Energiebereichs ΔE liegen, der Fermioberfläche zu. Dadurch kann aus der Strichbreite der Darstellung der Fermioberfläche in der Brillouinzone die Steilheit der Banddispersion um E_F ablesen werden.

§4 Bestimmung des Photostroms

§4.1 Diagrammtechnik für nichtlineare Abweichungen vom thermodynamischen Gleichgewicht

Bei der Photoemission verlassen fortwährend Elektronen den Festkörper. Dies führt zu einer nichtlinearen Abweichung vom thermodynamischen Gleichgewicht, wodurch spezielle Diagrammtechniken über die Feynmansche hinaus notwendig werden.

L. V. Keldysh⁹ hat 1965 mit seinen Keldysh-Diagrammen eine solche Technik entwickelt.

Diagrammentwicklung der Einteilchengreenfunktionen:

Wir führen eine Diagrammentwicklung an der Einteilchengreenfunktion

$$G(\vec{r}t, \vec{r}'t') = -i \langle T \Psi(\vec{r}, t) \Psi^\dagger(\vec{r}', t') \rangle \quad (23)$$

durch. T ist der Zeitordnungsoperator und $\psi(\mathbf{r}, t)$ Heisenbergfeldoperator. Dabei zerlegen wir den Hamiltonoperator in einen durch äußere Felder ungestörten Anteil H_0 und in einen durch die Störung verursachten Anteil H_i

$$H = H_0 + H_i$$

Mit der Dichtematrix $\rho(t)$ kann man die Mittelwerte von Operatoren $\Omega(t)$ berechnen

$$\langle \Omega(t) \rangle = \text{Spur}(\rho(t) \Omega_0(t))$$

Auf die Einteilchengreenfunktion angewendet liefert das:

$$G(\vec{r}t, \vec{r}'t') = -i \text{Spur}(\rho(t) T \Psi_0(\vec{r}, t) \Psi_0^\dagger(\vec{r}', t'))$$

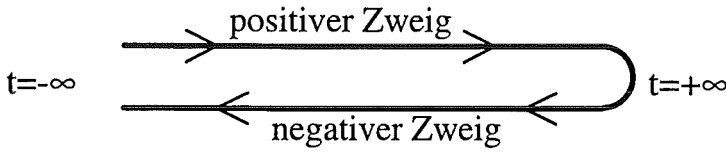
Nun drücken wir die zeitabhängige Dichtematrix $\rho(t)$ durch die Dichtematrix des ungestörten Systems $\rho_0(t=-\infty)$ aus

$$\rho(t) = S(t, -\infty) \rho_0 S(-\infty, t)$$

und ordnen um

$$G(\vec{r}t, \vec{r}'t') = -i \text{Spur}(\rho_0 S(-\infty, t) T(\Psi_0(\vec{r}, t) \Psi_0^\dagger(\vec{r}', t')) S(t, -\infty))$$

Die Zeit geht also von $-\infty$ über die beliebigen Zeitpunkte t, t' wieder auf $-\infty$ zurück.



Je nachdem auf welchem Zweig die Zeitpunkte t, t' liegen, erhalten sie ein + oder - als Index. Wir führen einen neuen Zeitordnungsoperator T_c ein, der entlang der obigen Zeitlinie ordnet und erhalten

$$G(\vec{r}t, \vec{r}'t') = -i \text{Spur} \left(\rho_0 T_c S(-\infty, t) \Psi_0(\vec{r}, t) S(t, t') \Psi_0^+(\vec{r}', t') S(t', t) S(t, -\infty) \right)$$

Damit wirkt die Störung nur noch in den S-Operatoren

$$\boxed{S(t, t') = T e^{-i \int_t^{t'} H_i(\tau) d\tau}} \quad (24)$$

Wir fassen die S-Operatoren zusammen, wobei wir beide Zweige vollständig mitnehmen

$$G(\vec{r}t, \vec{r}'t') = -i \text{Spur} \left(\rho_0 T_c S(-\infty, +\infty) \Psi_0(\vec{r}, t) \Psi_0^+(\vec{r}', t') S(+\infty, -\infty) \right)$$

Nun entwickeln wir beide Exponentialfunktion in den S-Operatoren und erhalten als erste Abweichung vom ungestörten Zustand einen Term quadratisch in H_i .

Analog zu Feynman-Graphen gibt es auch für Keldysh-Graphen Übersetzungsregeln:

- Jede Linie liefert eine Greenfunktion

$$\begin{aligned} - \rightarrow + & \quad \boxed{G^{-+}(\vec{r}t, \vec{r}'t') = -i \text{Spur} \left\{ \rho_0 T_c \left[\Psi_0(\vec{r}t_+) \Psi_0^+(\vec{r}'t'_-) \right] \right\}} \\ & \quad = i \left\langle \Psi_0(\vec{r}t) \Psi_0^+(\vec{r}'t') \right\rangle_0 \end{aligned} \quad (25)$$

$$\begin{aligned} + \rightarrow - & \quad \boxed{G^{+-}(\vec{r}t, \vec{r}'t') = -i \text{Spur} \left\{ \rho_0 T_c \left[\Psi_0(\vec{r}t_-) \Psi_0^+(\vec{r}'t'_+) \right] \right\}} \\ & \quad = -i \left\langle \Psi_0(\vec{r}t) \Psi_0^+(\vec{r}'t') \right\rangle_0 \end{aligned} \quad (26)$$

$$\begin{aligned}
+ \rightarrow + \quad & \boxed{G^{++}(\vec{r}t, \vec{r}'t') = -i \text{Spur} \left\{ \rho_0 T_c \left[\Psi_0(\vec{r}t_+) \Psi_0^+(\vec{r}'t'_+) \right] \right\}} \\
& = -i \left\langle T \Psi_0(\vec{r}t) \Psi_0^+(\vec{r}'t') \right\rangle_0
\end{aligned} \tag{27}$$

$$\begin{aligned}
- \rightarrow - \quad & \boxed{G^{--}(\vec{r}t, \vec{r}'t') = -i \text{Spur} \left\{ \rho_0 T_c \left[\Psi_0(\vec{r}t_-) \Psi_0^+(\vec{r}'t'_-) \right] \right\}} \\
& = -i \left\langle \tilde{T} \Psi_0(\vec{r}t) \Psi_0^+(\vec{r}'t') \right\rangle_0
\end{aligned} \tag{28}$$

\tilde{T} = Zeitoperator, der umgekehrt in der Zeit ordnet

- Jeder innere Punkt liefert ein Raumzeitintegral und eine dimensionslose Kopplungskonstante g

$$\int_{Vol} dV \int_{t=-\infty}^{+\infty} g dt$$

- Liegt der innere Punkt auf dem negativen Zeitzweig so liefert er ein Minuszeichen. Die 4 Greenschen Funktionen G^+ , G^- , G^{++} und G^{--} sind voneinander abhängig,

$$\boxed{G^{++}(\vec{r}t, \vec{r}'t') = \Theta(t-t') G^{+-}(\vec{r}t, \vec{r}'t') + \Theta(t'-t) G^{-+}(\vec{r}t, \vec{r}'t')} \tag{29}$$

$$\boxed{G^{--}(\vec{r}t, \vec{r}'t') = \Theta(t-t') G^{-+}(\vec{r}t, \vec{r}'t') + \Theta(t'-t) G^{+-}(\vec{r}t, \vec{r}'t')} \tag{30}$$

d. h. nur die beiden Greenschen Funktionen G^{+-} und G^{-+} sind voneinander unabhängig.

Im Grenzübergang $t \rightarrow t'$ gilt

$$\boxed{\lim_{t \rightarrow t'} G^{+-} - G^{-+} = i \delta(\vec{r} - \vec{r}')} \tag{31}$$

Summation über alle zur kompletten Greenschen Funktion beitragenden Diagramme führt zu einer Gleichung vom Typ einer Dysongleichung

$$\boxed{G(\vec{r}t, \vec{r}'t') = G_0(\vec{r}t, \vec{r}'t') + \iiint G_0(\vec{r}t, \vec{r}_1 t_1) \Sigma(\vec{r}_1 t_1, \vec{r}_2 t_2) G(\vec{r}_2 t_2, \vec{r}', t') d\vec{r}_1 d\vec{r}_2 dt_1 dt_2} \tag{32}$$

Oft ist es sinnvoll andere Greenfunktionen zu verwenden:

$$\boxed{G^A = -\Theta(t-t')(G^{-+} - G^{+-}) = G^{-+} + G^{++}} \tag{33}$$

$$\boxed{G^R = \Theta(t'-t)(G^{-+} - G^{+-}) = G^{-+} - G^{--} = G^{A*}} \tag{34}$$

Die Greenschen Funktionen G^A bzw. G^R charakterisieren die dynamischen Eigenschaften der Teilchen.

Die Funktion

$$F = G^{-+} + G^{+-}$$

charakterisiert die statische Verteilung der Teilchen.

Auch hier genügen 2 Funktionen zur vollständigen Beschreibung (G^A und F).

Im Anhang 1 leiten wir noch die folgenden Aussagen für $T=0$ her

$$\begin{array}{l} G^{-+} = 0 \text{ im Vakuum} \\ G^{+-} = 0 \text{ im Festkörper} \end{array}$$

§4.2 Anwendung der Keldysh-Diagrammtechnik zur Berechnung des Photostroms

C. Caroli¹⁰ gibt in seiner Arbeit über inelastische Effekte bei Photoemission für den Photostrom den folgenden Ausdruck an

$$\vec{j} = \frac{e\hbar^2}{m} \lim_{x \rightarrow x' \rightarrow \infty} (\partial_{\vec{x}'} - \partial_{\vec{x}}) G^{(2)}(\vec{x}, \vec{x}', t) \quad (35)$$

Der Index (2) bedeutet, daß in der Greenschen Funktion $G^{(2)}$ die Wechselwirkung mit dem Lichtfeld $\vec{A}(\vec{r}, t)$ quadratisch vorkommt. Um einen Ausdruck für die Greensche Funktion $G^{(2)}$ zu erhalten, malen wir zuerst das zugehörige Keldysh-Diagramm

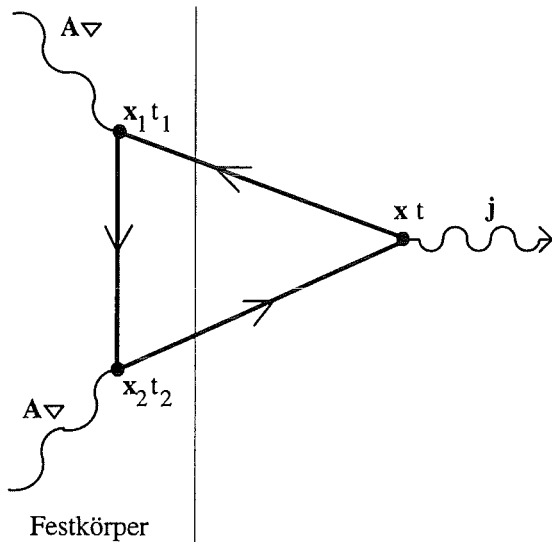


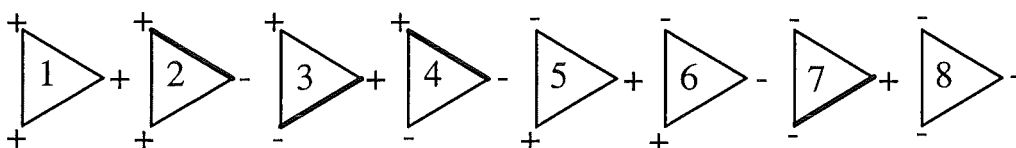
Abb. 4.2.1 Keldysh-Diagramm

Das eingestrahelte Licht wird im Festkörper an den Orten \vec{x}_1 und \vec{x}_2 absorbiert. Diese Absorption muß nicht gleichzeitig erfolgen. Dann verlassen die Elektronen den Festkörper und bewegen sich auf den Elektronenanalysator zu. Dieser steht an dem, verglichen mit dem Abstand der beiden Orte \vec{x}_1 und \vec{x}_2 , sehr weit entfernten Ort \vec{x} . Dort werden die Photoelektronen als Photostrom \vec{j} registriert.

Wir verwenden die Übersetzungsregeln für Keldysh-Diagramme, um ein Ausdruck für $G^{(2)}$ zu bekommen

$$G^{(2)}(\vec{x}, \vec{x}', t) = \iint d\vec{x}_1 d\vec{x}_2 \iint dt_1 dt_2 G(\vec{x}, \vec{x}_1, t, t_1) \hat{o}(\vec{x}_1, t_1) G(\vec{x}_1, \vec{x}_2, t_1, t_2) \hat{o}(\vec{x}_2, t_2) G(\vec{x}_2, \vec{x}', t_2, t)$$

Für jeden der 3 Punkte gibt es 2 Möglichkeiten (+ oder -). Daraus ergeben sich $2^3 = 8$ Summanden



Die Summanden 2,3,4,7 fallen wegen $G^{+}(t) = 0$ im Vakuum weg.
Mit den Identitäten (Gleichungen 29 und 30)

$$G^{++}(\vec{r}t, \vec{r}'t') = \Theta(t-t')G^{+-}(\vec{r}t, \vec{r}'t') + \Theta(t'-t)G^{-+}(\vec{r}t, \vec{r}'t')$$

$$G^{--}(\vec{r}t, \vec{r}'t') = \Theta(t-t')G^{-+}(\vec{r}t, \vec{r}'t') + \Theta(t'-t)G^{+-}(\vec{r}t, \vec{r}'t')$$

lassen sich die 4 Restsummanden zusammenfassen

$$\begin{array}{c} + \\ \triangle \\ + \end{array} 1 = \iint d\vec{x}_1 d\vec{x}_2 \int_{-\infty}^t dt_1 \int_t^{\infty} dt_2 G^{+-}(t, t_1) \hat{o}(t_1) G^{-+}(t_1, t_2) \hat{o}(t_2) G^{+-}(t_2, t)$$

$$\begin{array}{c} - \\ \triangle \\ + \end{array} 5 = -\iint d\vec{x}_1 d\vec{x}_2 \int_{-\infty}^{\infty} dt_1 \int_t^{+\infty} dt_2 G^{+-}(t, t_1) \hat{o}(t_1) G^{-+}(t_1, t_2) \hat{o}(t_2) G^{+-}(t_2, t)$$

$$\begin{array}{c} - \\ \triangle \\ + \end{array} 6 = -\iint d\vec{x}_1 d\vec{x}_2 \int_t^{+\infty} dt_1 \int_{-\infty}^{\infty} dt_2 G^{+-}(t, t_1) \hat{o}(t_1) G^{-+}(t_1, t_2) \hat{o}(t_2) G^{+-}(t_2, t)$$

$$\begin{array}{c} - \\ \triangle \\ - \end{array} 8 = \iint d\vec{x}_1 d\vec{x}_2 \int_t^{\infty} dt_1 \int_{-\infty}^t dt_2 G^{+-}(t, t_1) \hat{o}(t_1) G^{-+}(t_1, t_2) \hat{o}(t_2) G^{+-}(t_2, t)$$

Nun addieren wir die 4 Terme

$$\begin{aligned} G^{(2)}(\vec{x}, \vec{x}', t) &= -2 \iint d\vec{x}_1 d\vec{x}_2 \int_t^{\infty} dt_1 \int_t^{\infty} dt_2 G^{+-}(t, t_1) \hat{o}(t_1) G^{-+}(t_1, t_2) \hat{o}(t_2) G^{+-}(t_2, t) \\ &= -2 \iint d\vec{x}_1 d\vec{x}_2 \int_{-\infty}^{\infty} dt_1 \int_{-\infty}^{\infty} dt_2 G^{--}(t, t_1) \hat{o}(t_1) G^{-+}(t_1, t_2) \hat{o}(t_2) G^{++}(t_2, t) \end{aligned}$$

mit den Identitäten (Gleichung 33 und 34)

$$G^R = G^{-+} - G^{--} = -G^{--} \text{ im Vakuum}$$

$$G^A = G^{++} + G^{-+} = G^{++} \text{ im Vakuum}$$

ergibt sich

$$G^{(2)}(\vec{x}\vec{x}'t) = 2 \iint d\vec{x}_1 d\vec{x}_2 \int_{-\infty}^{\infty} dt_1 \int_{-\infty}^{\infty} dt_2 G^R(\vec{x}\vec{x}_1 t t_1) \hat{o}(\vec{x}_1 t_1) G^{-+}(\vec{x}_1 \vec{x}_2 t_1 t_2) \hat{o}(\vec{x}_2 t_2) G^A(\vec{x}_2 \vec{x}' t_2 t)$$

und für den Photostrom mit $\hat{o}(\vec{x}, t) = \vec{A}(\vec{x}, t)\vec{\nabla}$

$$\vec{j} = \frac{2e\hbar^2}{m} \lim_{x \rightarrow x' \rightarrow \infty} (\partial_{\vec{x}'} - \partial_{\vec{x}}) \iint d\vec{x}_1 d\vec{x}_2 \int_{-\infty}^{\infty} dt_1 \int_{-\infty}^{\infty} dt_2 G^R(\vec{x}, \vec{x}_1, t, t_1) \vec{A}(\vec{x}_1, t_1) \vec{\nabla}_1 G^{-+}(\vec{x}_1, \vec{x}_2, t_1, t_2) \vec{A}(\vec{x}_2, t_2) \vec{\nabla}_2 G^A(\vec{x}_2, \vec{x}', t_2, t) \quad (36)$$

In Anhang 2 wandeln wir durch Fourierintegration die zeitabhängigen Greenschen Funktionen in energieabhängige Greensche Funktionen um und erhalten Gleichung 38

$$\vec{j} = \frac{2e\hbar^2}{m} \lim_{x \rightarrow x' \rightarrow \infty} (\partial_{\vec{x}'} - \partial_{\vec{x}}) \iint d\vec{x}_1 d\vec{x}_2 \int \frac{d\omega}{2\pi} G^R(\vec{x}, \vec{x}_1, \omega) a\bar{\epsilon} e^{i\vec{k}_\gamma \vec{x}_1} \vec{\nabla}_1 G^{-+}(\vec{x}_1, \vec{x}_2, \omega - \omega_\gamma) a\bar{\epsilon} e^{-i\vec{k}_\gamma \vec{x}_2} \vec{\nabla}_2 G^A(\vec{x}_2, \vec{x}', \omega) \quad (38)$$

k_γ , ω_γ und ϵ sind Wellenzahl, Energie und Polarisationsvektor des eingestrahnten Photons

Nun können wir das Keldysh-Diagramm aus Abb. 4.2.1 anders malen

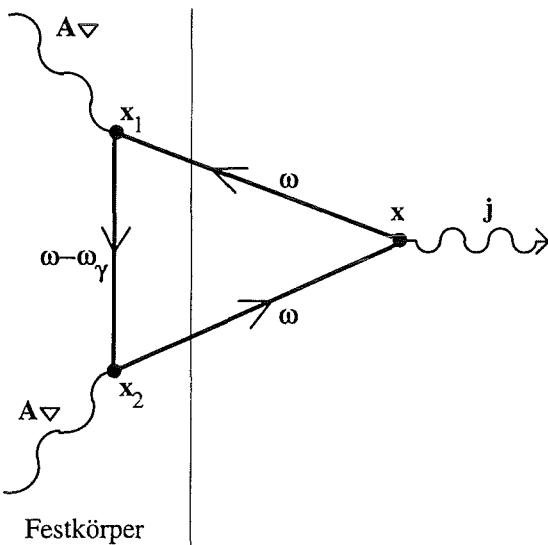


Abb. 4.2.2 Keldysh-Diagramm

Im Gegensatz zu Abb. 4.2.1 hängen die Greenschen Funktionen jetzt nicht mehr von der Zeit, sondern von der Energie ω bzw. $\omega - \omega_\gamma$ ab.

§4.3 Bulk-ARUPS-Rechnung (BAR)

In diesem Paragraphen leiten wir eine erste ARUPS-Formel für einen unendlich ausgedehnten Festkörper her. Darum nennen wir diese Rechnung BAR (Bulk-ARUPS-Rechnung). Im folgendem geben wir die wichtigsten Schritte der Herleitung an, eine ausführliche Herleitung der BAR-Formel steht im Anhang3.

In Gleichung 38 wenden wir uns zunächst G^R und G^A zu. P. J. Feibelman und D. E. Eastman geben in ihrer Veröffentlichung¹¹ unter Berücksichtigung des Festkörperpotentials Ausdrücke für G^R und G^A an. Wir verwenden diese beiden Ausdrücke zunächst ohne Festkörperpotential:

$$G^R = -\frac{1}{4\pi} \frac{e^{ik|\bar{x}-\bar{x}_1|}}{|\bar{x}-\bar{x}_1|} \text{ und } G^A = -\frac{1}{4\pi} \frac{e^{-ik|\bar{x}'-\bar{x}_2|}}{|\bar{x}'-\bar{x}_2|} \text{ mit } k^2=\omega$$

Näherung: Die Photoelektronen spüren kein Festkörperpotential.

Nun führen wir den Grenzübergang $\lim_{x \rightarrow x' \rightarrow \infty}$ durch und erhalten

$$\bar{j} \propto i\bar{k}^0 \iint d\bar{x}_1 d\bar{x}_2 \int d\omega \sqrt{\omega} e^{i\bar{k}(\bar{x}_2-\bar{x}_1)} e^{i\bar{k}_\gamma(\bar{x}_1-\bar{x}_2)} \bar{\epsilon} \bar{\nabla}_1 \bar{\epsilon} \bar{\nabla}_2 G^{-+}(\bar{x}_1, \bar{x}_2, \omega - \omega_\gamma) \quad (40)$$

Die Greensche Funktion G^{-+} ist gegeben durch

$$G^{-+}(\bar{x}_1, \bar{x}_2, \omega - \omega_\gamma) = -2i \text{Im} G^R(\bar{x}_1, \bar{x}_2, \omega - \omega_\gamma) f(\omega - \omega_\gamma - E_F) \quad (41)$$

wobei $f(\omega - \omega_\gamma - E_F) = \frac{1}{1 + e^{\omega - \omega_\gamma - E_F}}$ die Fermifunktion ist.

Wir führen lokale Ortskoordinaten ein:

$$\bar{x}_1 = \bar{R}_{j_1} + \bar{\kappa}_1 + \bar{\rho}_1 \text{ und } \bar{x}_2 = \bar{R}_{j_2} + \bar{\kappa}_2 + \bar{\rho}_2$$

\bar{R}_j zeigt auf die j-te Elementarzelle

$\bar{\kappa}$ zeigt innerhalb der Elementarzelle auf das Atom κ

$\bar{\rho}$ ist der lokale Ortsvektor innerhalb einer Atomkugel.

Näherung: Wir setzen den Kristall als periodisch in allen drei Richtungen an, d. h. der Kristall ist unendlich ausgedehnt und hat keine Oberfläche.

Mit der Blochfouriertransformation

$$\text{Im } G_{Bulk}^R(j_1, j_2, \kappa_1, \kappa_2, \bar{\rho}_1, \bar{\rho}_2) = \int e^{-i\bar{q}(\bar{R}_{j_2} - \bar{R}_{j_1})} \text{Im } G_{Bulk, \bar{q}}^R(\kappa_1, \kappa_2, \bar{\rho}_1, \bar{\rho}_2) \frac{d\bar{q}}{Vol_{BZ}} \quad (43)$$

reduzieren wir die Volumenintegrale auf eine Elementarzelle.

In dieser Form kann $\text{Im}G^R$ in Bandstrukturnäherung durch Blochwellenfunktionen ausgedrückt werden:

$$\text{Im } G_{Bulk, \bar{q}}^R(\kappa_1, \kappa_2, \bar{\rho}_1, \bar{\rho}_2, \omega - \omega_\gamma) = -\pi \sum_{\lambda} \Psi_{\bar{q}, \lambda}(\kappa_1, \bar{\rho}_1) \Psi_{\bar{q}, \lambda}^*(\kappa_2, \bar{\rho}_2) \delta(\omega - \omega_\gamma - E_{\bar{q}, \lambda}) \quad (44)$$

Die Deltafunktion drückt die Energieerhaltung $\boxed{\omega = E_{\bar{q}, \lambda} + \omega_\gamma}$ aus. Ein Festkörperelektron (Impuls $\hbar\bar{q}$, Energie $E_{\bar{q}, \lambda}$ aus dem Band λ) absorbiert ein Photon (Impuls $\hbar\bar{k}_\gamma$, Energie ω_γ) und erhält dadurch die Energie ω und den Impuls $\hbar\bar{k}$.

Einsetzen von (43) und (44) ergibt

$$\bar{j} \propto \bar{k}^0 \sum_{j_1, j_2, \kappa_1, \kappa_2} \iint d\bar{\rho}_1 d\bar{\rho}_2 \int d\omega \sqrt{\omega} e^{i(\bar{k} - \bar{k}_\gamma)(\bar{R}_{j_2} + \bar{\kappa}_2 + \bar{\rho}_2 - \bar{R}_{j_1} - \bar{\kappa}_1 - \bar{\rho}_1)} \bar{\epsilon}\bar{V}_1 \bar{\epsilon}\bar{V}_2 \int \frac{d\bar{q}}{Vol_{BZ}} e^{-i\bar{q}(\bar{R}_{j_2} - \bar{R}_{j_1})} \sum_{\lambda} \Psi_{\bar{q}, \lambda}(\kappa_1, \bar{\rho}_1) \Psi_{\bar{q}, \lambda}^*(\kappa_2, \bar{\rho}_2) \delta(\omega - \omega_\gamma - E_{\bar{q}, \lambda}) f(\omega - \omega_\gamma - E_F) \quad (44b)$$

Mit der Deltafunktion

$$\sum_{j_1, j_2} \frac{1}{Vol_{BZ}} e^{i(\bar{k}_\gamma + \bar{q} - \bar{k})(\bar{R}_{j_2} - \bar{R}_{j_1})} = \delta(\bar{k} - \bar{k}_\gamma - \bar{q} - \bar{G}) \quad (45)$$

erhalten wir den Impulserhaltungssatz

$$\hbar\bar{k} = \hbar\bar{q} + \hbar\bar{k}_\gamma + \hbar\bar{G}. \quad \bar{G} \text{ ist ein beliebiger reziproker Gittervektor.}$$

Nun können wir symmetrisch zum Betragsquadrat zusammenfassen

$$\bar{j} \propto \bar{k}^0 \int d\omega \sqrt{\omega} \sum_{\lambda} \int d\bar{q} \delta(\omega - \omega_{\gamma} - E_{\bar{q},\lambda}) f(\omega - \omega_{\gamma} - E_F) \delta(\bar{q} + \bar{G} + \bar{k}_{\gamma} - \bar{k}) \left| \sum_{\kappa} \int d\bar{\rho} e^{-i(\bar{k} - \bar{k}_{\gamma})(\bar{\kappa} + \bar{\rho})} \bar{\epsilon} \bar{\nabla} \Psi_{\bar{q},\lambda}(\kappa, \bar{\rho}) \right|^2$$

Damit ist die Realwertigkeit des Photostroms deutlich.

Der Elektronenanalysator hat eine endliche Winkelauflösung, es werden also immer Elektronen aus einem Raumwinkelbereich gemessen. Wir tragen diesem Sachverhalt Rechnung, indem wir über den Winkelbereich der Winkelauflösung integrieren $\int d\bar{\Omega}$.

Nun verwenden wir für die Blochwellenfunktionen $\Psi_{\bar{q},\lambda}$ die LMTO-Darstellung

$$\Psi_{\bar{q},\lambda} = \sum_{l=0}^{l_{\max}} \sum_{m=-l}^l \sum_{\nu=1}^2 c_{lm\kappa\nu}^{\bar{q}\lambda} R_{l\nu}(\rho, \kappa) Y_{lm}(\hat{\rho}) \quad (19)$$

und erhalten die Formel für die BAR (Gleichung 50)

$$\bar{j}_{BAR} \propto \bar{k}^0 \sum_{\lambda} \int_{\Delta BZ} d\bar{q} \delta(\omega - \omega_{\gamma} - E_{\bar{q},\lambda}) f(E_{\bar{q},\lambda} - E_F) |A|^2 \quad (50)$$

mit

$$A = \sum_{\kappa, l, m, \bar{l}, \bar{m}, \nu} (-i)^{\bar{l}} c_{lm\kappa\nu}^{\bar{q}\lambda} Y_{\bar{l}\bar{m}} \left((\bar{k} - \bar{k}_{\gamma})^0 \right) e^{i\bar{k}(\bar{k}_{\gamma} - \bar{k})} \int d\bar{\rho} \rho j_{\bar{l}}(|\bar{k} - \bar{k}_{\gamma}|\rho) \bar{\epsilon} \begin{pmatrix} G(lm, \bar{l}\bar{m}, 11) \\ G(lm, \bar{l}\bar{m}, 1-1) \\ G(lm, \bar{l}\bar{m}, 10) \end{pmatrix} \\ \left(\rho \frac{\partial}{\partial \rho} R_{l\nu}(\rho, \kappa) - l R_{l\nu}(\rho, \kappa) + (2l+1) R_{l\nu}(\rho, \kappa) \delta_{\bar{l}, l-1} \right)$$

$c_{lm\kappa\nu}^{\bar{q}\lambda}$ = Blochkoeffizient

Y_{lm} = reelle Kugelwellenfunktion

j_l = sphärische Besselfunktion

$G(lm, l' m', l'' m'') = \int d\hat{\rho} Y_{lm} Y_{l' m'} Y_{l'' m''} =$ Gauntzahl

$R_{l,\nu}$ = Bandradialwellenfunktion

$\bar{\epsilon}$ = Polarisationsvektor des eingestrahlten Lichts

λ = Bandnummer

κ = Atomnummer in der Elementarzelle

ΔBZ = Grob kegelförmiger Bereich aus der Brillouin-Zone (Siehe §2.1)

$\omega, \hbar\bar{k}$ = Energie und Impuls der Photoelektronen

$\omega_{\gamma}, \hbar\bar{k}_{\gamma}$ = Energie und Impuls der eingestrahlten Photonen

$E_{\bar{q},\lambda}$ = Bandenergien

$\hbar\bar{q}$ = Impuls der Bandelektronen im Festkörper

In dieser Gleichung werden die Blochkoeffizienten der ganzen Brillouin-Zone benötigt, während die Bandstrukturrechnung nur Blochkoeffizienten im irreduziblen Bereich liefert. Durch Symmetrieoperationen können aber die Blochkoeffizienten für die ganze Brillouin-Zone berechnet werden. Näheres über diese Symmetrieoperationen siehe Anhang 4.

§4.4 Vielschicht-ARUPS-Rechnung (VAR)

Wir nehmen an, der Kristall hat eine Oberfläche parallel zur xy-Ebene. Der Kristall ist nun in z-Richtung nicht mehr periodisch, also können wir in dieser Richtung keine Deltafunktion mehr einführen und erhalten somit auch keinen Zusammenhang mehr zwischen k_z und q_z . Der kleine, durch die Analysatorauflösung bedingte $\Delta\vec{k}$ -Bereich schränkt den z-Impuls q_z der Bandelektronen nicht mehr ein, so daß in z-Richtung über die ganze Brillouin-Zone integriert werden muß. Spaltet man den Festkörper an einer Stelle, so entstehen zwei Proben mit verschiedenen Oberflächen. Für jede Probe ist eine eigene Rechnung erforderlich. Die Photoelektronen können auf ihrem Weg durch den Festkörper durch inelastische Stöße Energie abgeben und können den Festkörper unter Umständen nicht mehr verlassen. Dadurch erreichen die Elektronen aus tieferen Schichten die Oberfläche nur selten und die ARUPS-Messung wird besonders bei geringen Photonenenergien ausgesprochen oberflächenempfindlich. Diese Abschwächung des Photostroms wird in dieser Arbeit durch eine komplexe Elektronenwellenzahl \vec{k} berücksichtigt.

Im folgendem geben wir die wichtigsten Schritte der Herleitung an. Eine ausführliche Herleitung der VAR-Formel steht im Anhang 5.

Wir beginnen bei Gleichung 44b aus §4.2

$$\bar{j} \propto \bar{k}^0 \sum_{j_1, j_2, \kappa_1, \kappa_2} \iint d\bar{\rho}_1 d\bar{\rho}_2 \int d\omega \sqrt{\omega} e^{i(\bar{k} - \bar{k}_\gamma)(\bar{R}_{j_2} + \bar{\kappa}_2 + \bar{\rho}_2 - \bar{R}_{j_1} - \bar{\kappa}_1 - \bar{\rho}_1)} \bar{\epsilon} \bar{V}_1 \bar{\epsilon} \bar{V}_2 \int \frac{d\bar{q}}{Vol_{BZ}} e^{-i\bar{q}(\bar{R}_{j_2} - \bar{R}_{j_1})} \sum_{\lambda} \Psi_{\bar{q}, \lambda}(\kappa_1, \bar{\rho}_1) \Psi_{\bar{q}, \lambda}^*(\kappa_2, \bar{\rho}_2) \delta(\omega - \omega_\gamma - E_{\bar{q}, \lambda}) f(\omega - \omega_\gamma - E_F) \quad (44b)$$

Die Probe ist senkrecht zur Oberfläche nicht mehr periodisch. Darum zerlegen wir die Vektoren in eine Komponente parallel zur Oberfläche (gekennzeichnet mit dem Index ") und eine Komponente senkrecht zur Oberfläche (gekennzeichnet mit '). Damit können wir die folgende Deltafunktion für die Komponente parallel zur Oberfläche aufstellen. Den Index j zerlegen wir ebenfalls in zwei Indizes: j" zählt die Elementarzellen einer Schicht parallel zur Oberfläche durch und j' zählt die Schichten senkrecht zur Oberfläche durch.

$$\sum_{j_1'', j_2''} \frac{1}{F_{xy}} e^{i(\bar{k}_\gamma'' + \bar{q}'' - \bar{k}'')(\bar{R}_{j_2}'' - \bar{R}_{j_1}'')} = \delta(\bar{k}'' - \bar{k}_\gamma'' - \bar{q}'' - \bar{G}'')$$

F_{xy} ist die Fläche des Schnitts der Brillouin-Zone mit der q_x - q_y -Ebene.

Wir erhalten den 2-dimensionalen Impulserhaltungssatz (In der z-Richtung läßt sich für eine endliche freie Weglänge der Photoelektronen kein solcher Zusammenhang formulieren):

$$\hbar \bar{k}'' = \hbar \bar{q}'' + \hbar \bar{k}_\gamma'' + \hbar \bar{G}'' \quad (51)$$

und den Photostrom

$$\begin{aligned} \bar{j} \propto \bar{k}^0 \sum_{j_1', j_2', \kappa_1, \kappa_2} \iint d\bar{\rho}_1 d\bar{\rho}_2 \int d\omega \sqrt{\omega e} e^{i(\bar{k} - \bar{k}_\gamma)(\bar{R}'_{j_2} + \bar{\kappa}_2 + \bar{\rho}_2 - \bar{R}'_{j_1} - \bar{\kappa}_1 - \bar{\rho}_1)} \bar{\epsilon} \bar{V}_1 \bar{\epsilon} \bar{V}_2 \int \frac{d\bar{q}}{B_z} e^{-i\bar{q}(\bar{R}'_{j_2} - \bar{R}'_{j_1})} \\ \sum_{\lambda} \Psi_{\bar{q}, \lambda}(\kappa_1, \bar{\rho}_1) \Psi_{\bar{q}, \lambda}^*(\kappa_2, \bar{\rho}_2) \delta(\omega - \omega_\gamma - E_{\bar{q}, \lambda}) f(\omega - \omega_\gamma - E_F) \delta(\bar{q}'' + \bar{G}'' + \bar{k}_\gamma'' - \bar{k}'') \end{aligned}$$

Nun fassen wir analog zu §4.2 symmetrisch zum Betragsquadrat zusammen, führen die endliche Winkelauflösung des Elektronenanalysators $\int d\bar{\Omega}$ ein und erhalten die Formel für die VAR (Gleichung 53 auf der folgenden Seite)

$$\vec{j}_{VAR} \propto \vec{k}^0 \sum_{\lambda} \int_{\Delta k_z} dk_z \int_{\Delta q_x} dq_x \int_{\Delta q_y} dq_y \int_{-\frac{B_z}{2}}^{+\frac{B_z}{2}} \frac{dq_z}{B_z} \delta(\omega - \omega_\gamma - E_{\vec{q},\lambda}) f(E_{\vec{q},\lambda} - E_F) |A|^2 \quad (53)$$

$$\text{mit } A = \sum_{j', \kappa, l, m, \tilde{l}, \tilde{m}, \nu} e^{iq_z R_{z,j'}} (-i)^{\tilde{l}} c_{lm\kappa\nu}^{\tilde{q}\lambda} Y_{\tilde{l}\tilde{m}} \left((\vec{k} - \vec{k}_\gamma)^0 \right) e^{i(\vec{R}'_{j'} + \vec{\kappa})(\vec{k}_\gamma - \vec{k})} \int d\rho \rho j_{\tilde{l}}(|\vec{k} - \vec{k}_\gamma| \rho) \left(\begin{array}{c} G(lm, \tilde{l}\tilde{m}, 11) \\ \bar{\epsilon} G(lm, \tilde{l}\tilde{m}, 1-1) \\ G(lm, \tilde{l}\tilde{m}, 10) \end{array} \right) \left(\rho \frac{\partial}{\partial \rho} R_{l\nu}(\rho, \kappa) - l R_{l\nu}(\rho, \kappa) + (2l+1) R_{l\nu}(\rho, \kappa) \delta_{\tilde{l}, l-1} \right)$$

$c_{lm\kappa\nu}^{\tilde{q}\lambda}$ = Blochkoeffizient

Y_{lm} = reelle Kugelwellenfunktion

j_l = sphärische Besselfunktion

$G(lm, l' m', l'' m'') = \int d\hat{\rho} Y_{lm} Y_{l' m'} Y_{l'' m''} =$ Gauntzahl

$R_{l,\nu}$ = Bandradialwellenfunktion

$\bar{\epsilon}$ = Polarisationsvektor des eingestrahnten Lichts

λ = Bandnummer

κ = Atomnummer in der Elementarzelle

B_z = Ausdehnung der Brillouin-Zone in z-Richtung

$\Delta k_z, \Delta q_x, \Delta q_y$ = Impulsauflösung des Elektronenanalysators / \hbar

j' = Schichtindex in z-Richtung (Eine Schicht hat die Dicke einer Elementarzelle)

$\vec{R}'_{j'}$ = Ort der j'-ten Schicht (Hat keine x,y-Komponenten)

$\omega, \hbar \vec{k}$ = Energie und komplexer Impuls der Photoelektronen

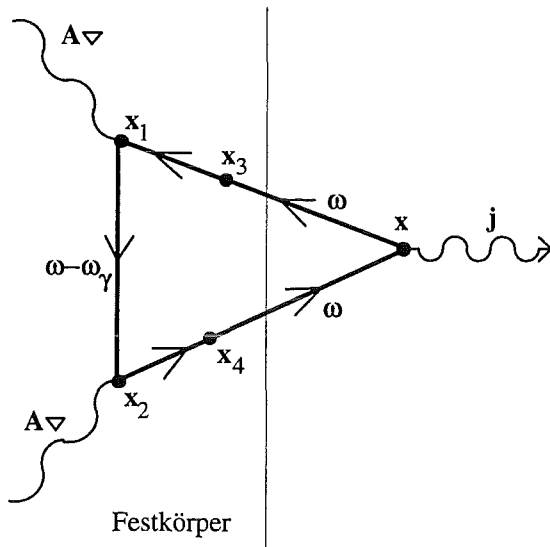
$\omega_\gamma, \hbar \vec{k}_\gamma$ = Energie und Impuls der eingestrahnten Photonen

$E_{\vec{q},\lambda}$ = Bandenergien

$\hbar \vec{q}$ = Impuls der Bandelektronen im Festkörper

In Gleichung 53 kommt bereits der Phasenfaktor $e^{-i(\vec{R}'_{j'} + \vec{\kappa})\vec{k}}$ vor. Im Verlauf der Arbeit wird sich herausstellen, daß dieser Phasenfaktor wesentlich die Struktur der ARUPS-Kurven beeinflusst.

§4.5 Vielschicht-ARUPS-Rechnung (VAR) mit Festkörperpotential



In diesem Abschnitt berücksichtigen wir einen weiteren Aspekt des Festkörpers. Innerhalb des Kristalls bewegt sich ein Photoelektron in einem durch seine Struktur festgelegten, periodischen Potential. Außerhalb des Festkörpers bleibt es weiterhin bei einem Potential $\equiv 0$. Das Festkörperpotential nähern wir selbstkonsistent.

Abb. 4.4.1 Keldysh-Graph der VAR+FP

Näherung: Wir setzen für den ganzen Festkörper ein Bulkpotential an, also keine veränderten Potentiale in Oberflächennähe. Außerdem hat unsere Oberfläche weder Versetzungslinien noch Unreinheiten.

Im folgendem geben wir die wichtigsten Schritte der Herleitung an, eine ausführliche Herleitung steht in Anhang 6.

Wir beginnen mit Gleichung 39

$$\bar{j} = \frac{2e\hbar^2}{m} \lim_{x \rightarrow x' \rightarrow \infty} (\partial_{\bar{x}'} - \partial_{\bar{x}}) \iint d\bar{x}_1 d\bar{x}_2 \int \frac{d\omega}{2\pi} G^R(\bar{x}, \bar{x}_1, \omega) a e^{i\bar{k}_\gamma \bar{x}_1} a e^{-i\bar{k}_\gamma \bar{x}_2} G^A(\bar{x}_2, \bar{x}', \omega) \bar{\epsilon} \bar{V}_1 \bar{\epsilon} \bar{V}_2 G^{-+}(\bar{x}_1, \bar{x}_2, \omega - \omega_\gamma)$$

und berücksichtigen in den beiden Greenschen Funktionen G^R und G^A das Festkörperpotential¹¹

$$G_{VAR+FP}^R = G_0^R(\bar{x}, \bar{x}_1, \omega) + \int_{FK} d\bar{x}_3 G_0^R(\bar{x}, \bar{x}_3, \omega) V(\bar{x}_3) G_{Bulk}^R(\bar{x}_3, \bar{x}_1, \omega) \quad (54)$$

$$G_{VAR+FP}^A = G_0^A(\bar{x}_2, \bar{x}', \omega) + \int_{FK} d\bar{x}_4 G_{Bulk}^A(\bar{x}_2, \bar{x}_4, \omega) V(\bar{x}_4) G_0^A(\bar{x}_4, \bar{x}', \omega) \quad (55)$$

$G_0^R(\bar{x}, \bar{x}_1, \omega)$ bzw. $G_0^A(\bar{x}_2, \bar{x}', \omega)$ sind die Lösungen für $V(\bar{x}) \equiv 0$

$$G_0^R = -\frac{1}{4\pi} \frac{e^{ik|\bar{x}-\bar{x}_1|}}{|\bar{x}-\bar{x}_1|} \text{ und } G_0^A = -\frac{1}{4\pi} \frac{e^{-ik|\bar{x}'-\bar{x}_2|}}{|\bar{x}'-\bar{x}_2|}$$

$V(\bar{x})$ ist das Festkörperpotential

$G_{Bulk}^R(\bar{x}_3, \bar{x}_1, \omega)$ bzw. $G_{Bulk}^A(\bar{x}_2, \bar{x}_4, \omega)$ sind die Lösungen im reinen Festkörperpotential

Die Raumintegrale erstrecken sich über den ganzen Festkörper.

Nun berechnen wir analog zu §4.3 ($\partial_{\bar{x}'} - \partial_{\bar{x}}$), führen den Grenzübergang $\lim_{x \rightarrow x' \rightarrow \infty}$ durch und erhalten

$$\bar{j} = \frac{2e\hbar^2 a^2}{16m\pi^2} \frac{\bar{x}^0}{|\bar{x}|^2} \iint d\bar{x}_1 d\bar{x}_2 \int \frac{d\omega}{2\pi} (-) 2ike^{i\bar{k}_\gamma(\bar{x}_1-\bar{x}_2)} \bar{\epsilon} \bar{\nabla}_1 \bar{\epsilon} \bar{\nabla}_2 G^{-+}(\bar{x}_1, \bar{x}_2, \omega - \omega_\gamma)$$

$$\left(e^{-ik\bar{x}^0\bar{x}_1} + \int_{FK} d\bar{x}_3 e^{-ik\bar{x}^0\bar{x}_3} V(\bar{x}_3) G_{Bulk}^R(\bar{x}_3, \bar{x}_1, \omega) \right) \left(e^{ik\bar{x}^0\bar{x}_2} + \int_{FK} d\bar{x}_4 e^{ik\bar{x}^0\bar{x}_4} V(\bar{x}_4) G_{Bulk}^A(\bar{x}_2, \bar{x}_4, \omega) \right) \quad (56)$$

Die Greensche Funktion G^{-+} ist gegeben durch

$$\boxed{G^{-+}(\bar{x}_1, \bar{x}_2, \omega - \omega_\gamma) = -2i \text{Im} G^R(\bar{x}_1, \bar{x}_2, \omega - \omega_\gamma) f(\omega - \omega_\gamma - E_F)} \quad (41)$$

wobei $f(\omega - \omega_\gamma - E_F) = \frac{1}{1 + e^{\omega - \omega_\gamma - E_F}}$ die Fermifunktion ist.

In den Veröffentlichungen ist der Abstand Probe-Analysator ($|\bar{x}|$) nicht angegeben, darum verzichten wir darauf, den Photostrom in absoluten Einheiten anzugeben.

Wir führen lokale Ortskoordinaten ein:

$$\bar{x}_1 = \bar{R}_j + \bar{\kappa}_1 + \bar{\rho}_1, \quad \bar{x}_2 = \bar{R}_j + \bar{\kappa}_2 + \bar{\rho}_2, \quad \bar{x}_3 = \bar{R}_j + \bar{\kappa}_3 + \bar{\rho}_3 \text{ und } \bar{x}_4 = \bar{R}_j + \bar{\kappa}_4 + \bar{\rho}_4$$

\bar{R}_j zeigt auf die j-te Elementarzelle

$\bar{\kappa}$ zeigt innerhalb der Elementarzelle auf das Atom κ

$\bar{\rho}$ ist der lokale Ortsvektor innerhalb einer Atomkugel.

In diesen Koordinaten hat der Photostrom folgende Form

$$\begin{aligned} \bar{j} \propto \bar{k}^0 \sum_{j_1, j_2, \kappa_1, \kappa_2} \iint d\bar{\rho}_1 d\bar{\rho}_2 \int d\omega \sqrt{\omega} e^{-i(\bar{k}_\gamma)(\bar{R}_{j_2} + \bar{\kappa}_2 + \bar{\rho}_2 - \bar{R}_{j_1} - \bar{\kappa}_1 - \bar{\rho}_1)} \bar{\epsilon} \bar{\nabla}_1 \bar{\epsilon} \bar{\nabla}_2 \\ \left(e^{-ik\bar{x}^0(\bar{R}_{j_1} + \bar{\kappa}_1 + \bar{\rho}_1)} + \sum_{j_3, \kappa_3} \int d\bar{\rho}_3 e^{-ik\bar{x}^0(\bar{R}_{j_3} + \bar{\kappa}_3 + \bar{\rho}_3)} V(\kappa_3, \bar{\rho}_3) G_{Bulk}^R(j_3, \kappa_3, \bar{\rho}_3, j_1, \kappa_1, \bar{\rho}_1, \omega) \right) \\ \left(e^{ik\bar{x}^0(\bar{R}_{j_2} + \bar{\kappa}_2 + \bar{\rho}_2)} + \sum_{j_4, \kappa_4} \int d\bar{\rho}_4 e^{ik\bar{x}^0(\bar{R}_{j_4} + \bar{\kappa}_4 + \bar{\rho}_4)} V(\kappa_4, \bar{\rho}_4) G_{Bulk}^A(j_2, \kappa_2, \bar{\rho}_2, j_4, \kappa_4, \bar{\rho}_4, \omega) \right) \\ \text{Im} G^R(j_1, j_2, \kappa_1, \kappa_2, \bar{\rho}_1, \bar{\rho}_2, \omega - \omega_\gamma) f(\omega - \omega_\gamma - E_F) \end{aligned} \quad (57)$$

Wir nähern $\text{Im}G^R$ durch $\text{Im}G_{Bulk}^R$, führen die Blochfouriertransformationen (43) von G_{Bulk}^R , G_{Bulk}^A und $\text{Im}G_{Bulk}^R$ durch und stellen $\text{Im}G_{Bulk, \bar{q}}^R$ durch Blochwellenfunktionen dar. Damit ergibt sich

$$\begin{aligned} \bar{j} \propto \bar{k}^0 \sum_{\lambda, j_1, j_2, \kappa_1, \kappa_2} \iint d\bar{\rho}_1 d\bar{\rho}_2 \int d\omega \sqrt{\omega} e^{-i\bar{k}_\gamma(\bar{R}_{j_2} + \bar{\kappa}_2 + \bar{\rho}_2 - \bar{R}_{j_1} - \bar{\kappa}_1 - \bar{\rho}_1)} \bar{\epsilon} \bar{\nabla}_1 \bar{\epsilon} \bar{\nabla}_2 \int \frac{d\bar{q}}{\text{Vol}_{BZ}} e^{-i\bar{q}(\bar{R}_{j_2} - \bar{R}_{j_1})} \\ \left(e^{-ik\bar{x}^0(\bar{R}_{j_1} + \bar{\kappa}_1 + \bar{\rho}_1)} + \sum_{j_3, \kappa_3} \int d\bar{\rho}_3 e^{-ik\bar{x}^0(\bar{R}_{j_3} + \bar{\kappa}_3 + \bar{\rho}_3)} V(\kappa_3, \bar{\rho}_3) \int \frac{d\tilde{q}}{\text{Vol}_{BZ}} e^{-i\tilde{q}(\bar{R}_{j_1} - \bar{R}_{j_3})} G_{Bulk, \tilde{q}}^R(\kappa_3, \bar{\rho}_3, \kappa_1, \bar{\rho}_1, \omega) \right) \\ \left(e^{ik\bar{x}^0(\bar{R}_{j_2} + \bar{\kappa}_2 + \bar{\rho}_2)} + \sum_{j_4, \kappa_4} \int d\bar{\rho}_4 e^{ik\bar{x}^0(\bar{R}_{j_4} + \bar{\kappa}_4 + \bar{\rho}_4)} V(\kappa_4, \bar{\rho}_4) \int \frac{d\hat{q}}{\text{Vol}_{BZ}} e^{i\hat{q}(\bar{R}_{j_2} - \bar{R}_{j_4})} G_{Bulk, \hat{q}}^A(\kappa_2, \bar{\rho}_2, \kappa_4, \bar{\rho}_4, \omega) \right) \\ \Psi_{\bar{q}, \lambda}(\kappa_1, \bar{\rho}_1) \Psi_{\bar{q}, \lambda}^*(\kappa_2, \bar{\rho}_2) \delta(\omega - \omega_\gamma - E_{\bar{q}, \lambda}) f(\omega - \omega_\gamma - E_F) \end{aligned}$$

Die Probe ist senkrecht zur Oberfläche nicht periodisch. Darum zerlegen wir die Vektoren in eine Komponente parallel zur Oberfläche (gekennzeichnet mit dem Index ") und eine Komponente senkrecht zur Oberfläche (gekennzeichnet mit '). Damit können wir die folgende Deltafunktion für die Komponente parallel zur Oberfläche aufstellen. Den Index j zerlegen wir ebenfalls in zwei Indizes: j" zählt die Elementarzellen einer Schicht parallel zur Oberfläche durch und j' zählt die Schichten senkrecht zur Oberfläche durch.

$$\sum_{j_1'', j_2''} \frac{1}{F_{xy}} e^{i(\bar{k}_\gamma'' + \bar{q}'' - \bar{k}'')(\bar{R}_{j_2}'' - \bar{R}_{j_1}'')} = \delta(\bar{k}'' - \bar{k}_\gamma'' - \bar{q}'' - \bar{G}'')$$

F_{xy} ist die Fläche des Schnitts der Brillouin-Zone mit der q_x - q_y -Ebene.

Auf jeden der 4 Summanden angewandt liefert den Impulszusammenhang

$$\boxed{\hbar\bar{k}'' = \hbar\bar{q}'' + \hbar\bar{k}_{\gamma}'' + \hbar\bar{G}''} \quad (51)$$

In der z-Richtung läßt sich kein solcher Zusammenhang formulieren, denn wegen der endlichen freien Weglänge λ der Photoelektronen tragen nur wenige Schichten zur den ARUPS-Kurven bei. Eine Summation über unendlich viele Schichten liefert eine Deltafunktion $\delta(k_z - k_{\gamma,z} - q_z - G_z)$ und damit einen festen Zusammenhang zwischen den z-Komponenten der Impulse von Photon, Photoelektron und Bandelektron. Endlich vielen Schichten dagegen liefern eine breitere Verteilung. Je geringer die Anzahl der zu summierenden Schichten ist, desto breiter wird die Verteilung. Es gibt zwar kein zwingender Zusammenhang mehr zwischen den z-Komponenten der Impulse, diese sind aber auch nicht voneinander unabhängig, sondern es besteht eine erhöhte Wahrscheinlichkeit, daß ein Photoelektron den z-Impuls $k_z = k_{\gamma,z} + q_z + G_z$ hat. Eine wichtige Folge davon ist, daß die Photoelektronen nicht von dem ganzen z-Bereich der Brillouin-Zone gleichmäßig emittiert werden, sondern daß die Emission im z-Bereich der Brillouin-Zone um $q_z = k_z - G_z - k_{\gamma,z}$ mit größerer Wahrscheinlichkeit erfolgt als im restlichen Bereich der Brillouin-Zone.

Aufgrund der endlichen Winkelauflösung des Elektronenanalysators kommt noch ein Raumintegral $\int d\bar{\Omega}$ hinzu.

Nun kann die VAR+FP mit der VAR verglichen werden. Die einzige Änderung ist im Betragsquadrat, also in A

$$A_{VAR+FP} = A_{VAR} + A_{Zusatz}$$

$$A_{VAR} = \sum_{j', \kappa} \int d\bar{\rho} e^{i\bar{k}_{\gamma}(\bar{R}'_{j'} + \bar{\kappa} + \bar{\rho})} e^{-i\bar{k}(\bar{R}'_{j'} + \bar{\kappa} + \bar{\rho})} e^{iq_z R'_{z,j'}} \bar{\epsilon} \bar{\nabla} \Psi_{\bar{q}, \lambda}(\kappa, \bar{\rho})$$

$$A_{Zusatz} = \sum_{j', \kappa} \int d\bar{\rho} e^{i\bar{k}_{\gamma}(\bar{R}'_{j'} + \bar{\kappa} + \bar{\rho})} e^{iq_z R'_{z,j'}} \bar{\epsilon} \bar{\nabla} \Psi_{\bar{q}, \lambda}(\kappa, \bar{\rho}) \cdot$$

$$\sum_{j_2, \kappa_2} \int d\bar{\rho}_2 e^{-i\bar{k}(\bar{R}'_{j_2} + \bar{\kappa}_2 + \bar{\rho}_2)} V(\kappa_2, \bar{\rho}_2) \int \frac{dq_{2,z}}{B_z} e^{-iq_{2,z}(\bar{R}'_{j_2} - \bar{R}'_{j_2})} {}_z G_{Bulk, \bar{q}_2}^R(\kappa_2, \bar{\rho}_2, \kappa, \bar{\rho}, \omega)$$

Als nächstes formen wir A_{Zusatz} weiter um:

G_{Bulk, \bar{q}_2}^R kann in Bandstrukturnäherung durch Blochwellenfunktionen ausgedrückt werden

$$G_{Bulk, \bar{q}_2}^R(\kappa_2, \bar{\rho}_2, \kappa, \bar{\rho}, \omega) = \sum_{\hat{\lambda}} \frac{\Psi_{\bar{q}_2, \hat{\lambda}}(\kappa_2, \bar{\rho}_2) \Psi_{\bar{q}_2, \hat{\lambda}}^*(\kappa, \bar{\rho})}{\omega - E_{\bar{q}_2, \hat{\lambda}} + i\eta} \quad (59)$$

Nun entwickeln wir $e^{-i\bar{k}\bar{\rho}_2}$,

$$e^{-i\bar{\rho}_2 \bar{k}} = 4\pi \sum_{\tilde{l}=0}^{\infty} \sum_{\tilde{m}=-\tilde{l}}^{\tilde{l}} (-i)^{\tilde{l}} j_{\tilde{l}}(|\bar{k}| \rho_2) Y_{\tilde{l}\tilde{m}}(\hat{\rho}_2) Y_{\tilde{l}\tilde{m}}(\bar{k}^0)$$

verwenden für die Blochwellenfunktionen $\Psi_{\bar{q}, \lambda}$ die LMTO-Darstellung

$$\Psi_{\bar{q}_2, \lambda} = \sum_{l=0}^{l_{\max}} \sum_{m=-l}^l \sum_{\nu=1}^2 c_{lm\kappa_2\nu}^{\bar{q}_2, \lambda} R_{l\nu}(\rho_2, \kappa_2) Y_{lm}(\hat{\rho}_2)$$

und erhalten

$$\begin{aligned} A_{Zusatz} &= \sum_{j', \kappa} \int d\bar{\rho} e^{i\bar{k}(\bar{R}'_j + \bar{\kappa} + \bar{\rho})} e^{iq_z R'_{zj} \bar{\epsilon} \bar{\nu}} \Psi_{\bar{q}, \lambda}(\kappa, \bar{\rho}) \sum_{j_2, \kappa_2} \int d\bar{\rho}_2 e^{-i\bar{k}(\bar{R}'_{j_2} + \bar{\kappa}_2)} \\ &4\pi \sum_{\tilde{l}=0}^{\infty} \sum_{\tilde{m}=-\tilde{l}}^{\tilde{l}} (-i)^{\tilde{l}} j_{\tilde{l}}(|\bar{k}| \rho_2) Y_{\tilde{l}\tilde{m}}(\hat{\rho}_2) Y_{\tilde{l}\tilde{m}}(\bar{k}^0) V(\kappa_2, \bar{\rho}_2) \int \frac{dq_{2,z}}{B_z} e^{-iq_{2,z}(\bar{R}'_j - \bar{R}'_{j_2})_z} \sum_{\hat{\lambda}} \frac{1}{\omega - E_{\bar{q}_2, \hat{\lambda}} + i\eta} \\ &\sum_{l_1=0}^{l_{1,\max}} \sum_{m_1=-l_1}^{l_1} \sum_{\nu_1=1}^2 c_{l_1 m_1 \kappa_2 \nu_1}^{\bar{q}_2, \hat{\lambda}} R_{l_1 \nu_1}(\rho_2, \kappa_2) Y_{l_1 m_1}(\hat{\rho}_2) \sum_{l_2=0}^{l_{2,\max}} \sum_{m_2=-l_2}^{l_2} \sum_{\nu_2=1}^2 c_{l_2 m_2 \kappa \nu_2}^{*\bar{q}_2, \hat{\lambda}} R_{l_2 \nu_2}(\rho, \kappa) Y_{l_2 m_2}(\hat{\rho}) \end{aligned}$$

Schließlich verwenden wir die Orthogonalität $\int d\hat{\rho} Y_{\tilde{l}\tilde{m}} Y_{l_1 m_1} = \delta_{\tilde{l} l_1} \delta_{\tilde{m} m_1}$, Gleichung 47

und die Gauntzahlen $G(lm, l_2 m_2, l' m') = \int d\hat{\rho} Y_{lm} Y_{l_2 m_2} Y_{l' m'}$ und erhalten damit die VAR+FP-Formel (Gleichung 60).

$$\bar{j}_{VAR+FP} \propto \bar{k}^0 \sum_{\lambda} \int_{\Delta k_z} dk_z \int_{\Delta q_x} dq_x \int_{\Delta q_y} dq_y \int_{-\frac{B_z}{2}}^{+\frac{B_z}{2}} \frac{dq_z}{B_z} \delta(\omega - \omega_{\gamma} - E_{\bar{q},\lambda}) f(E_{\bar{q},\lambda} - E_F) |A|^2 \quad (60)$$

mit

$$A = \sum_{\kappa, l, m, \nu} c_{lm\kappa\nu}^{\bar{q}\lambda} \sum_{j'} e^{iq_z R'_{z,j}} e^{i\bar{k}_{\gamma}(\bar{R}'_j + \bar{\kappa})} \{VAR + VARFP\}$$

mit

$$VAR = \sum_{\tilde{l}\tilde{m}} (-i)^{\tilde{l}} Y_{\tilde{l}\tilde{m}} \left((\bar{k} - \bar{k}_{\gamma})^0 \right) e^{-i\bar{k}(\bar{R}'_j + \bar{\kappa})} \bar{\epsilon} \begin{pmatrix} G(lm, \tilde{l}\tilde{m}, 11) \\ G(lm, \tilde{l}\tilde{m}, 1-1) \\ G(lm, \tilde{l}\tilde{m}, 10) \end{pmatrix} \int d\rho j_{\tilde{l}}(|\bar{k} - \bar{k}_{\gamma}|\rho) \left(\rho^2 \frac{\partial}{\partial \rho} R_{l\nu}(\rho, \kappa) - \rho l R_{l\nu}(\rho, \kappa) + \rho(2l+1) R_{l\nu}(\rho, \kappa) \delta_{\tilde{l}, l-1} \right)$$

und

$$VARFP = \sum_{l_2, m_2, \nu_2} \rho_{int2} \sum_{\tilde{l}, \tilde{m}, \tilde{\nu}, \tilde{\kappa}} \rho_{int3} q_{int}$$

mit

$$\rho_{int2} = \bar{\epsilon} \begin{pmatrix} G(lm, l_2 m_2, 11) \\ G(lm, l_2 m_2, 1-1) \\ G(lm, l_2 m_2, 10) \end{pmatrix} \int d\rho R_{l_2 \nu_2}(\rho, \kappa) \left(\rho^2 \frac{\partial}{\partial \rho} R_{l\nu}(\rho, \kappa) - \rho l R_{l\nu}(\rho, \kappa) + \rho(2l+1) R_{l\nu}(\rho, \kappa) \delta_{l_2, l-1} \right)$$

$$\rho_{int3} = \int d\tilde{\rho} \tilde{\rho}^2 V(\tilde{\rho}, \tilde{\kappa}) j_{\tilde{l}}(|\tilde{k}|\tilde{\rho}) R_{\tilde{l}, \tilde{\nu}}(\tilde{\rho}, \tilde{\kappa})$$

$$q_{int} = (-i)^{\tilde{l}} Y_{\tilde{l}\tilde{m}}(\bar{k}^0) \sum_{j'} e^{-i\bar{k}(\bar{R}'_j + \bar{\kappa})} \int_{-\frac{B_z}{2}}^{+\frac{B_z}{2}} \frac{d\tilde{q}_z}{B_z} e^{i\tilde{q}_z(\bar{R}'_j - \bar{R}'_j)} \sum_{\tilde{\lambda}} c_{\tilde{l}\tilde{m}\tilde{\kappa}\tilde{\nu}}^{\tilde{q}\tilde{\lambda}} c_{l_2 m_2 \kappa \nu_2}^{*\tilde{q}\tilde{\lambda}} \frac{1}{\omega - E_{\tilde{q}, \tilde{\lambda}} + i\eta}$$

$c_{lm\kappa\nu}^{\bar{q}\lambda}$ = Blochkoeffizient

Y_{lm} = reelle Kugelwellenfunktion

j_l = sphärische Besselfunktion

$G(lm, l' m', l'' m'') = \int d\hat{\rho} Y_{lm} Y_{l' m'} Y_{l'' m''} =$ Gauntzahl

$R_{l,\nu}$ = Bandradialwellenfunktion

$\bar{\epsilon}$ = Polarisationsvektor des eingestrahlten Lichts

λ = Bandnummer

κ = Atomnummer in der Elementarzelle

B_z = Ausdehnung der Brillouin-Zone in z-Richtung

$\Delta k_z, \Delta q_x, \Delta q_y$ = Impulsaufösung des Elektronenanalysators / \hbar

j' = Schichtindex in z-Richtung (Eine Schicht hat die Dicke einer Elementarzelle)

$R'_{z,j}$ = Ort der j'-ten Schicht (Hat keine x,y-Komponenten)

$\omega, \hbar \vec{k}$ = Energie und komplexer Impuls der Photoelektronen

$\omega_\gamma, \hbar \vec{k}_\gamma$ = Energie und Impuls der eingestrahnten Photonen

$E_{\vec{q},\lambda}$ = Bandenergien

$\hbar \vec{q}$ = Impuls der Bandelektronen im Festkörper

$V(\vec{\rho}, \vec{\kappa})$ = Festkörperpotential (Liefere die Bandstrukturprogramme)

Noch einige Bemerkungen:

- In der Greenschen Funktion $G_{Bulk,\vec{q}}^R$

$$G_{Bulk,\vec{q}}^R(\vec{\kappa}, \vec{\rho}, \kappa, \bar{\rho}, \omega) = \sum_{\vec{\lambda}} \frac{\Psi_{\vec{q},\vec{\lambda}}(\vec{\kappa}, \vec{\rho}) \Psi_{\vec{q},\vec{\lambda}}^*(\kappa, \bar{\rho})}{\omega - E_{\vec{q},\vec{\lambda}} + i\eta} = \text{Re } G_{Bulk,\vec{q}}^R + i \text{Im } G_{Bulk,\vec{q}}^R$$

kann aus dem Imaginärteil der Realteil berechnet werden:

$$\text{Re } G_{Bulk,\vec{q}}^R = \frac{1}{\pi} \int \frac{d\omega}{\omega - \omega} \text{Im } G_{Bulk,\vec{q}}^R$$

- In den Greenschen Funktionen G^R und G^A (Gleichungen 54 und 55) kommt die komplexe Größe \vec{k} vor. Im Imaginärteil dieser Größe ist die freie Weglänge λ versteckt.

$$e^{i\vec{k}\vec{r}} = e^{i(\text{Re } \vec{k} + i \text{Im } \vec{k})\vec{r}} = e^{-\text{Im } \vec{k}\vec{r}} e^{i \text{Re } \vec{k}\vec{r}} = e^{-(\text{Im } k_x x + \text{Im } k_y y + \text{Im } k_z z)} e^{i \text{Re } \vec{k}\vec{r}} = e^{-\left(\frac{x}{\lambda_x} + \frac{y}{\lambda_y} + \frac{z}{\lambda_z}\right)} e^{i \text{Re } \vec{k}\vec{r}}$$

mit $\lambda_x, \lambda_y, \lambda_z$ als freie Weglängen in x-, y- und z-Richtung

In Gleichung 60 kommt wieder der Phasenfaktor $e^{-i(\vec{R}'_j + \vec{k})\vec{k}}$ vor. Im Verlauf der Arbeit wird sich herausstellen, daß dieser Phasenfaktor wesentlich die Struktur der ARUPS-Kurven beeinflusst.

§4.6 Zusätzliche Effekte

In einem realen Festkörper können ein Reihe von zusätzlichen Effekten auftreten. Diese wirken sich unterschiedlich auf die Größen im Keldysh-Diagramm (Abb. 4.4.1) aus. Durch Renormierung des Keldysh-Diagramms können diese Effekte erfaßt und berechnet werden.

Wir unterscheiden 4 Klassen von Renormierungen:

- a Die Renormierung der Propagatoren
- b Vertexrenormierung der inneren Punkte \bar{x}_1 und \bar{x}_2
- c Vertexrenormierung des äußeren Punktes \bar{x}
- d Vertexrenormierungen mit inneren und äußerem Punkt

Basierend auf der Veröffentlichung von C. Caroli¹⁰ geben wir nun die wichtigsten Effekte an und zeigen ihre Auswirkungen auf die ARUPS-Kurven:

1 Unebene und verschmutzte Oberflächen:

Bei ARUPS stammen ca. 99% aller Photoelektronen aus den äußersten 3 Schichten. Lagern sich z. B. während der Messung Wassermoleküle an die Oberfläche an, so wird die Messung erheblich verfälscht. Darum werden alle Messungen im Ultrahochvakuum ($<2 \cdot 10^{-11}$ mbar) durchgeführt und dort die Proben (Einkristalle) direkt vor der Messung gespalten. Eine theoretische Behandlung ist nicht nötig.

2 Elektron-Loch-Paar-Erzeugung:

Das Photoelektron stößt inelastisch mit einem Bandelektron, gibt dabei Energie an das Bandelektron ab, hebt es über die Fermienergie an und erzeugt so ein Loch im vorher voll besetzten Band. Aufgrund der geringen freien Weglänge eines Elektron-Elektron-Stoßes im für ARUPS relevanten Energiebereich ($\lambda_{el} \approx 5-15 \text{ \AA}$) ist die Elektron-Loch-Paar-Erzeugung ein sehr starker Effekt.

Die Wirkung der Elektron-Loch-Paar-Erzeugung auf das Keldysh-Diagramm (Abb. 4.4.1) und auf die ARUPS-Kurven verdeutlichen wir an 3 Beispielen:

- Beispiel 1:

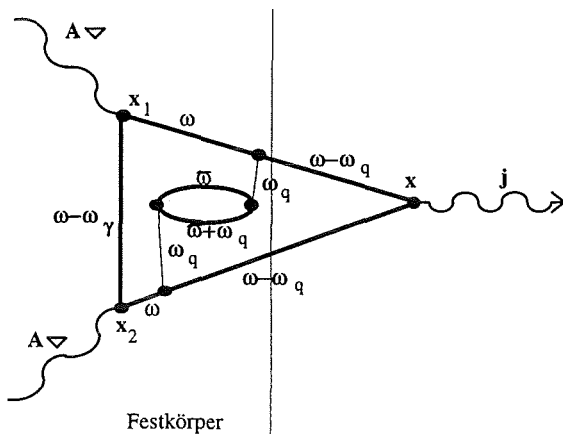


Abb. 4.6.1 Elektronen-Loch-Paar-Erzeugung ohne zusätzlichen Photostrom

Dem Photoelektron verbleibt nach der Elektron-Loch-Paar-Erzeugung nur noch die Restenergie $\omega - \omega_q$ und das erzeugte Elektron-Loch-Paar rekombiniert im Festkörper.

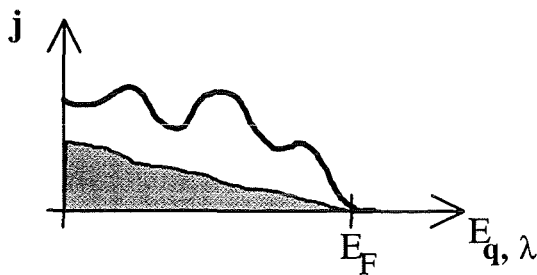


Abb. 4.6.2 ARUPS-Kurve mit Untergrund

Der Stoßprozeß vermindert die Photoelektronenenergie, wodurch ein Untergrund in der ARUPS-Kurve erzeugt wird. Der Energieübertrag pro Elektron-Loch-Paar-Erzeugung hängt von der Zustandsdichte der Elektronenstruktur ab, denn aus der besetzten Zustandsdichte wird das Bandelektron entnommen und in die unbesetzte Zustandsdichte eingesetzt. Unter der

Voraussetzung, daß die Photoelektronen nur Energie abgeben können (also keine Energieaufnahme durch Stöße) gilt näherungsweise für den Untergrund folgender Ausdruck¹³:

$$U_1(\omega) = \int_0^{E_F - \omega} W(E_1) dE_1 \quad \text{bei einem Stoß}$$

$$U_2(\omega) = \int_0^{\omega' - \omega} W(E_2) dE_2 \int_0^{E_F - \omega'} W(E_1) dE_1 \quad \text{bei zwei Stößen}$$

$$\text{mit der Stoßwahrscheinlichkeit } W(E_1) = k \int_{\text{Besetzt}} Z_{\text{Besetzt}}(E) Z_{\text{leer}}(E + E_1) dE$$

k = Stoßparameter

Z = Zustandsdichte

ω = Photoelektronenenergie nach den Stößen

Auf dem Weg zur Oberfläche nimmt durch jeden Stoß die Energie des Photoelektrons ab und nach einigen Stößen reicht die verbliebene Restenergie nicht mehr aus, um den Festkörper zu verlassen.

Beispiel 2:

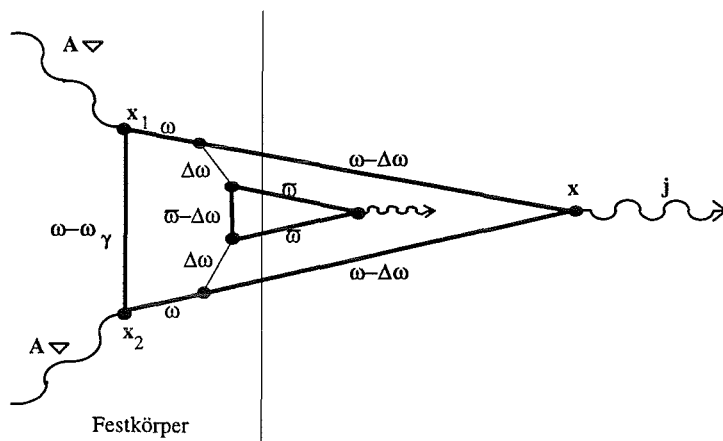


Abb. 4.6.3 Elektronen-Loch-Paar-Erzeugung mit zusätzlichem Photostrom

In diesem Fall rekombiniert das Elektron-Loch-Paar nicht im Festkörper, sondern es erzeugt einen zusätzlichen Photostrom geringerer Energie. Auch hier nimmt also der stoßfreie Anteil der ARUPS-Kurve ab und ein Untergrund, bestehend aus den energiereduzierten Photoelektronen und dem zusätzlichen Photostrom, taucht auf.

Beispiel 3:

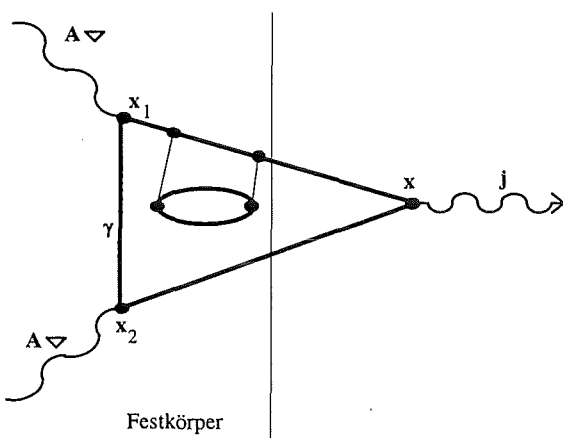


Abb. 4.6.4 Elektronen-Loch-Paar-Erzeugung als Teil der Renormierung eines Propagators

Die Elektronen-Loch-Paar-Erzeugung hat auch erheblichen Anteil an der Selbstenergie der Propagatoren.

Die Elektronen-Loch-Paar-Erzeugung verursacht in den ARUPS-Kurven einen Untergrund, vergrößert die Selbstenergie der Propagatoren und reduziert die freie Weglänge λ erheblich.

3 Phononenerzeugung: (Anregung von Gitterschwingungen)

Im Energiebereich der ARUPS-Experimente gilt für die freien Weglängen

$$\lambda_{el} \ll \lambda_{ph} \quad \lambda_{el} \approx 5-15 \text{ \AA} \text{ Freie Weglänge für Elektronen-Elektronen-Stöße}$$
$$\lambda_{ph} = \text{Freie Weglänge für Elektronen-Phononen-Stöße}$$

Damit kann die Phononenerzeugung gegenüber der Elektronen-Elektronen-Wechselwirkung vernachlässigt werden. Außerdem ist die Wechselwirkung zwischen den Linien ω und $\omega - \omega_\gamma$ im Keldysh-Diagramm (Abb. 4.4.1) zu vernachlässigen, weil die Phononenenergie ($\approx 25 \text{ meV}$) viel geringer ist als die Energie der Lichtquanten (18-60 eV).

4 Plasmonenanregung: (Anregung einer kollektiven Elektronenschwingung)

Obwohl Plasmonen mit Energien um 25 eV^{12} in $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ existieren, ist die Anregungswahrscheinlichkeit doch gering.

5 Inverser Photoeffekt: (Emission eines Photons mit Impulsübertrag an das Gitter)

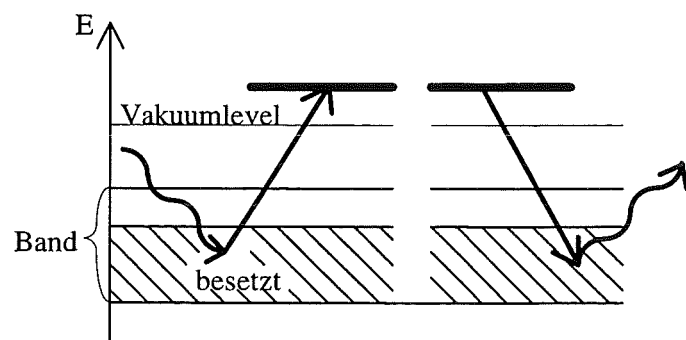


Abb. 4.6.5 Photoeffekt und inverser Photoeffekt

Die erzwungene Emission durch das Lichtfeld ist nicht möglich, weil im Festkörper die Elektronenstruktur bis zur Fermienergie vollständig aufgefüllt ist. Die spontane Emission eines Photons hat eine geringe Wahrscheinlichkeit. Der inverse Photoeffekt, und damit auch der Augéeffekt, kann also vernachlässigt werden.

6 Elastische Streuung der Photoelektronen an Festkörperelektronen, Phononen und Photonen:

Vergrößern nur den Winkelbereich, aus dem die gemessenen Photoelektronen stammen. Bei einer Winkelauflösung des Analysators von mindestens $\pm 1^\circ$ ist das relativ unproblematisch.

Die Renormierung der Propagatoren:

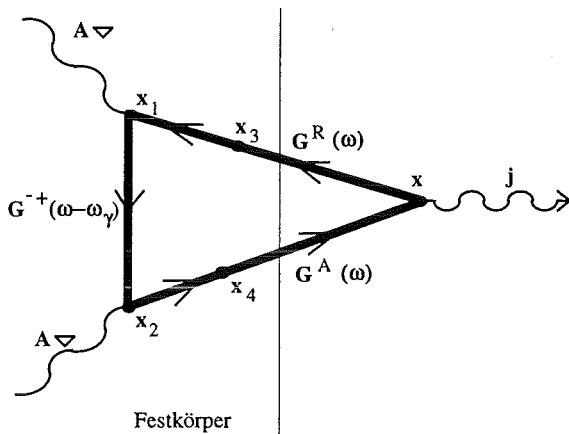


Abb. 4.6.6 Die Renormierung der Propagatoren

Die Renormierung der beiden Propagatoren $G^R(\omega)$ und $G^A(\omega)$ unterscheidet sich von derjenigen des Propagators $G^-(\omega-\omega_\gamma)$.

Betrachten wir zunächst die beiden Propagatoren $G^R(\omega)$ und $G^A(\omega)$:

Wir nähern im Energiebereich um ω die komplexe Selbstenergie $\Sigma_\lambda(\omega)$ unabhängig von \vec{q} an. Dann führen wir die komplexe Energie $E_{eff} = \omega + \Sigma_\lambda(\omega)$ ein und erhalten die folgenden Beziehungen:

$$G^R(\vec{x}, \vec{x}_1, E_{eff}) \propto e^{-i\sqrt{E_{eff}} \vec{k}^0 \vec{x}_1} = e^{-i\sqrt{\text{Re } E_{eff}} \sqrt{1 + \frac{i \text{Im } E_{eff}}{\text{Re } E_{eff}} \vec{k}^0 \vec{x}_1}} \approx e^{-i\sqrt{\text{Re } E_{eff}} \left(1 + \frac{i \text{Im } E_{eff}}{2 \text{Re } E_{eff}}\right) \vec{k}^0 \vec{x}_1}$$

$$G^R(\vec{x}, \vec{x}_1, E_{eff}) \propto e^{-i\sqrt{\text{Re } E_{eff}} \vec{k}^0 \vec{x}_1} \cdot e^{-\frac{\text{Im } E_{eff}}{2\sqrt{\text{Re } E_{eff}}} \vec{k}^0 \vec{x}_1}$$

sowie

$$G^A(\vec{x}_2, \vec{x}, E_{eff}) \propto e^{i\sqrt{\text{Re } E_{eff}} \vec{k}^0 \vec{x}_2} \cdot e^{-\frac{\text{Im } E_{eff}}{2\sqrt{\text{Re } E_{eff}}} \vec{k}^0 \vec{x}_2}$$

Der Realteil der Selbstenergie $\Sigma(\omega)$ in $G^R(\omega)$ bzw. $G^A(\omega)$ verursacht eine Verschiebung der Photoelektronenenergie ω .

Der Imaginärteil der Selbstenergie in $G^R(\omega)$ bzw. $G^A(\omega)$ sorgt für eine exponentielle Dämpfung des Photostroms. Dies wird mit dem Parameter freie Weglänge λ berücksichtigt.

Nun zum Propagator $G^+(\omega - \omega_\gamma)$:

In **Anhang 4** zeigen wir, daß die Selbstenergiematrix $\Sigma_{ij}(\omega)$ (ij sind Bandindizes) wie definiert in guter Näherung bei den Materialien $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ und Sr_2RuO_4 diagonal in den Bandindizes ist.

Damit ergibt sich

$$G_{Bulk}^R(\bar{x}_1, \bar{x}_2, \omega - \omega_\gamma) = \sum_{\lambda} \frac{\Psi_{\bar{q},\lambda}(\bar{x}_1) \Psi_{\bar{q},\lambda}^*(\bar{x}_2)}{\omega + \Sigma_{\bar{q},\lambda}(\omega) - \omega_\gamma - E_{\bar{q},\lambda} + i\eta}$$

berechnet sich der Imaginärteil nicht mehr als Deltafunktion, sondern als Lorentz-funktion:

$$\text{Im} G_{Bulk}^R(\bar{x}_1, \bar{x}_2, \omega - \omega_\gamma) = \sum_{\lambda} \Psi_{\bar{q},\lambda}(\bar{x}_1) \Psi_{\bar{q},\lambda}^*(\bar{x}_2) \frac{\text{Im} \Sigma_{\bar{q},\lambda}(\omega)}{\left(\omega + \text{Re} \Sigma_{\bar{q},\lambda}(\omega) - \omega_\gamma - E_{\bar{q},\lambda}\right)^2 + \left(\text{Im} \Sigma_{\bar{q},\lambda}(\omega)\right)^2}$$

Mit Gleichung 60 erhalten wir die Formel für die selbstenergiekorrigierte ARUPS-Rechnung (SEKAR):

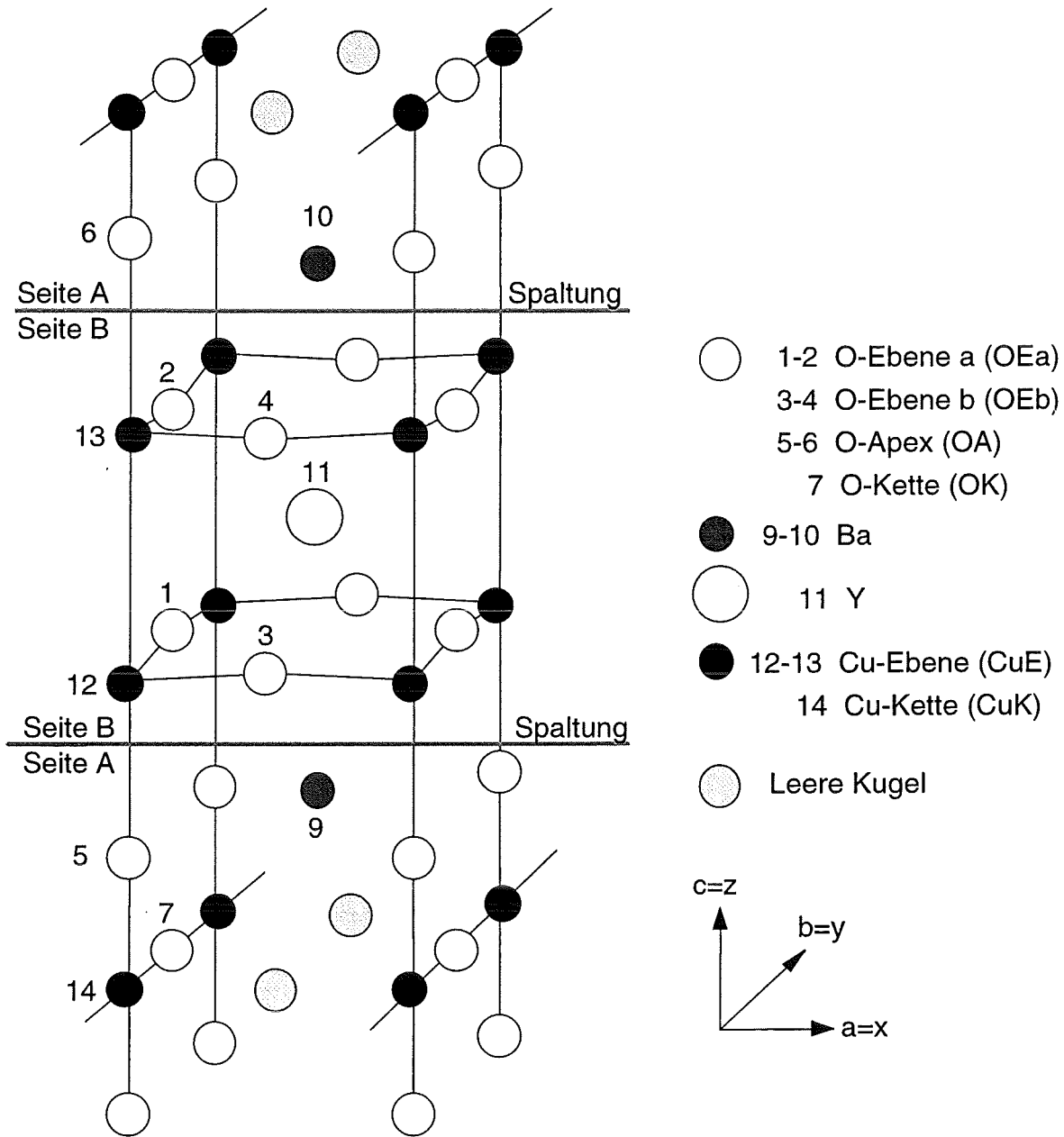
$$\bar{j}_{SEKAR} \propto \bar{k}^0 \sum_{\lambda} \int_{\Delta k_z} dk_z \int_{\Delta q_x} dq_x \int_{\Delta q_y} dq_y \int_{-\frac{B_z}{2}}^{+\frac{B_z}{2}} dq_z \frac{\text{Im} \Sigma_{\bar{q},\lambda}(\omega)}{\left(\omega + \text{Re} \Sigma_{\bar{q},\lambda}(\omega) - \omega_\gamma - E_{\bar{q},\lambda}\right)^2 + \left(\text{Im} \Sigma_{\bar{q},\lambda}(\omega)\right)^2} f(E_{\bar{q},\lambda} - E_F) |A|^2 \quad (61)$$

Der Realteil der Selbstenergie $\Sigma_{\lambda}(\omega)$ in $G^+(\omega - \omega_\gamma)$ verursacht eine Verschiebung der Photoelektronenenergie ω .

Der Imaginärteil der Selbstenergie $\Sigma_{\lambda}(\omega)$ in $G^+(\omega - \omega_\gamma)$ verschmiert die ARUPS-Kurven.

§5 YBa₂Cu₃O₇

§5.1 Eigenschaften und Struktur



- Metall
- Hochtemperatursupraleiter $T_c=92K$
- Paramagnetisch
- Die O-Apex liegen näher an der Kette als an der Ebene
- Orthorhombische fast tetragonale Struktur

Gitterkonstanten und Atompositionen für YBa₂Cu₃O₇

Die Daten sind den Messungen von Jorgensen et al.²¹ entnommen.

Elementarzelle:

$$\begin{aligned} a &= 3,8128 \text{ \AA} = 7,20511 \text{ AE} & \text{AE} &= \text{Atomare Einheiten} \\ b &= 3,8806 \text{ \AA} = 7,33323 \text{ AE} \\ c &= 11,6303 \text{ \AA} = 21,9780 \text{ AE} \end{aligned}$$

Brillouin-Zone:

$$\begin{aligned} \hat{a} &= 1,6479 \text{ \AA}^{-1} = 0,87205 \text{ AE} \\ \hat{b} &= 1,6191 \text{ \AA}^{-1} = 0,85681 \text{ AE} \\ \hat{c} &= 0,5402 \text{ \AA}^{-1} = 0,28590 \text{ AE} \end{aligned}$$

Gittertranslationsvektoren:

$$\vec{R}_1 = \begin{pmatrix} a \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix}, \vec{R}_2 = \begin{pmatrix} 0 \\ b \\ 0 \end{pmatrix} \text{ und } \vec{R}_3 = \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ c \end{pmatrix}$$

Atompositionen (in AE):

Atomindex	Atom	x-Koordinate	y-Koordinate	z-Koordinate
1	O _{Ebene a}	0,0000	3,6666	8,2834
2	O _{Ebene a}	0,0000	3,6666	-8,2834
3	O _{Ebene b}	3,6025	0,0000	8,2921
4	O _{Ebene b}	3,6025	0,0000	-8,2921
5	O _{Apex}	0,0000	0,0000	3,5053
6	O _{Apex}	0,0000	0,0000	-3,5053
7	O _{Kette}	0,0000	3,6666	0,0000
8	Leere Kugel	3,6025	0,0000	0,0000
9	Barium	3,6025	3,6666	4,0134
10	Barium	3,6025	3,6666	-4,0134
11	Yttrium	3,6025	3,6666	10,9890
12	Cu _{Ebene}	0,0000	0,0000	7,7847
13	Cu _{Ebene}	0,0000	0,0000	-7,7847
14	Cu _{Kette}	0,0000	0,0000	0,0000

§5.2 Bandstrukturergebnisse

Die ARUPS-Rechnung benötigt als Eingabedaten Bandstrukturdaten, wie Blochwellenfunktionen (Blochkoeffizienten, Radialwellenfunktionen) und Energieeigenwerte. In der vorliegenden Arbeit wurden zwei Bandstrukturmethoden zur Bereitstellung dieser Eingabedaten verwendet: LMTO und LMTO+SIC. Nun ist die Angabe der Blochkoeffizienten $(l, m, \nu, \vec{k}, \lambda, \kappa)$ oder der Energieeigenwerte (\vec{k}, λ) äußerst unübersichtlich. Darum diskutieren wir übersichtlichere, aus den Eingabedaten hergeleiteten Größen. Wir geben also in diesem Kapitel Zustandsdichten, Banddispersionen und Fermiflächen, ermittelt durch diese beiden Bandstrukturmethoden, an.

Zustandsdichten $Z(E)$:

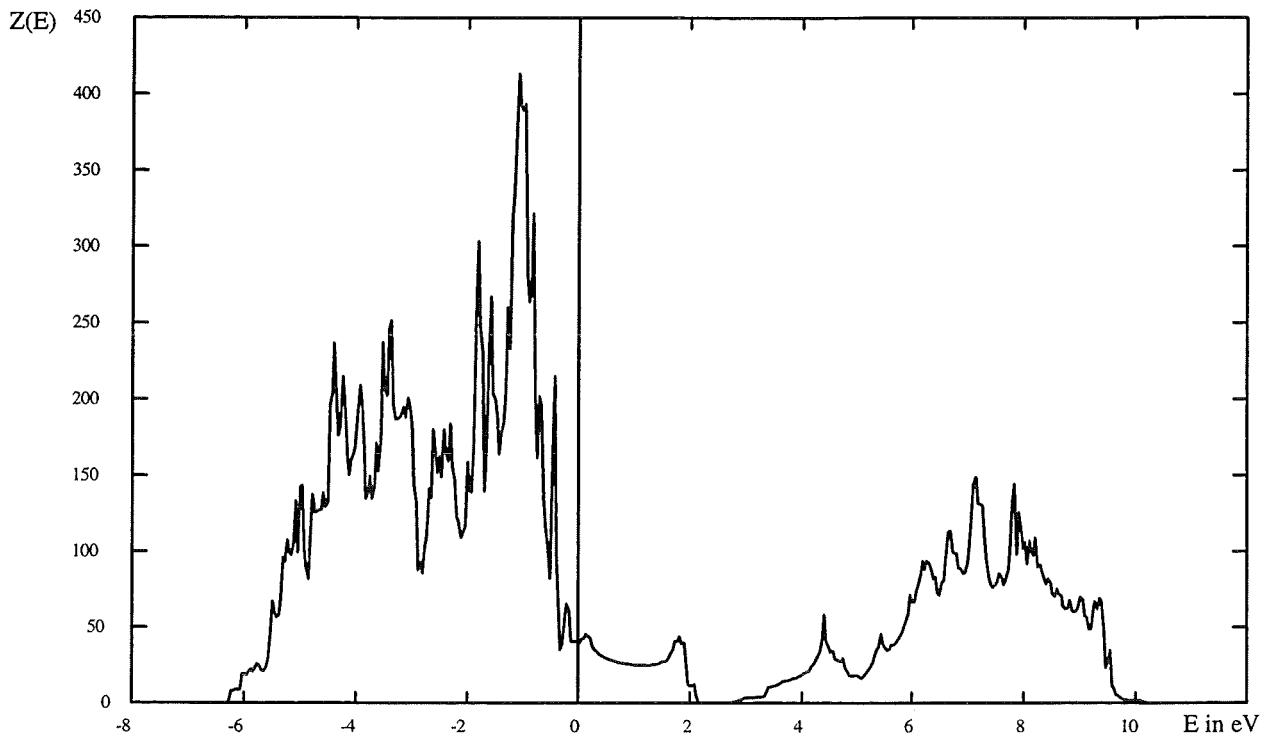


Abb. 5.2.1 Zustandsdichte (LMTO)

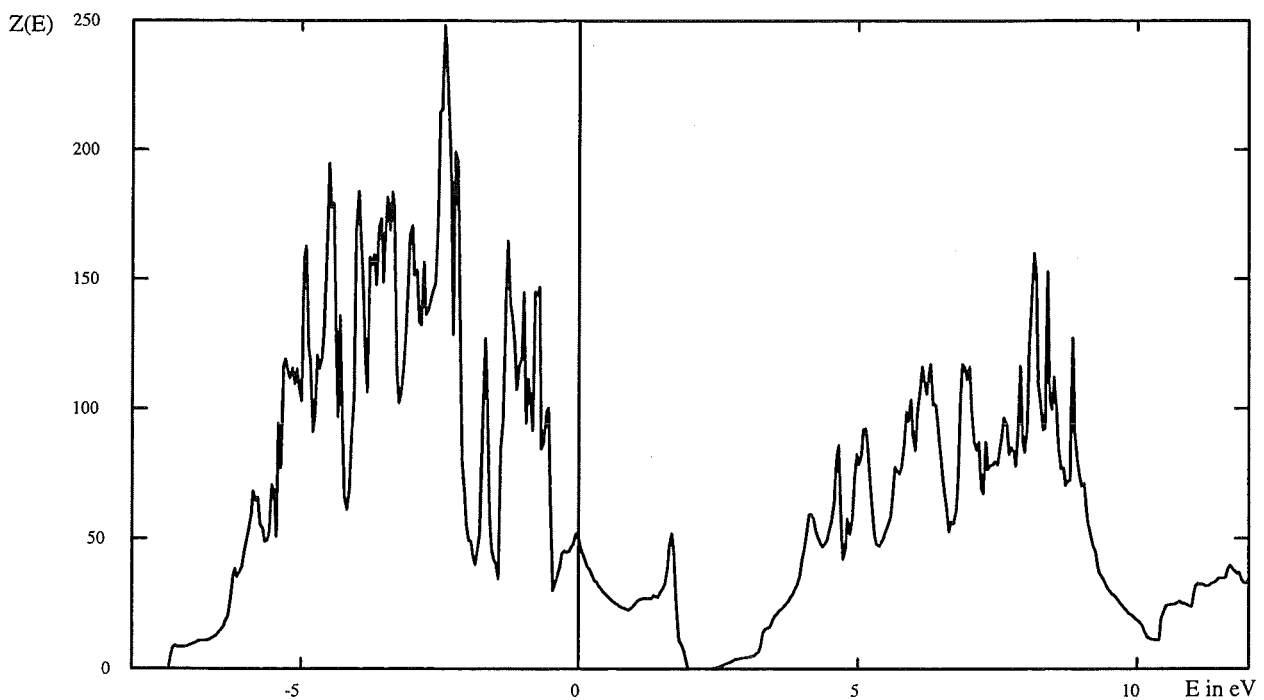


Abb. 5.2.2 Zustandsdichte (LMTO+SIC)

Vergleicht man die beiden Zustandsdichten miteinander, so erkennt man im groben gleichartige Strukturen. In den Details weichen die Zustandsdichten aber erheblich voneinander ab. Erwähnen möchten wir noch, daß die LMTO-Struktur nur bis ca. 10eV berechnet wurde.

Zur genaueren Analyse betrachten wir nun die **partiellen Zustandsdichten** nach Atomsorten aufgelöst.

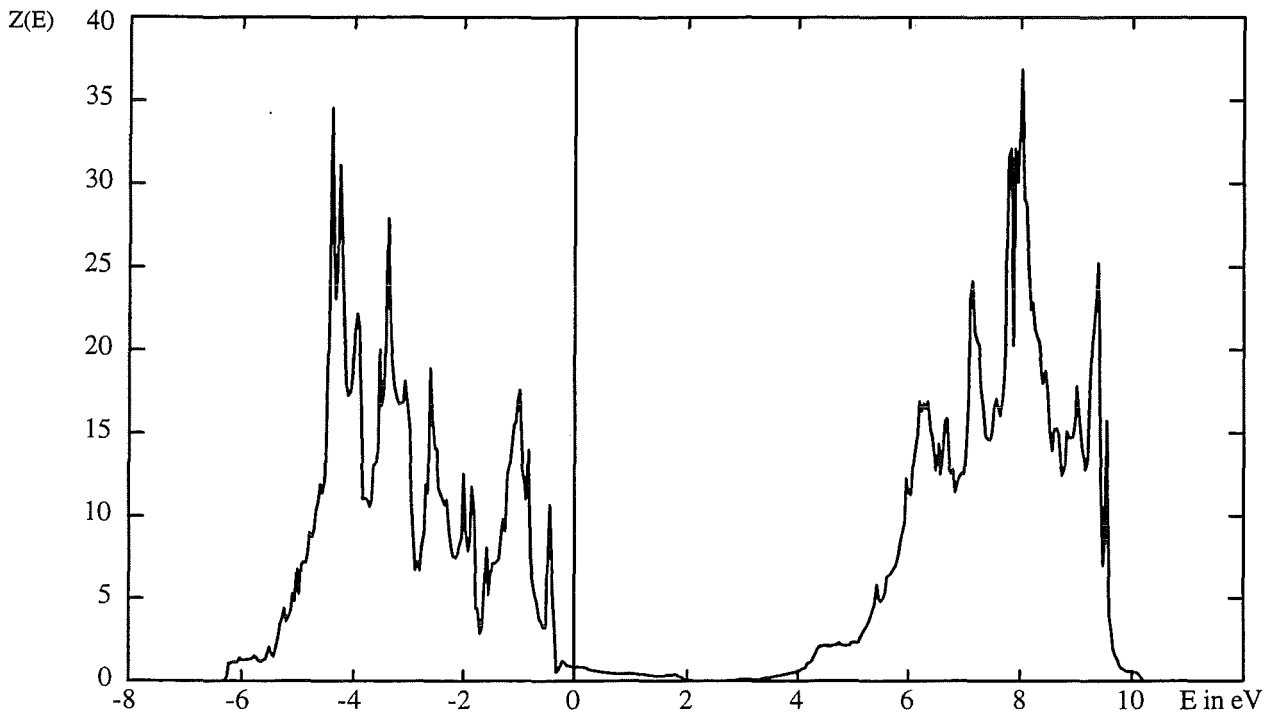


Abb. 5.2.3 Partielle Zustandsdichte Y (LMTO)

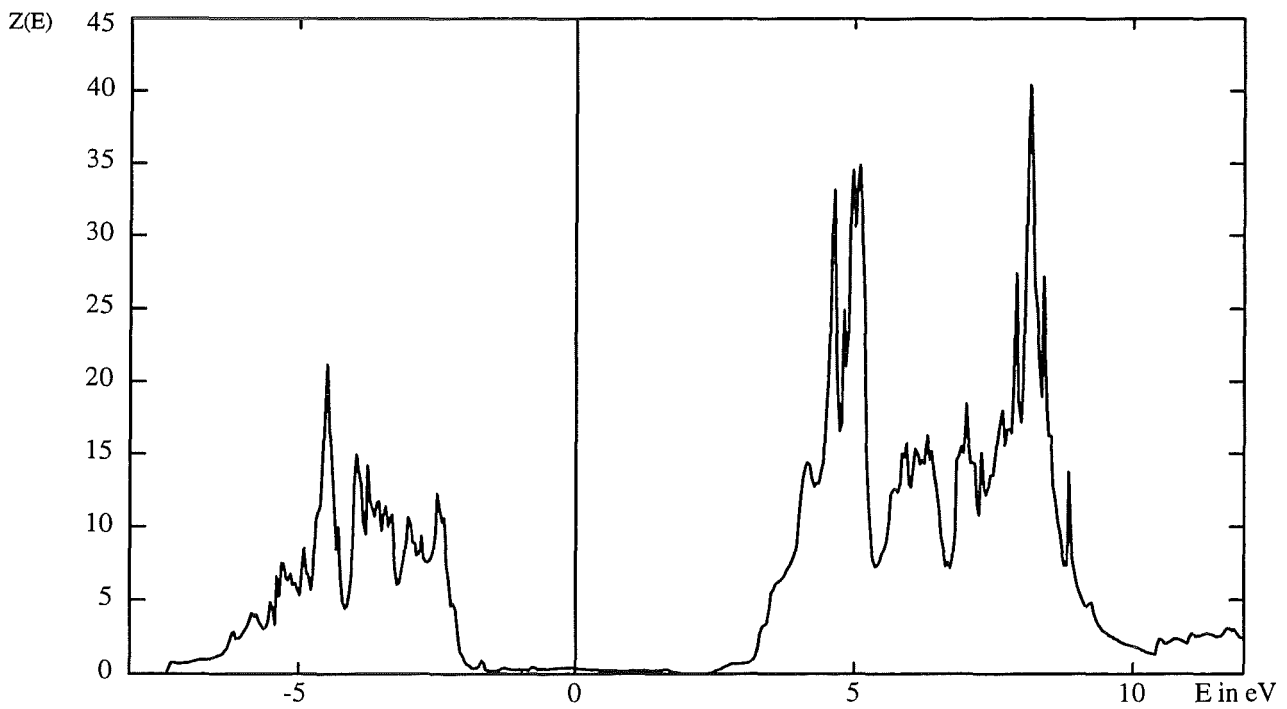


Abb. 5.2.4 Partielle Zustandsdichte Y (LMTO+SIC)

Das Yttriumatom liefert um E_F keinen Beitrag und im für ARUPS wichtigen besetzten Bereich nur geringe Beiträge (unter 10%).

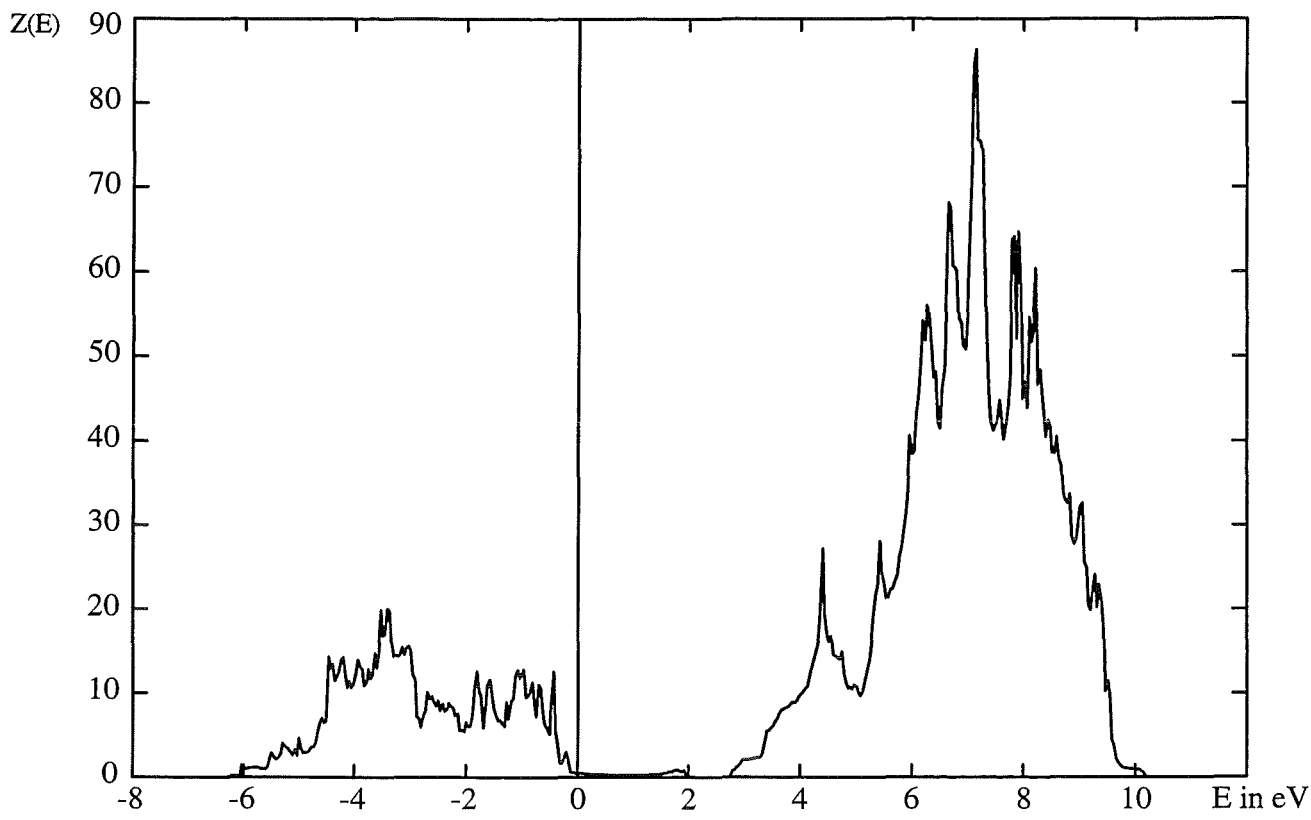


Abb. 5.2.5 Partielle Zustandsdichte Ba (LMTO)

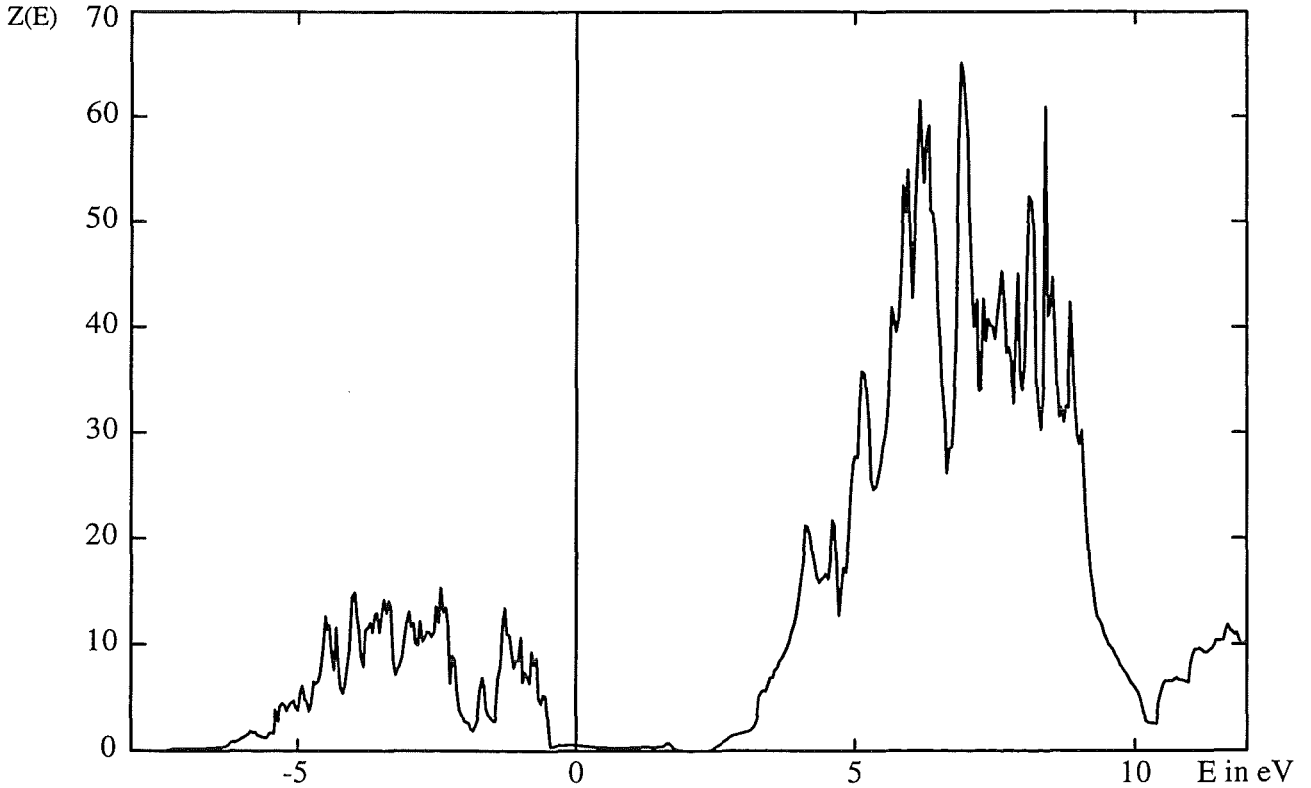
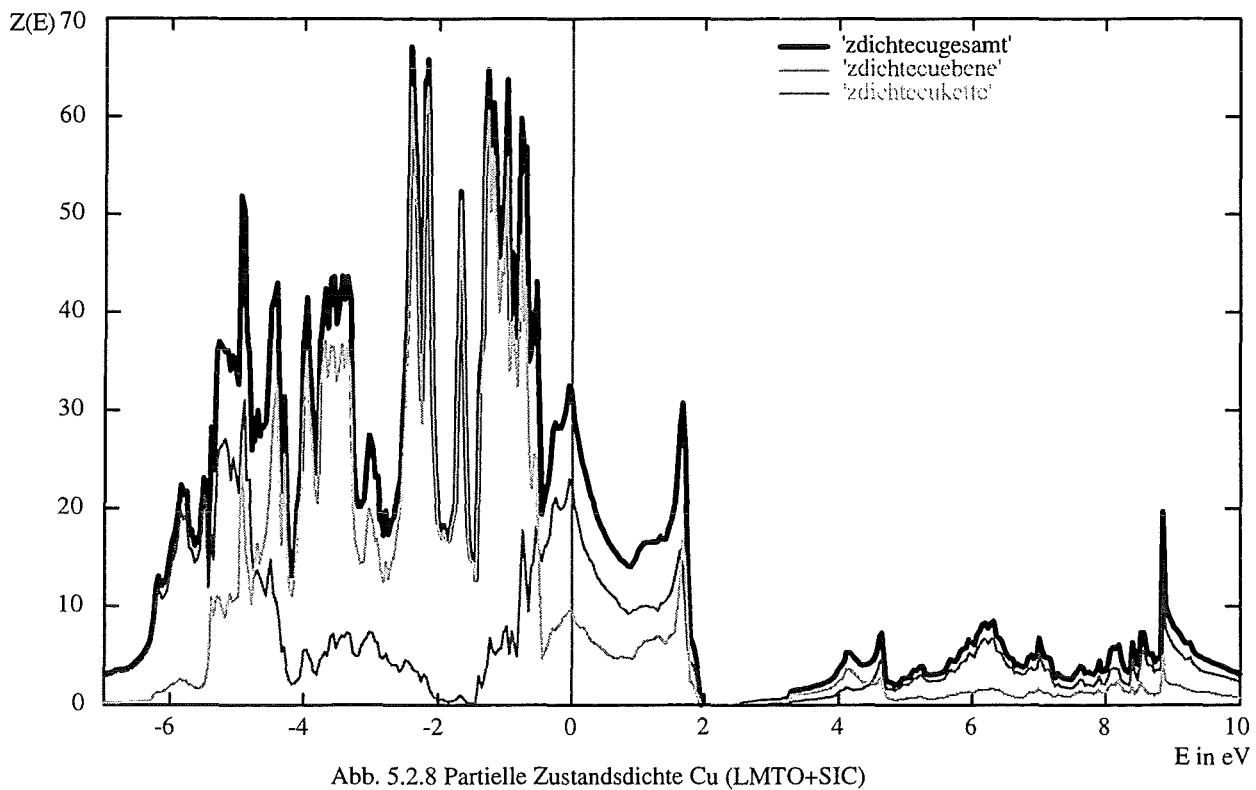
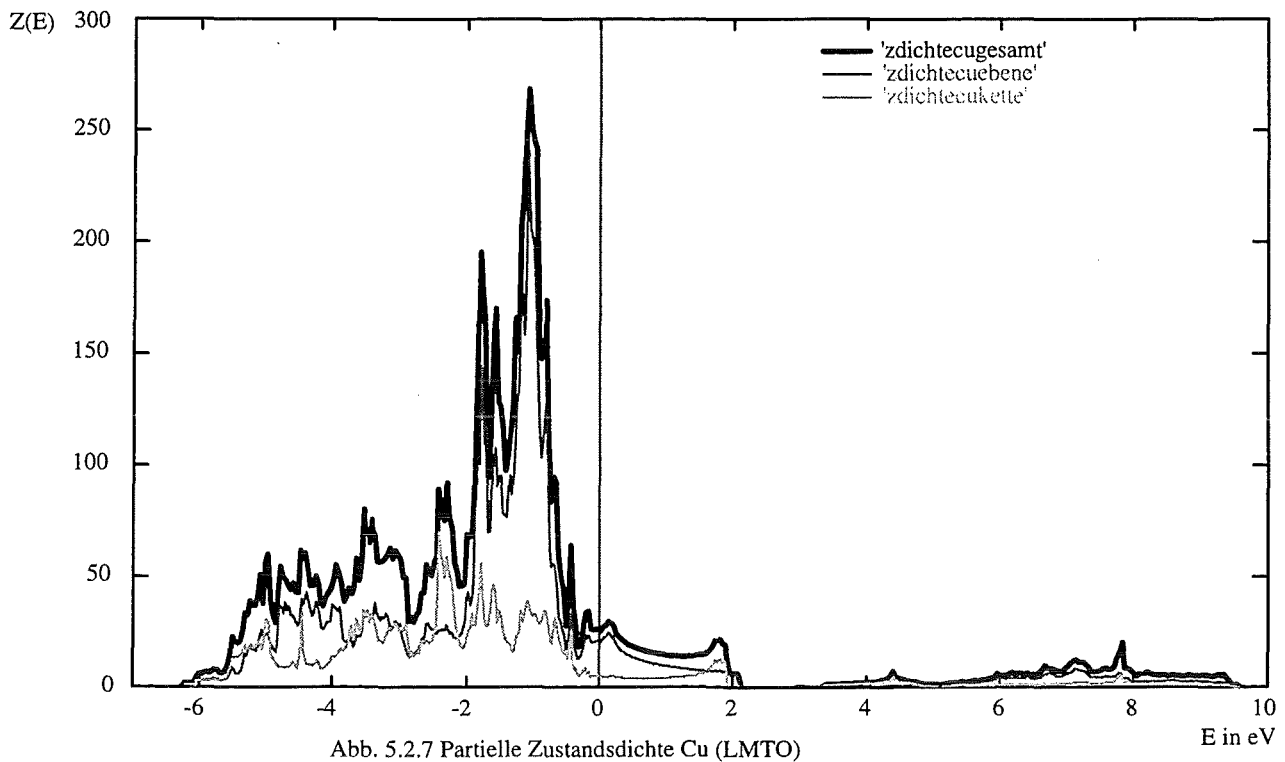


Abb. 5.2.6 Partielle Zustandsdichte Ba (LMTO+SIC)

Die Bariumatome liefern bei E_F ebenfalls so gut wie keinen Beitrag zur Zustandsdichte und im besetzten Bereich nur geringe Beiträge (unter 10%).



Die Kupferatome, speziell die beiden aus der Ebene, liefern den Hauptbeitrag zur Zustandsdichte (über 70%) an der Fermienergie. Auch unterhalb der Fermienergie ist der Kupferanteil erheblich: 25-40% der gesamten Zustandsdichte. Bei der SIC-Rechnung sind Kupferanteile aus dem besetzten Bereich energetisch stark abgesenkt und bilden sehr flache Energiebänder um $E = -15.6\text{eV}$.

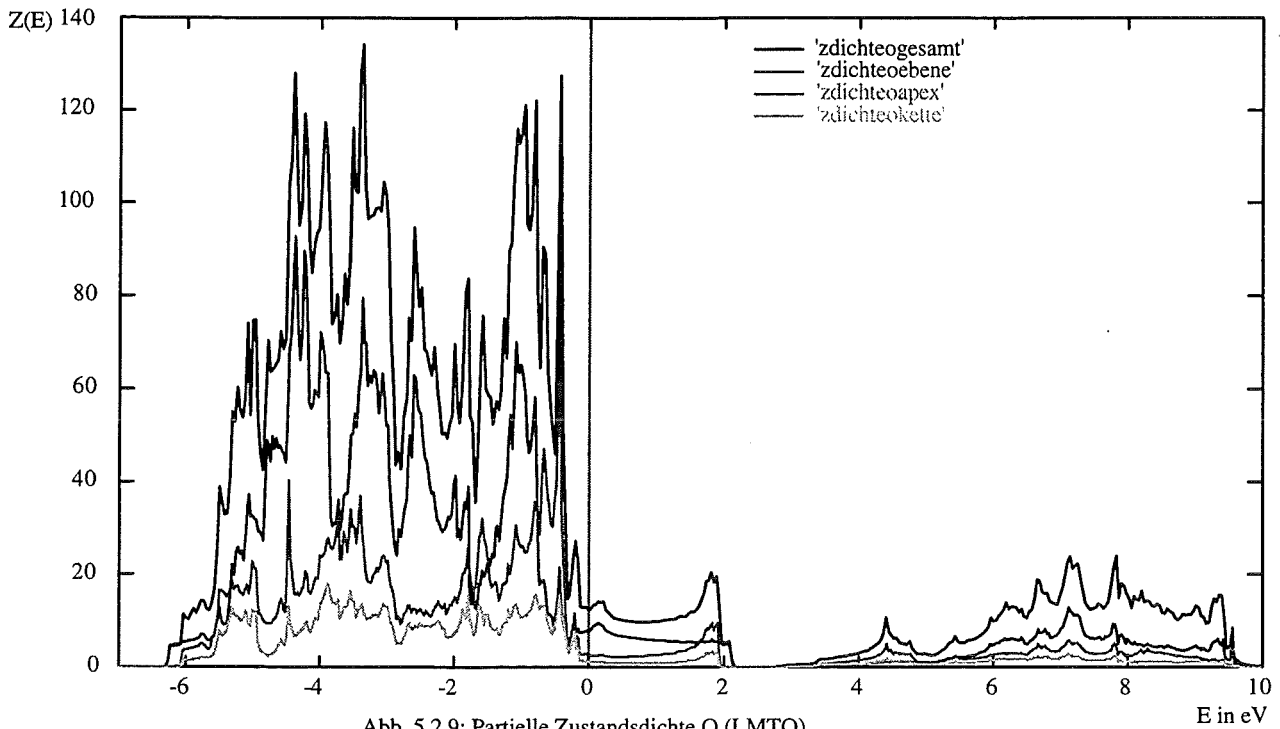


Abb. 5.2.9: Partielle Zustandsdichte O (LMTO)

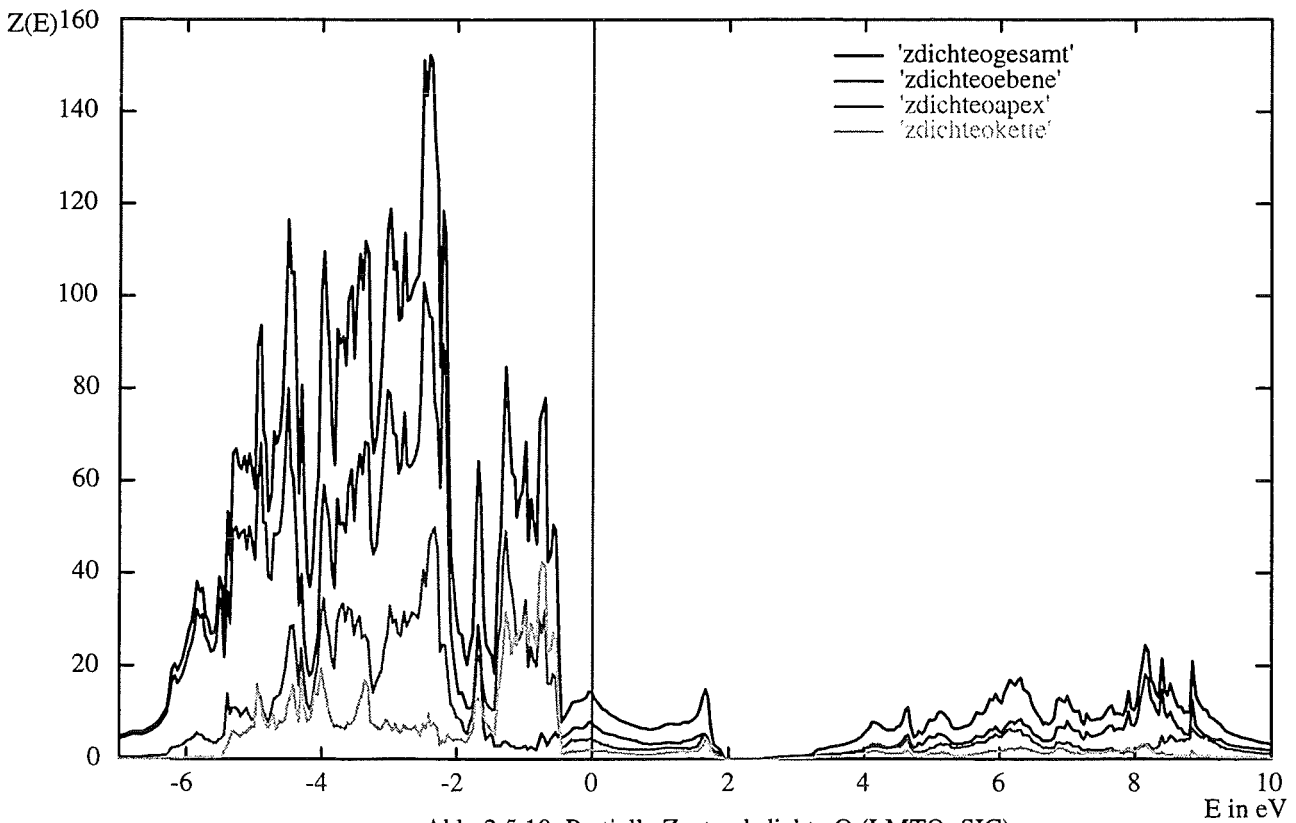


Abb. 2.5.10: Partielle Zustandsdichte O (LMTO+SIC)

Sauerstoff liefert an der Fermienergie ca. 25% der Zustandsdichte und im besetzten Bereich den Hauptanteil von ca. 60%, wobei jedes Sauerstoffatom ungefähr gleich viel beiträgt: Die Ebenen (4 Atome) doppelt so viel wie die Apex und viermal so viel wie die Kette.

Die LMTO-Methode legt um jedes Atom in der Elementarzelle eine Kugel. Damit sich die Kugeln weniger überlappen, ist es bei $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ sinnvoll, eine zusätzliche Kugel einzurichten. Diese Kugel, in der sich kein Atomrumpf befindet, liegt in der Elementarzelle zentral zwischen den Kupferketten.

In der Darstellung der Blochwellenfunktionen (19) geht die Summe über der Drehimpulsquantenzahl l im Prinzip bis ∞ . In der praktischen Rechnung genügt es wegen der raschen Konvergenz bis zu einem Maximalwert $l_{\max} = 2-3$ zu entwickeln. Die folgende Tabelle gibt die für die einzelnen Atome verwendeten Werte für l_{\max} an:

Atomsorte	Y	Ba	leere Kugel	Cu	O
$l_{\max}(\text{LMTO})$	3	3	1	3	2
$l_{\max}(\text{LMTO+SIC})$	2	2	0	2	1

Da die Blochwellenfunktionen in der LMTO-Methode durch lineare Überlagerung atomarer (molekularer) Orbitale gebildet werden, folgen aus den l_{\max} die Anzahl der in einem Energiebereich (panel) berechneten Bänder:

LMTO

$$\begin{aligned}
 \text{Bandanzahl} &= \text{Y} + 2\text{Ba} + 3\text{Cu} + 7\text{O} + \text{leere Kugel Atome} \\
 &= (0,1,2,3) + 2(0,1,2,3) + 3(0,1,2,3) + 7(0,1,2) + (0,1) \quad l\text{-Werte} \\
 &= (1+3+5+7)+2(1+3+5+7)+3(1+3+5+7)+7(1+3+5)+ (1+3) \quad m_l\text{-Werte} \\
 &= 163
 \end{aligned}$$

LMTO+SIC

$$\begin{aligned}
 \text{Bandanzahl} &= \text{Y} + 2\text{Ba} + 3\text{Cu} + 7\text{O} + \text{leere Kugel} \quad \text{Atome} \\
 &= (0,1,2) + 2(0,1,2) + 3(0,1,2) + 7(0,1) + (0) \quad l\text{-Werte} \\
 &= (1+3+5) + 2(1+3+5) + 3(1+3+5) + 7(1+3) + (1) \quad m_l\text{-Werte} \\
 &= 83
 \end{aligned}$$

Bei beiden Bandstruktureregebnissen sind die Bänder 1-33 vollständig besetzt, die Bänder 34-36 teilweise besetzt (Bilden also die Fermioberfläche) und die Bänder ab 37 vollkommen unbesetzt.

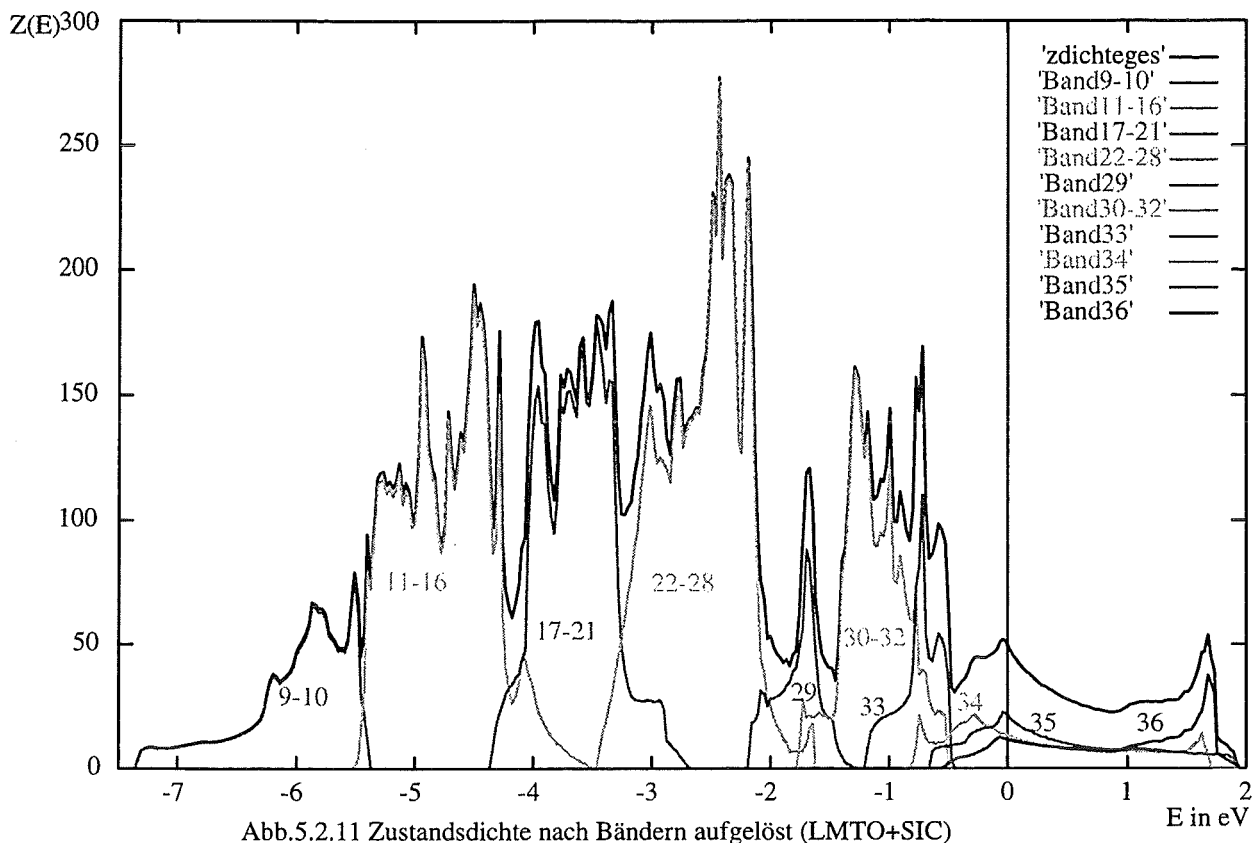


Abb.5.2.11 Zustandsdichte nach Bändern aufgelöst (LMTO+SiC)

Abbildung 5.2.11 verdeutlicht die Anteile der verschiedenen Bänder zur gesamten Zustandsdichte, wobei im linken, energetisch tiefen Bereich Bänder zu Bandgruppen zusammengefaßt sind. Wenn man z. B. den Energiebereich um die Fermienergie betrachtet, erkennt man deutlich, daß nicht jeder Peak in der Zustandsdichte einem einzelnen Band zugeordnet ist. Die Bänder überlagern sich und erst die Summe bilden die Peaks. Nur einige vereinzelte Peaks bestehen fast nur aus einem einzelnen Band, z. B. der Peak bei $E = -1,7 \text{ eV}$ (Band 29).

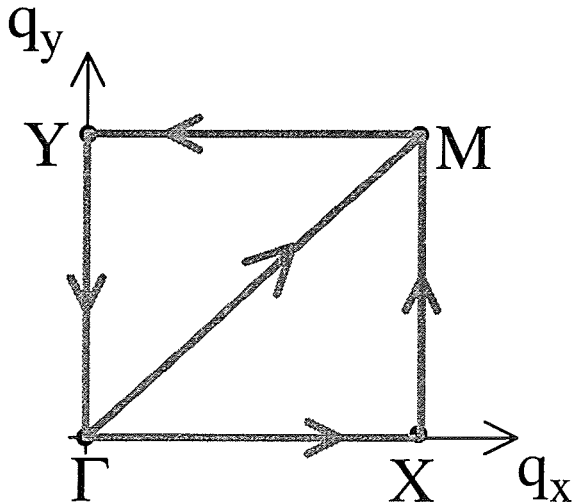
Nun wollen wir der Frage nachgehen, aus welchen Anteilen die Zustandsdichte an der Fermienergie besteht:

Charakter	CuE d	CuK d	OE p	OA p	OK p	CuE s	CuE p	Rest
Anteil in % LMTO	46,2	10,5	19,6	6,1	3,0	2,5	1,8	10,3
Anteil in % LMTO+SiC	42,7	18,8	16,5	9,4	4,1	2,0	1,7	4,8

Die Hauptbeiträge in der Umgebung der Fermienergie sind also durch die Kupferatome in den Ebenen mit $l=2$, das Kupferatom in der Kette mit $l=2$ und die Sauerstoffatome in den Ebenen mit $l=1$ gegeben. Y, Ba und die leere Kugel liefern nach Drehimpulsen aufgelöst Beiträge von je unter 1%, tauchen also in der Tabelle nur in der Spalte Rest auf.

Banddispersion:

Um die Impulsabhängigkeit der Energiewerte der Bandelektronen darzustellen, verfolgen wir die für ARUPS besonders wichtigen Bänder 34-36 auf einem festgelegten Pfad durch die Brillouin-Zone. Die folgende Skizze zeigt diesen Pfad:



Punkt	Γ	X	Y	M
Koordinaten	(0,0)	$(B_x/2,0)$	$(0,B_y/2)$	$(B_x/2,B_y/2)$

In den folgenden beiden Abbildungen ist die Fermienergie in Rydberg eingetragen. Die Werte für die Fermienergie (LMTO = $-0,4058Ry$ und LMTO+SIC = $-0,223Ry$) sind bei den beiden Bandstrukturergebnissen völlig verschieden, weil in den Bandstrukturmethoden die Potentialnullpunkte verschieden festgelegt sind. Deshalb geben wir die Bandstrukturenergien immer relativ zu der Fermienergie an, wodurch diese Unbestimmtheit wegfällt.

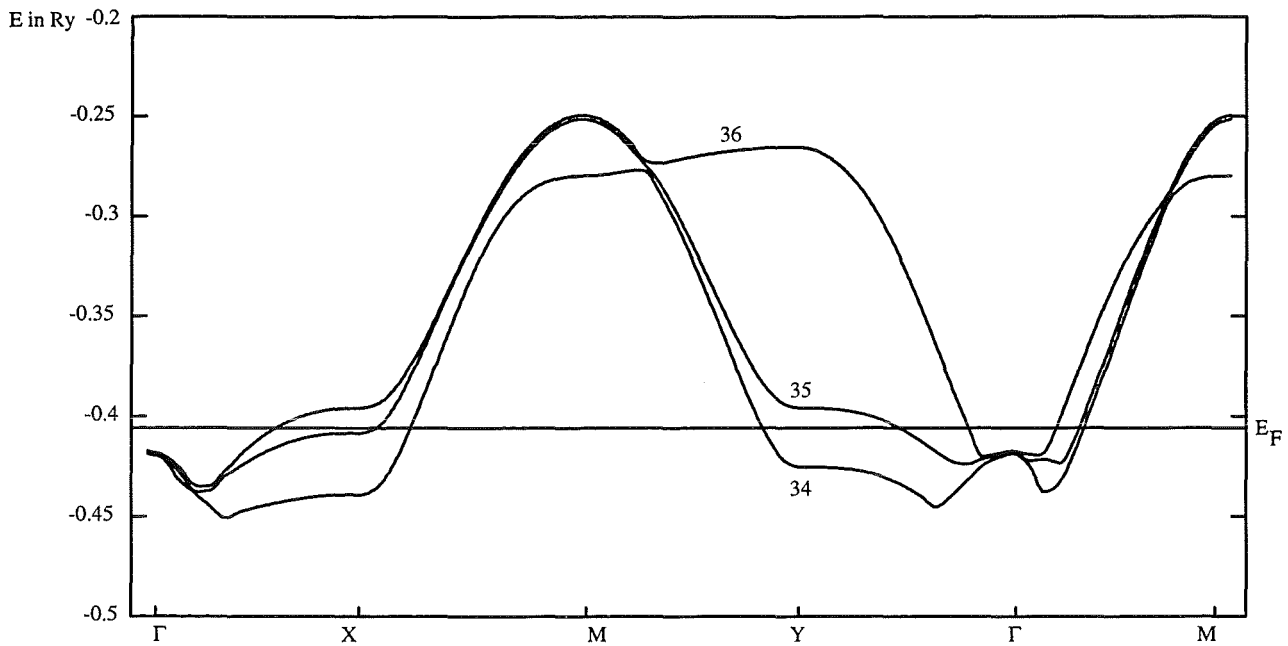


Abb. 5.2.12 Banddispersion (LMTO)

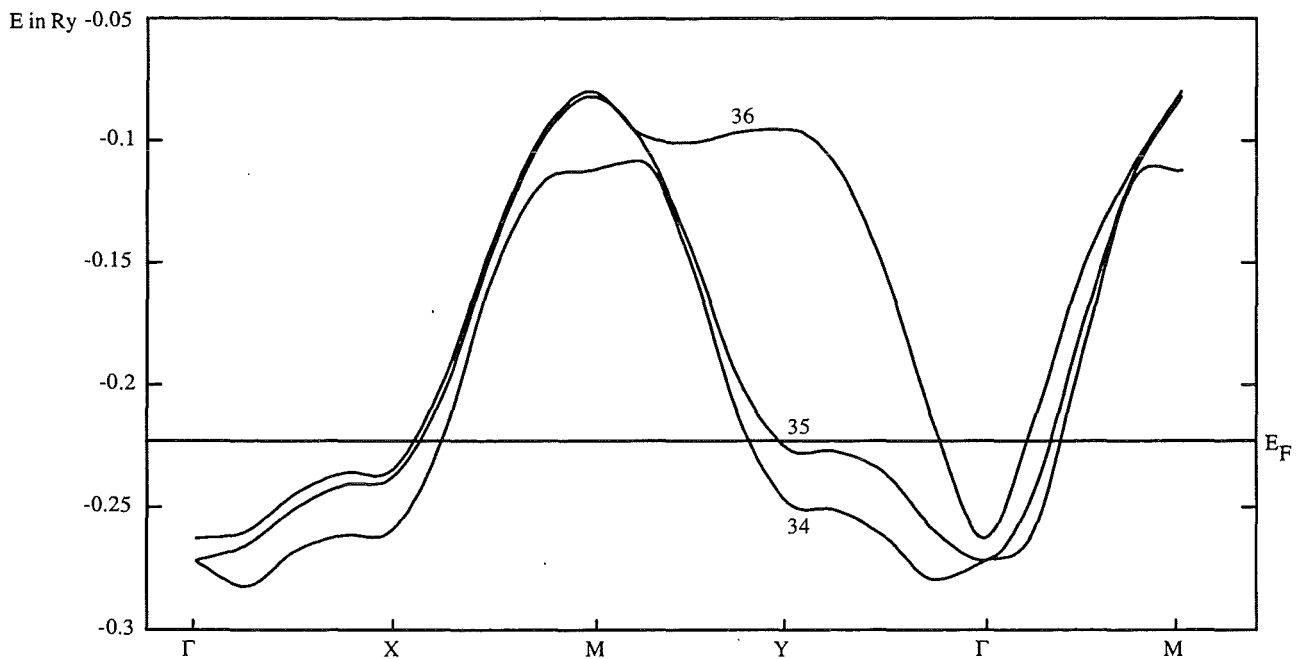


Abb. 5.2.13 Banddispersion (LMTO+SIC)

Beide Bandstrukturmethoden berechnen drei die Fermioberfläche schneidende Bänder von ähnlicher Banddispersion. Entfernt man sich energetisch weiter von der Fermienergie, so weichen die Banddispersionen der beiden Bandstrukturen stärker voneinander ab.

Fermioberflächen:

Die Struktur der Bänder 34-36 von $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ ist ungefähr 2-dimensional, d. h. die Banddispersion in z-Richtung ist sehr gering. Darum genügt es, den Schnitt der Fermifläche mit der (q_x, q_y) -Ebene zu betrachten. Vergleicht man die Fermiflächen der beiden Bandstrukturmethoden miteinander, so hat Band 34 in beiden Fällen die Gleiche Fermifläche, Band 35 (Bereich $q_x = 0.05$, $q_y = 0.3$) und Band 36 (Bereich $q_x = 0.3$, $q_y = 0.05$) unterscheiden sich aber deutlich.

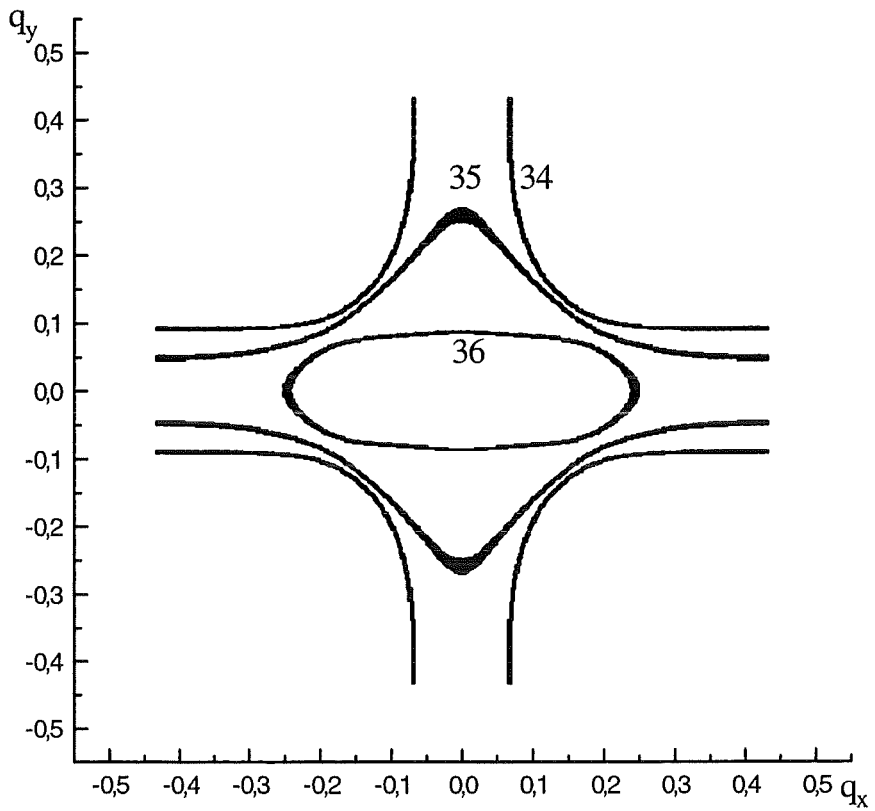


Abb. 5.2.14: Fermioberfläche (LMTO)

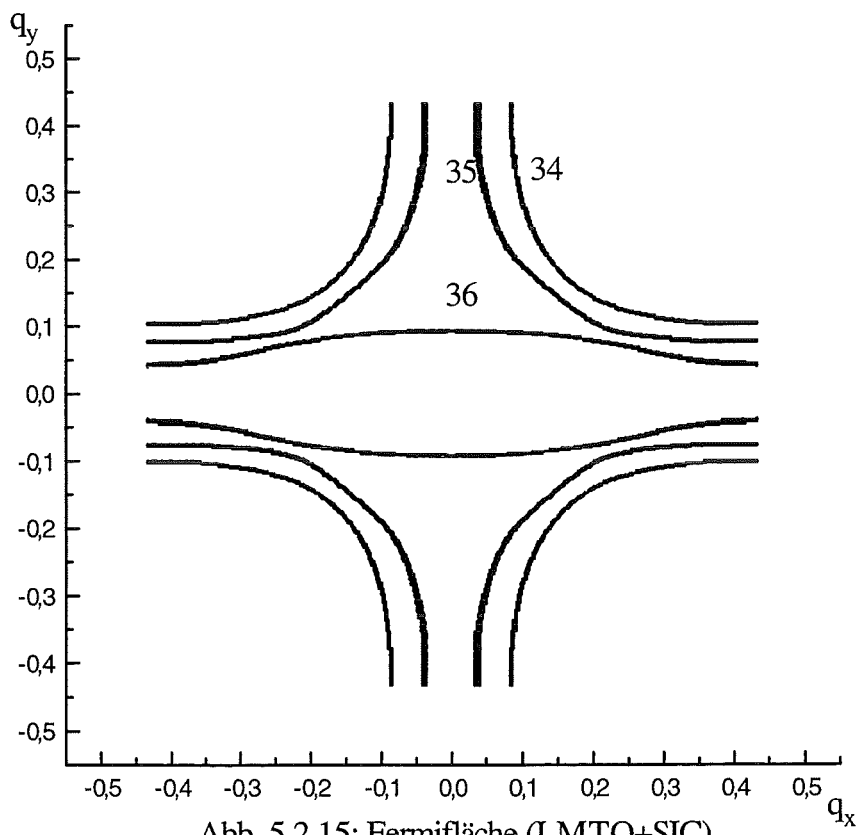
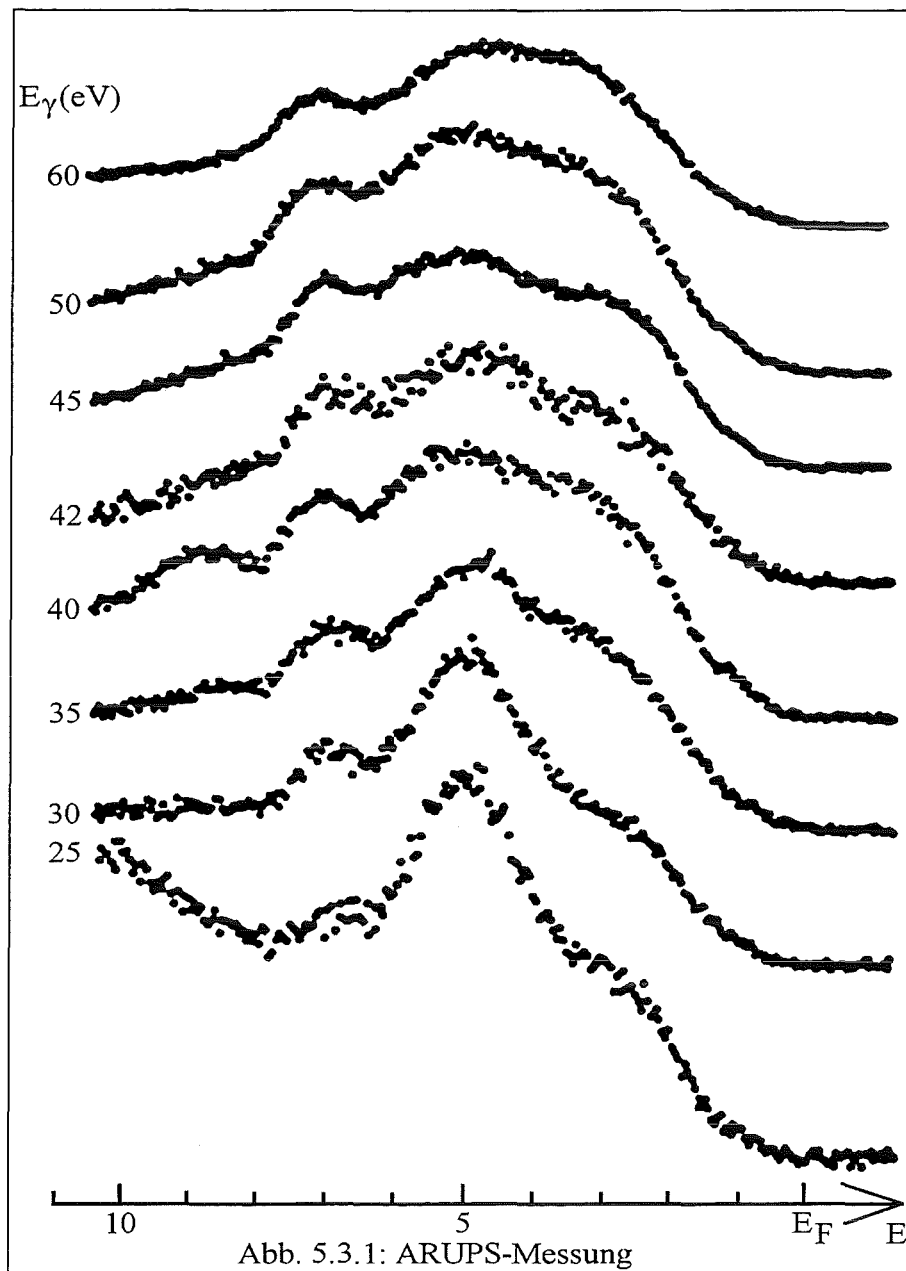


Abb. 5.2.15: Fermifläche (LMTO+SIC)

§5.3 Arups-Meßergebnisse:

Messungen von Y. Sakisaka, T. Komeda, T. Maruyama und M. Onchi (1989):¹⁵



Wichtige Daten zur Messung:

Energieauflösung: 0,1-0,2eV

Winkelauflösung: $\pm 1^\circ$

Meßtemperatur: 300K

Einfallswinkel der Photonen: 60° bezüglich der Oberflächennormalen

Linear polarisiertes Synchrotronlicht mit $\vec{\epsilon} = (1,0,0)$

Ausfallswinkel der Photoelektronen: 0° bezüglich der Oberflächennormalen

Probe: Verzwillingter Einkristallfilm (Kupferkette ist in zufälliger Weise in x- bzw. y-Richtung orientiert)

Meßdruck: 10^{-9} Torr (1Torr=133 N/m²)

Orientierung des Kristalls: c-Achse ist parallel zur Oberflächennormalen

Diese Arbeitsgruppe hat mit Photonenenergien von 25-60eV einen ca. 10eV breiten Photoelektronenenergiebereich vermessen. Dabei wurde der Elektronenanalysator senkrecht bezüglich der Kristalloberfläche positioniert ($\theta=0$). Man erkennt trotz einer Energieauflösung von 0,1-0,2eV nur Strukturen von ungefähr 2eV Halbwertsbreite. Die Amplituden der Kurven nehmen mit zunehmender Photonenenergie ab, aber die Halbwertsbreiten der Peaks bleiben annähernd konstant. Auch die Gesamtbreite der Struktur erweist sich mit ca. 6eV von E_{γ} weitgehend unabhängig. Am Stärksten ändert sich der Mittelpeak bei $E=-5$ eV. Er sinkt beim Übergang von $E_{\gamma}=25$ eV auf $E_{\gamma}=40$ eV rasch ab. In der Kurve mit $E_{\gamma}=40$ eV taucht ein zusätzlicher Peak bei $E=-8,8$ eV auf, der sonst in keiner Kurve erscheint. Deshalb wurde noch eine Messung mit einer benachbarten Photonenenergie $E_{\gamma}=42$ eV durchgeführt. Hier ist dieser Peak wieder verschwunden, daraus folgt: Der Peak bei $E=-8,8$ eV taucht nur in einem sehr engen Energiebereich um $E_{\gamma}=40$ eV auf. Im linken Bereich der Kurven erkennt man einen Untergrund, dessen Stärke mit abnehmender Photonenenergie zunimmt. Er könnte durch Elektronen-Loch-Paar-Erzeugung verursacht sein (Siehe §4.5). Man beachte: Bei der $E_{\gamma}=25$ eV-Kurve haben die Photoelektronen eine Maximalenergie von $E=E_{\gamma}$ -Austrittsarbeit $\approx 20,4$ eV, d. h. die Photoelektronen im linken Bereich der Kurve haben gerade noch ca. 12eV als kinetische Energie nach Verlassen des Festkörpers.

Messungen von J. Tobin, C. Olson, C. Gu, J. Liu (1992):¹⁶

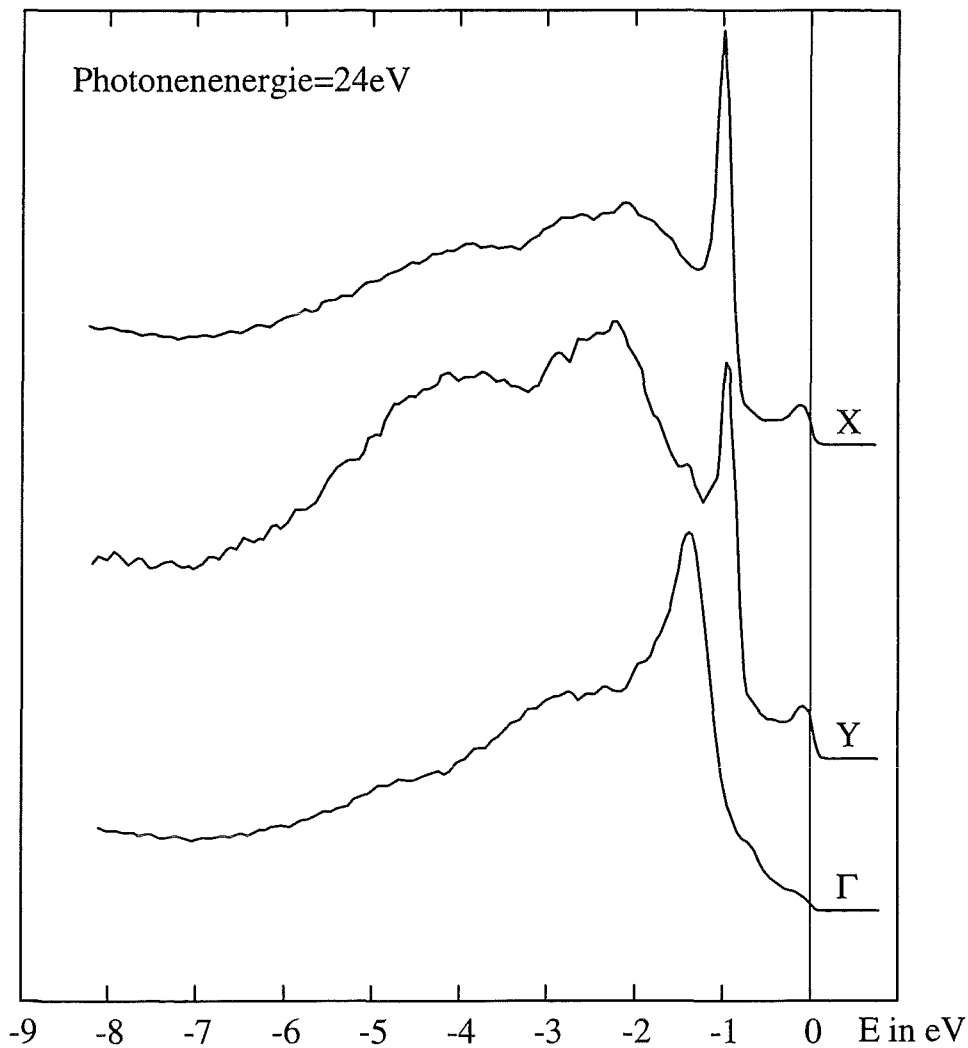


Abb. 5.3.2: ARUPS-Messungen am X-, Y- und Γ-Punkt

Wichtige Daten zur Messung:

Energieauflösung: 32meV

Winkelauflösung: $\pm 1^\circ$

Meßtemperatur: $\approx 20\text{K}$

Photonenenergie: 24eV

Einfallswinkel der Photonen: 40° bezüglich der Oberflächennormalen

Linear polarisiertes Synchrotronlicht mit $\vec{\epsilon} = \begin{pmatrix} \cos 40^\circ \\ 0 \\ \sin 40^\circ \end{pmatrix}$

Ausfallswinkel der Photoelektronen:

Γ	X	Y
$\phi=0^\circ$	$\phi=0^\circ, \phi=21,4^\circ$	$\phi=90^\circ, \phi=21,0^\circ$

Probe: Unverzwillingter Einkristall (Kupferkette ist in y-Richtung orientiert)
Orientierung des Kristalls: c-Achse ist parallel zur Oberflächennormalen

Die Gruppe um J. Tobin hat mit einer wesentlich besseren Energieauflösung ARUPS-Messungen an unverzwillingten Einkristallen durchgeführt. Mit einer festen Photonenenergie von 24eV wurden in einem breiten Photoelektronenenergiebereich Kurven aus verschiedenen Bereichen in der Brillouin-Zone gemessen. Jede der 3 Messungen liefert einen geringen Photostrom bei $E=E_F$. Die Kurve am X-Punkt hat einen sehr schmalen Peak bei $E=-1\text{eV}$ und eine breite aber niedrigere Struktur im Bereich von -1,5 bis -5eV. Am Y-Punkt ist der Peak ein Spur breiter und die breite Struktur im Bereich von -1,5 bis -5eV erheblich höher. In der Umgebung des Γ -Punktes ist der Hauptpeak deutlich breiter als in den anderen beiden Kurven und die breite Struktur erscheint nur noch als Schulter auf der linken Flanke des Hauptpeaks. Nur die untere Γ -Kurve kann mit den Messungen durch Y. Sakisaka ($E_\gamma=25\text{eV}$) verglichen werden. Bei diesem Vergleich stellt man fest, dass die beiden Messungen völlig unterschiedliche Peaklagen und verschiedene Kurvenformen aufweisen.

Messungen von R. Lui, B. Veal, A. Paulikas (1992):¹⁷

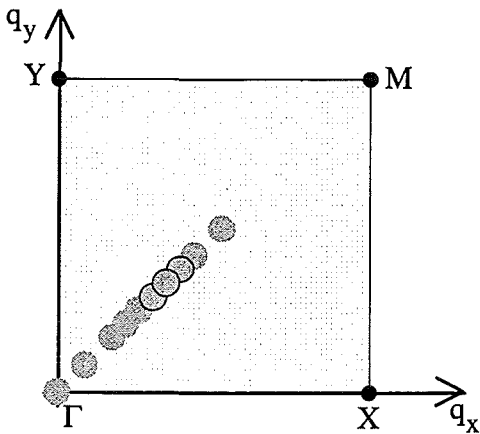


Abb. 5.3.3: Orte in der Brillouin-Zone

Hier war das Ziel die Fermioberfläche in der 2-dimensionalen Brillouin-Zone auszumessen. Mit einer Winkelauflösung von $\pm 2^\circ$ ergibt sich ein Raster von 11x11 Bereiche (In Abb. 5.3.3 die grauen Kreisscheiben). Jeder Meßkurve ist ein solcher Bereich in der Brillouin-Zone zugeordnet. Aus der Vielzahl von ARUPS-Kurven haben wir diejenigen ausgewählt, die auf der Linie Γ -M liegen. Die Kurven gehen von $\phi=\theta=0^\circ$ (Γ -Punkt) bis $\phi=\theta=12^\circ$ (Mitte des Hauptquadranten der Brillouin-Zone). Die Schwarz umrandeten Bereiche kennzeichnen Kreuzungen von Bändern mit der Fermioberfläche.

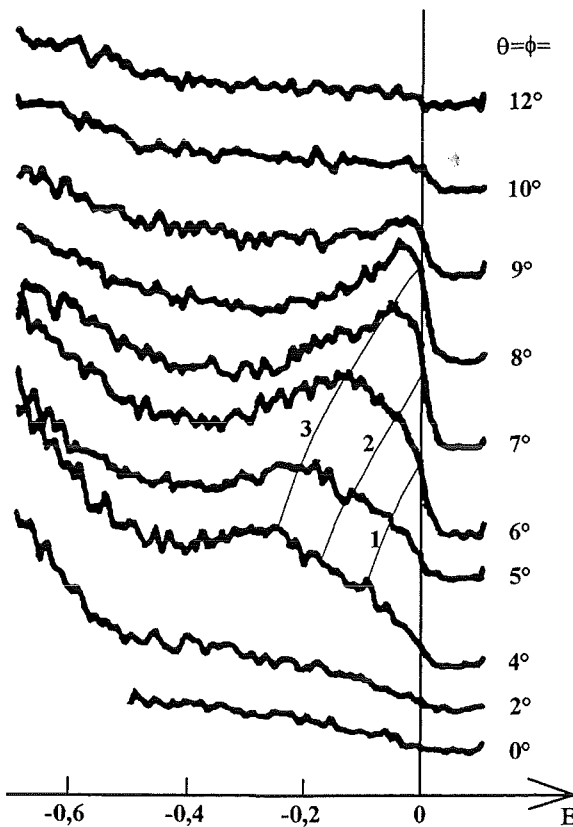


Abb. 5.3.4: ARUPS-Messung $\phi=45^\circ$

Wichtige Daten zur Messung:

- Energieauflösung: 55meV
- Winkelauflösung: $\pm 2^\circ$
- Meßtemperatur: $\approx 20\text{K}$
- Photonenenergie: 21,2eV
- Einfallswinkel der Photonen:
40° bezüglich der Oberflächennormalen
- Linear polarisiertes Synchrotronlicht mit

$$\vec{\epsilon} = \begin{pmatrix} \cos 40^\circ \\ 0 \\ \sin 40^\circ \end{pmatrix}$$

Der Ausfallswinkel der Photoelektronen ist in Abb. 5.3.4 angegeben

ϕ : Winkel in x-Richtung

θ : Winkel in y-Richtung

Probe: Verzwillingter Einkristall

Orientierung des Kristalls: c-Achse ist parallel zur Oberflächennormalen

Nun wollen wir aus den Meßkurven in Abb. 5.3.4 die Orte festlegen, wo Bänder die Fermioberfläche kreuzen. Leider überlagern sich mehrere Bänder unterschiedlicher Amplituden, was besonders die Fixierung von Bändern mit schwachen Signalen erheblich erschwert.

Wir verwenden die Kriterien aus §2.3:

- Von Kurve 8° auf 9° nimmt die Amplitude stark ab => Bei Bereich 9° kreuzt ein Band (3) mit großer Amplitude die Fermienergie.
- Von Kurve 6° auf 7° verschwindet eine Schulter an der rechten Flanke des Hauptpeaks. => Ein Band (1) kreuzt die Fermioberfläche im Bereich 7°.
- In Kurve 5° und 6° ist die Peaklage eines weiteren Bandes (2) zu erkennen. Bei Kurve 7 bleibt von diesem Band nur noch der extrem hohe Quotient und eine Erhöhung des Photostroms an der Fermienergie. => Im Bereich 8° schneidet ein Band (2) die Fermioberfläche.

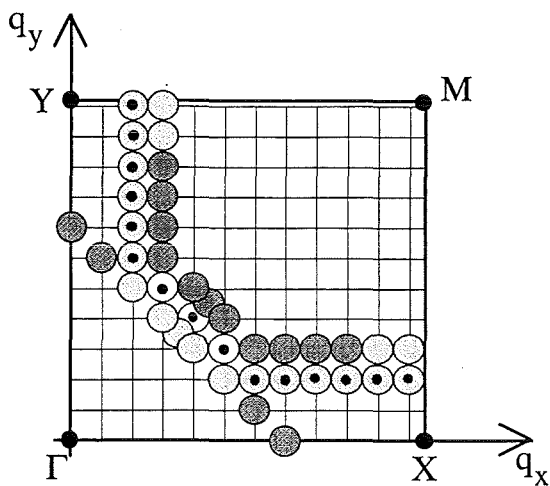


Abb. 5.3.5: Gemessene Fermioberfläche

Aus den veröffentlichten Meßkurven von Liu et al.¹⁷ haben wir eine Fermioberfläche ermittelt und in Abbildung 5.3.5 eingezeichnet. Wegen der verzwilligten Probe ist die Fermioberfläche natürlich x-y-symmetrisch. Die dunkelgrauen Bereiche sind mit hoher Klarheit aus den Meßkurven abzulesen, wogegen die hellgrauen Bereiche aufgrund geringerer Amplitude schwieriger abzulesen und deshalb als weniger sicher einzustufen sind. Die weißen Kreisflächen sind nur durch den Quotienten an der Fermifläche ermittelt. Liu et al. geben eine leicht andere Fermioberfläche an, was wohl daran liegt, daß sie das Quotientenkriterium aus §2.3 nicht verwenden.

Vergleicht man diese gemessene Fermioberfläche mit den beiden errechneten Fermioberflächen durch die LMTO (Abb. 5.2.14) und LMTO+SIC (Abb. 5.2.15), so erkennt man Band 34 als dunkelgrauer Bereich. Band 35 haben wir den Bereichen mit kleinem schwarzen Punkt zugeordnet und Band 36 ist die gerade Linie von Punkt (0,14) bis Punkt (14,0). Wir erkennen Differenzen zwischen der gemessenen Fermioberfläche und den berechneten Fermioberflächen. Band 34 geben beide Rechnungen gut wieder, Band 35 wird durch die LMTO+SIC-Rechnung besser beschrieben und bei Band 36 liegt die LMTO-Rechnung besser. Alles in allem können wir durch den Vergleich der Fermiflächen keinem der beiden Bandstruktureregebnisse den Vorzug geben.

§5.4 Berechnete ARUPS-Kurven

In diesem Paragraph geben wir die Ergebnisse unserer ARUPS-Rechnungen an. Beginnend mit der Rechnung aus §4.3 schreiten wir fort bis zur genauesten Rechnung aus §4.6. Erst wenn die berechneten ARUPS-Kurven gut mit den Messungen übereinstimmen führen wir eine Analyse der Kurven durch.

In den folgenden Paragraphen werden, falls nicht anders genannt, die LMTO+SIC-Bandstrukturergebnisse als Eingabedaten für die ARUPS-Rechnungen verwendet.

§5.4.1 Bulk-ARUPS-Rechnung (BAR) zu der Messung von Sakisaka et al. mit LMTO+SIC-Daten

In §4.3 haben wir die Formel der BAR (Gleichung 50) ausführlich hergeleitet.

An dieser Stelle wollen wir nur nochmals die verwendeten Näherungen erwähnen:

Näherung1: Das Photoelektron spürt kein Festkörperpotential.

Näherung2: Wir setzen den Festkörper unendlich ausgedehnt und somit ohne Oberfläche an. Die Photoelektronen kommen aus dem ganzen Bulk, nicht nur aus der Oberflächennähe.

Abbildung 5.4.1.1 zeigt die Ergebnisse der BAR unter den von Y. Sakisaka et al.¹⁵ angegebenen Meßbedingungen. Wir haben also Energieauflösung, Winkelauflösung, Polarisationsvektor, Temperatur, Einfallswinkel der Photonen und Ausfallswinkel der Photoelektronen den Meßbedingungen entnommen. Zum besseren Vergleich geben wir direkt unter den berechneten Kurven in Abb. 5.4.1.1 noch die gemessenen Kurven von Y. Sakisaka an. Nun wollen wir die Frage klären: Beschreiben die berechneten Kurven der BAR die gemessenen Kurven gut genug, um durch Analyse der errechneten Bulk-Kurven die Meßkurven verstehen zu können? Die beiden Kurven mit $E_\gamma=25\text{eV}$ und $E_\gamma=30\text{eV}$ haben eine der Messung ähnliche Struktur mit einem ausgeprägten Mittelpeak und kleineren Randpeaks. Die Kurven $E_\gamma=42\text{eV}$ und $E_\gamma=50\text{eV}$ weichen völlig von den Messungen ab. Der Mittelpeak ist bei diesen beiden errechneten Kurven durch destruktive Interferenz der atomaren Beiträge nahezu verschwunden. Wir erkennen: Die einfache BAR reicht bei weitem nicht aus, um die Messung richtig zu beschreiben.

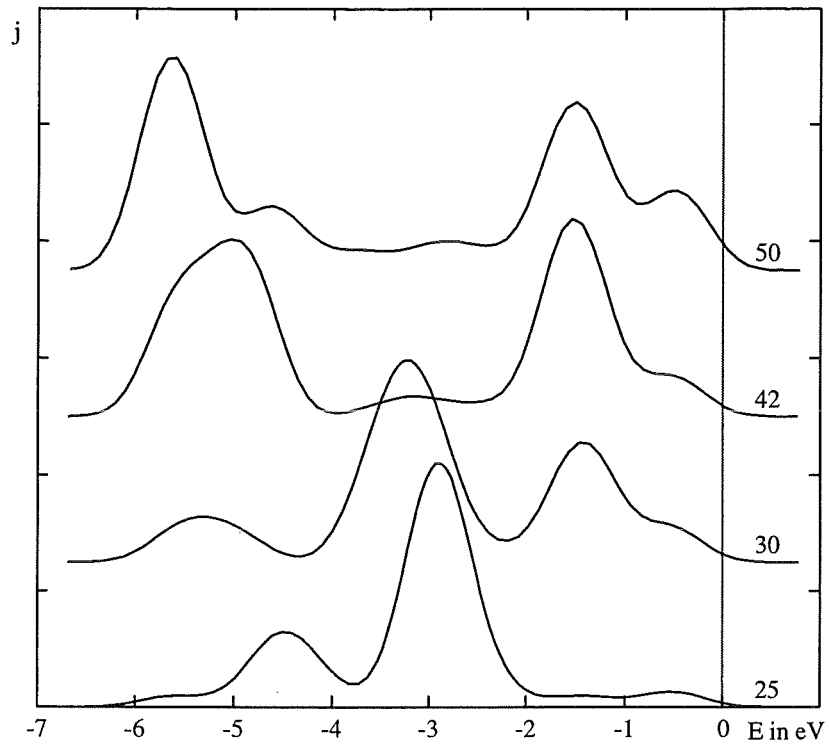
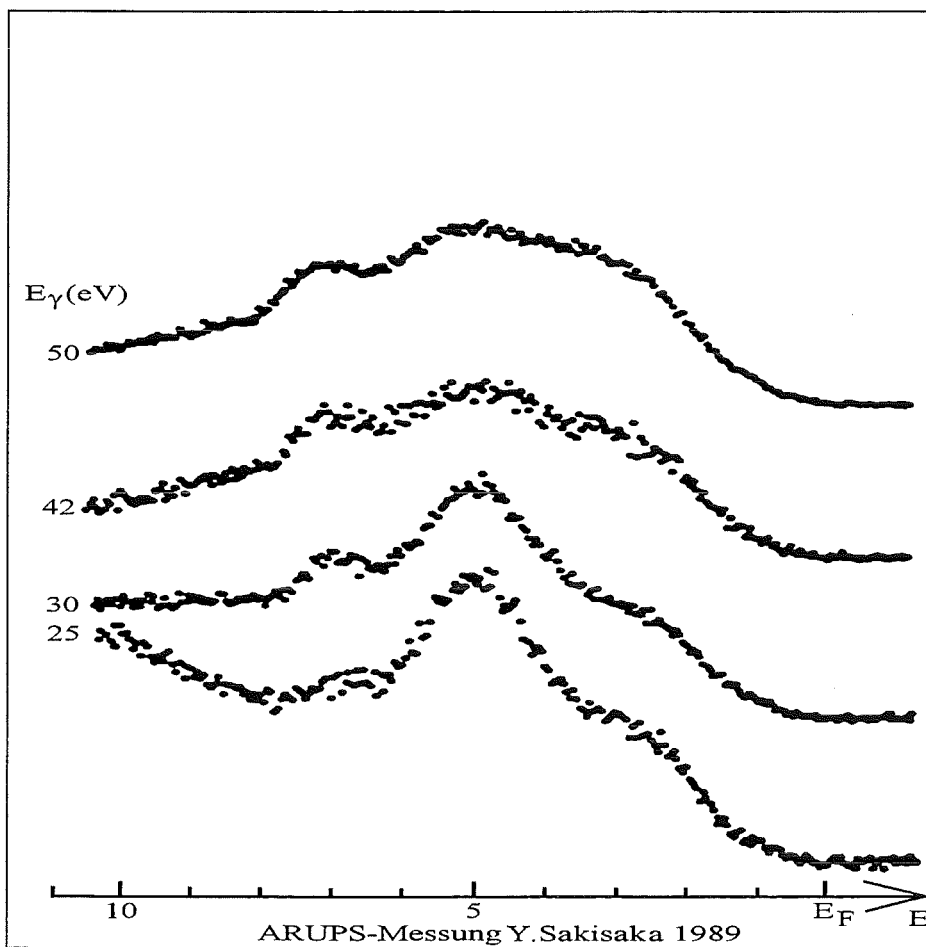


Abb. 5.4.1.1: Bulk-ARUPS-Rechnung (BAR)



§5.4.2 Vielschicht-ARUPS-Rechnung (VAR) zu der Messung von Sakisaka et al. mit LMTO+SIC-Daten

Um die ARUPS-Rechnung zu verbessern, erscheint es sinnvoll, die Berechtigung der Näherungen der BAR genauer zu prüfen. Nach einer Veröffentlichung von L. Ley¹⁹ ist die mittlere freie Weglänge von Elektronen im Festkörper weitgehend vom Material unabhängig, und man kann eine universelle Kurve für die Abhängigkeit der freien Weglänge von der Elektronenenergie angeben.

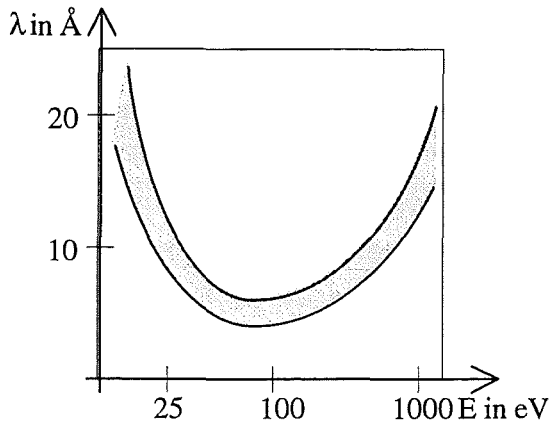


Abb. 5.4.2.1: Universelle Kurve der freien Weglänge

Nach dieser universellen Kurve ist die freie Weglänge λ bei den ARUPS-Messungen im Bereich von 5-15 Å. Die Elementarzelle von $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ hat die Ausmaße (3,813 Å x 3,881 Å x 11,630 Å), d. h. die freie Weglänge ist in der Größenordnung der Schichtdicke (11,6303 Å). Die Näherung, die Photoelektronen kommen vom ganzen Bulk, ist also sehr schlecht.

Die Proben sind bei den neueren Messungen im Vakuum gespaltene Einkristalle. Dadurch ist die Oberfläche sehr eben mit nur wenig Versetzungslinien und sauber. Wir geben also dem Festkörper in unserer Rechnung eine zur x-y-Ebene parallele Oberfläche. Dabei tritt ein zusätzliches Problem auf: Je nachdem, an welcher Stelle man den Festkörper spaltet, erhält man je zwei eventuell unterschiedliche Proben mit unterschiedlichen Oberflächen. In Übereinstimmung mit der Gruppe um N. Schröder²⁰ spalten wir den $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ -Kristall an seiner energetisch günstigsten Stelle, nämlich zwischen dem Bariumatom und der Kupferebene. In §5.1 ist diese Spaltstelle in das Strukturbild von $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ eingetragen. Die Elementarzelle wird durch die Spaltung in zwei Teile getrennt: Die Oberfläche des einen Teils wird durch die Ebenenatome gebildet, wogegen die Oberfläche des zweiten Teils durch Bariumatome und Apexsauerstoffatome gebildet wird. Diese eine Spaltstelle erzeugt zwei Proben mit unterschiedlichen Kristalloberflächen. Zur Unterscheidung haben wir sie mit A bzw. B bezeichnet und in das Strukturbild in §5.1 eingezeichnet. Probe A hat als äußerste Atome Barium und Apexsauerstoff, wohingegen Probe B als äußerste Atome Ebenenkupfer und Ebenensauerstoff hat. Bei den Messungen ist die Probenseite unbekannt. Welche der beiden Proben im Endeffekt bei der Messung vorliegt, hängt davon ab, wie der Festkörper auf den Probenhalter aufgeklebt ist. Wird ein Kristall zwischen den Meßzeiten mehrmals gespalten, so liegt trotzdem stets dieselbe Oberfläche vor.

Die endliche freie Weglänge λ hat noch eine andere Folge: Weil die Position der einzelnen Atome unterschiedlich weit von der Oberfläche entfernt ist, wird der Photostrom atomabhängig verschieden vermindert. In unserer Rechnung wurde mit 3-5 Schichten gerechnet, womit über 99% aller Photoelektronen berücksichtigt sind.

Die Herleitung für die Formel der VAR ist in §4.4 angegeben und weist zwei wesentliche Näherungen auf:

Näherung1: Das Photoelektron spürt kein Festkörperpotential.

Näherung2: Die Greensche Funktion in Oberflächennähe ist gleich der Greenschen Funktion im Bulk.

Nun vergleichen wir die nach Formel 53 errechneten Kurven in Abbildung 5.4.2.2 und 5.4.2.3 mit der Messung (Abb. 5.3.1): Die Rechnung der Probe A hat bei den meisten Photonenenergien einen starken Peak im rechten Bereich bei $E=-1,5\text{eV}$. Nur die $E_\gamma=25\text{eV}$ -Kurve hat ihren Hauptpeak in mittleren Bereich bei $E=-3\text{eV}$. Ganz anders die Struktur der Kurven von Probe B: Hier ist der Hauptpeak bei allen Photonenenergien im mittleren Bereich bei $E=-3\text{eV}$. Wie in den Meßkurven nimmt dieser Mittelpeak mit steigender Photonenenergie um einen Faktor 2 ab. Auch der linke Bereich der Meßkurven wird einigermaßen gut wiedergegeben. In den Meßkurven ist ein Peak ca. 2eV unter dem Mittelpeak zu erkennen. Dieser ändert, im Gegensatz zu dem Mittelpeak, seine Amplitude nicht bei veränderter Photonenenergie. Die Rechnung B liefert links des Mittelpeaks eine Doppelpeakstruktur. Diese ist in ihrer Amplitude ebenfalls von der Photonenenergie unabhängig und hat bezüglich des Mittelpeaks auch die richtige Amplitude. Der linke Bereich der Meßkurve weist besonders bei der 25eV -Kurve einen starken Untergrund auf, der natürlich in der errechneten Kurve fehlt. Die Struktur im rechten Bereich des Mittelpeaks entwickelt sich bei der Meßkurve von einer leichten Schulter bei der $E_\gamma=25\text{eV}$ -Kurve mit zunehmender Photonenenergie zu einem Beitrag derselben Größe wie der linke Peak. Auch die errechnete B-Kurve bei $E_\gamma=25\text{eV}$ hat die kleinste Struktur im rechten Bereich, jedoch ist sie bei der $E_\gamma=30\text{eV}$ -Kurve etwas zu groß. Die errechneten Kurven sind gegenüber der Messung auf der x-Achse um ca. 2eV verschoben. Darauf gehen wir später bei der Selbstenergiekorrektur ein.

Wir fassen zusammen:

Die beiden Proben A und B liefern deutlich unterschiedliche ARUPS-Kurven. Vergleich mit der Meßkurve liefert gute Übereinstimmung bei Seite B und erhebliche Unterschiede bei Seite A. Wir schließen daraus, daß die Messung mit einem Kristall der Oberfläche B durchgeführt wurde.

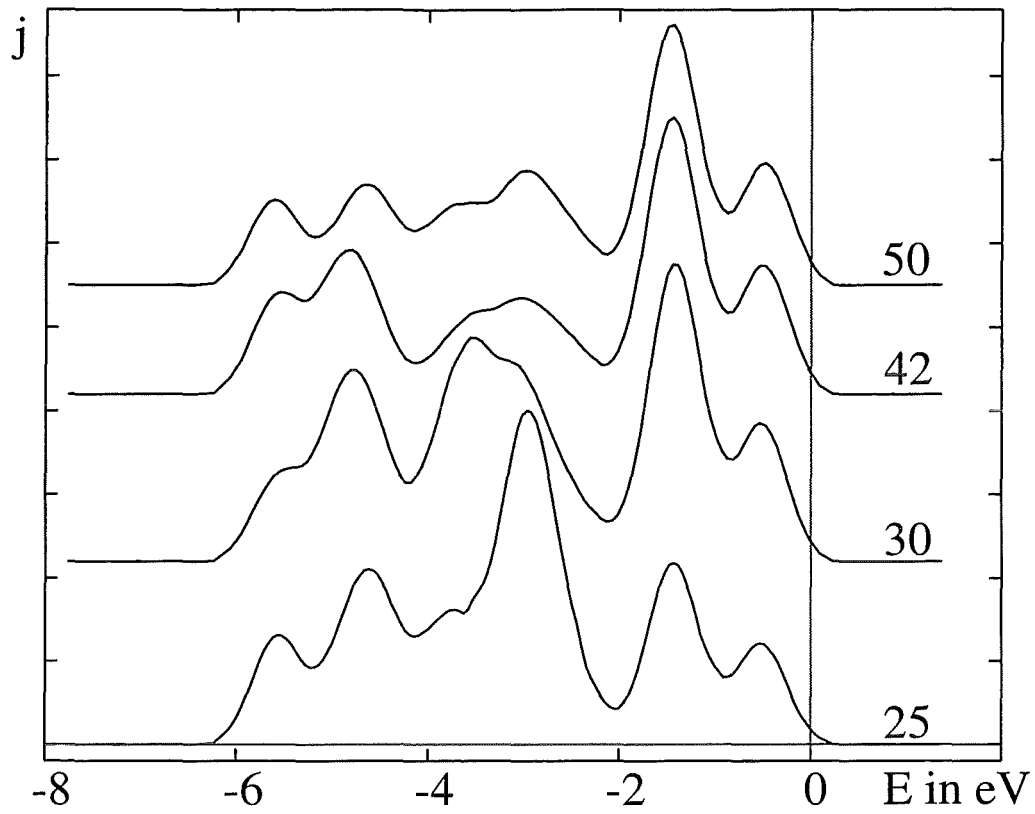


Abb. 5.4.2.2: Vielschicht-ARUPS-Rechnung (VAR) Probe A

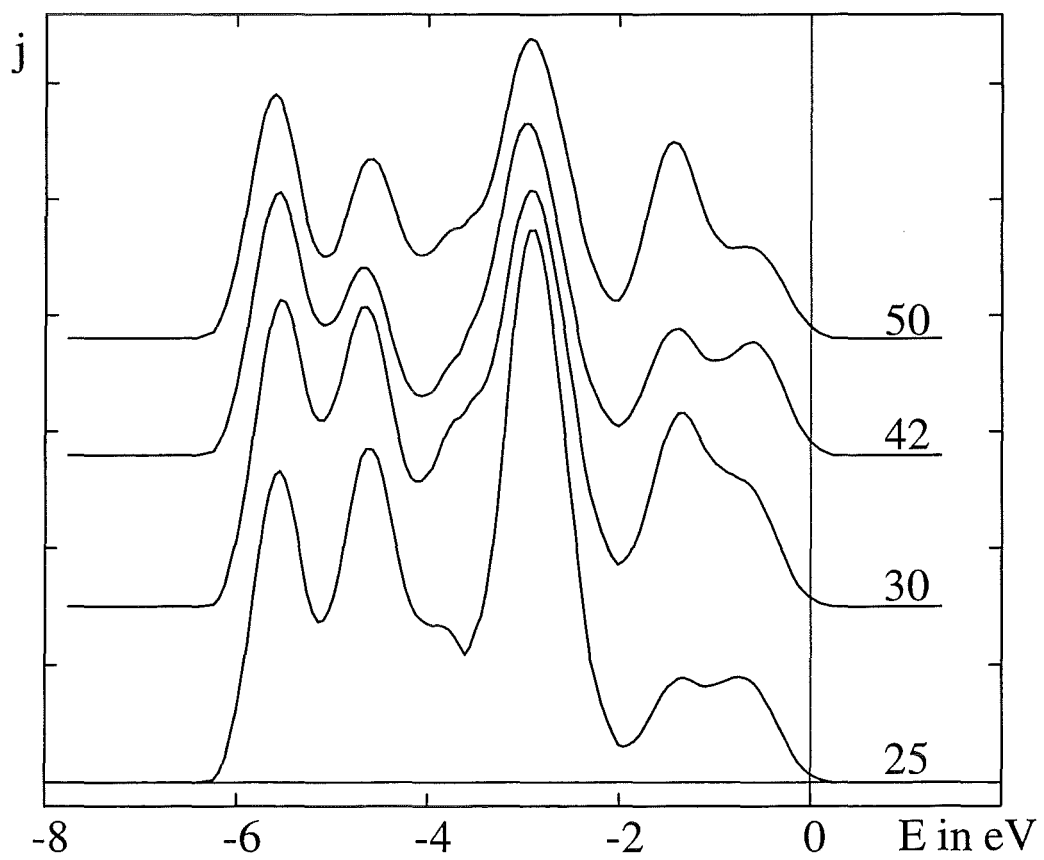


Abb. 5.4.2.3: Vielschicht-ARUPS-Rechnung (VAR) Probe B

§5.4.3 Vielschicht-ARUPS-Rechnung (VAR) mit Festkörperpotential zu der Messung von Sakisaka et al. mit LMTO+SIC-Daten

In der BAR haben wir wesentliche Näherungen gemacht. Eine davon, unendlicher Festkörper, haben wir bei der VAR schon beseitigt. Nun wenden wir uns der Potentialnäherung zu. In der VAR mit Festkörperpotential bewegt sich das Photoelektron bis zur Oberfläche im Festkörperpotential, welches wir der Bandstrukturrechnung für den Bulk entnehmen. Genau betrachtet braucht man ein vom Abstand zur Oberfläche abhängiges Potential, was aber leider nicht zur Verfügung steht. In sehr guter Näherung genügt aber das Bulkpotential. Natürlich ist in der VAR mit Festkörperpotential die freie Weglänge und die Existenz der Oberfläche berücksichtigt. In §4.5 ist die Formel der VAR mit Festkörperpotential hergeleitet. Hier formulieren wir nochmals die verbliebene Näherung:

Näherung1: In Oberflächennähe verwenden wir Bulkdaten (Potential, Blochkoeffizienten, Radialwellenfunktionen, Energieeigenwerte).

Erwähnen möchten wir noch, daß auch in dieser Rechnung noch keine Vielteilcheneffekte berücksichtigt sind.

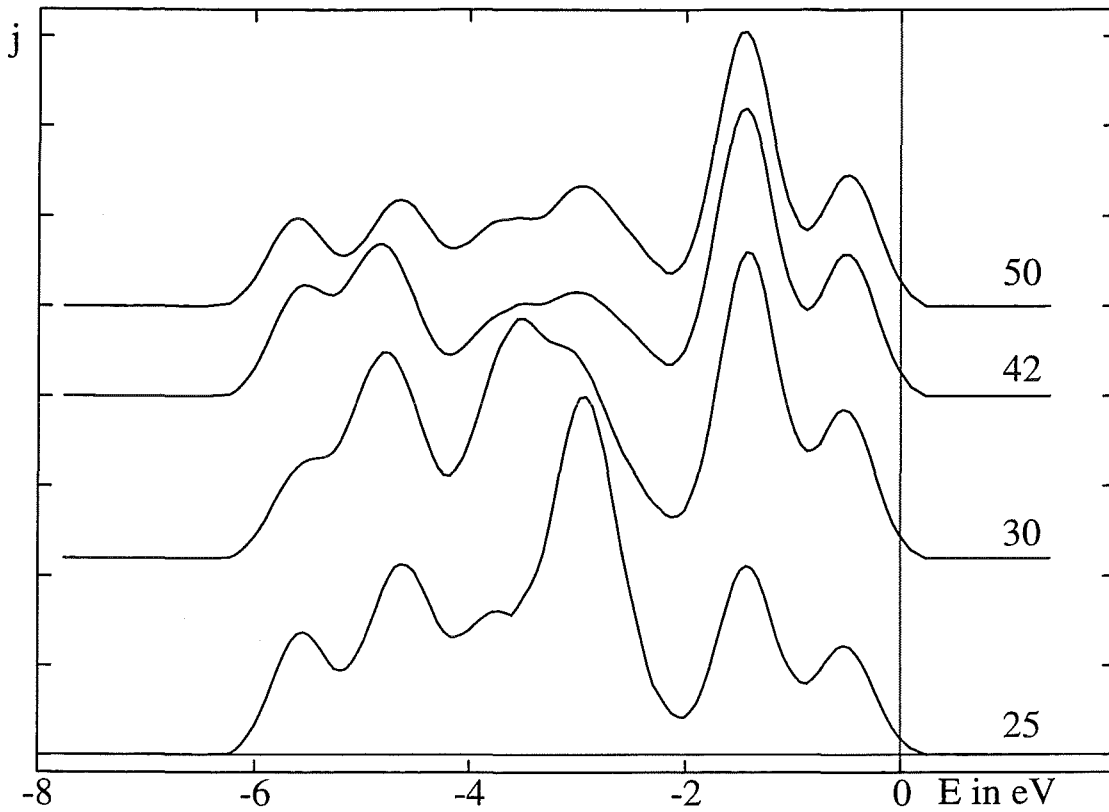


Abb. 5.4.3.1: Vielschicht-ARUPS-Rechnung (VAR) mit Festkörperpotential Probe A

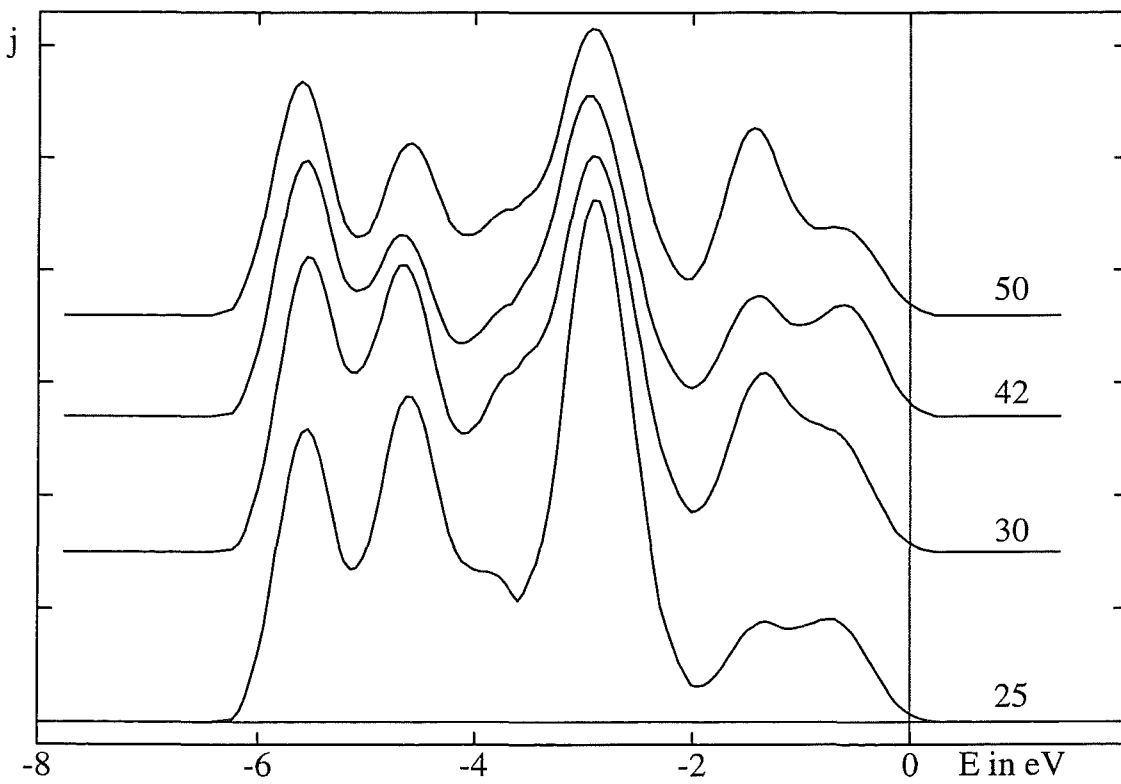


Abb. 5.4.3.2: Vielschicht-ARUPS-Rechnung (VAR) mit Festkörperpotential Probe B

Auf den ersten Blick sehen die VAR-Kurven mit Festkörperpotential in Abbildung 5.4.3.1 und 5.4.3.2 den VAR-Kurven ohne Festkörperpotential in Abbildung 5.4.2.1 und 5.4.2.2 sehr ähnlich. Darum tragen wir exemplarisch für alle Photonenenergien eine VAR-Kurve mit und ohne Festkörperpotential in eine Abbildung (5.4.3.3) ein.

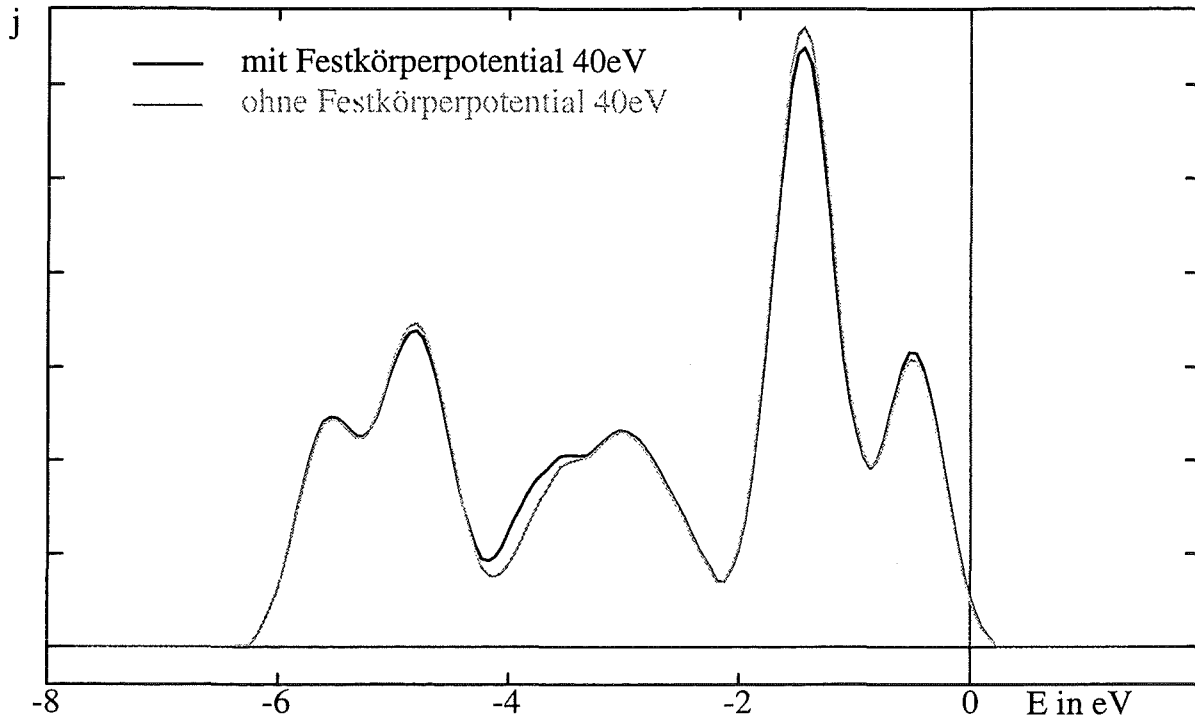


Abb. 5.4.3.3: Vergleich VAR-Rechnungen mit und ohne Festkörperpotential

Wir erkennen nur sehr geringe Unterschiede zwischen den beiden Rechnungen.

§5.4.4 Selbstenergiekorrigierte ARUPS-Rechnung (SEKAR) zu der Messung von Sakisaka et al. mit LMTO+SIC-Daten

Beim Vergleich der Messungen mit den VAR-Ergebnissen fallen zwei Unterschiede auf:

- Die errechneten Kurven sind trotz berücksichtigter Energieauflösung des Elektronenanalysators noch wesentlich stärker strukturiert als die Messungen.
- Die errechneten Kurven sind auf der x-Achse energetisch gegenüber den Messungen verschoben.

Aus §4.6 wissen wir, daß die Selbstenergiekorrektur der G^+ -Linie im Keldysh-Graph die Strukturen in den errechneten Kurven verschmiert und verschiebt. Um die Selbstenergiekorrektur durchzuführen, hat man die VAR-Formel (Gleichung 60) durch die Formel der selbstenergiekorrigierten ARUPS-Rechnung (SEKAR) (Gleichung 61) zu ersetzen. In dieser Gleichung taucht die komplexe Selbstenergie $\Sigma_\lambda(\omega)$ in Abhängigkeit vom Bandindex und der Energie auf.

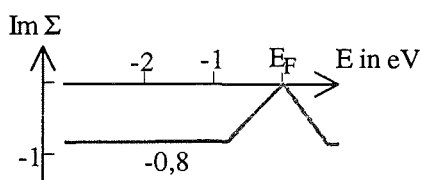


Abb. 5.4.4.1: Imaginärteil der Selbstenergie

Die komplexe Selbstenergie ist sehr aufwendig zu berechnen. Deshalb haben wir für die ARUPS-Kurven mit großem Energiebereich die Selbstenergie nicht berechnet, sondern als Parameter den Meßkurven angepaßt. So sind die errechneten VAR-Kurven bezüglich der Meßkurven um 1,5eV nach rechts verschoben,

was einem Realteil der Selbstenergie von +1,5eV entspricht. Den Imaginärteil der Selbstenergie haben wir der Halbwertsbreite der Meßkurven angepaßt und auf -0,8eV festgelegt. Die Arbeit von Schütz¹⁴ gibt für die Energieabhängigkeit des Imaginärteils der Selbstenergie folgendes an: In einem sehr kleinen Bereich um die Fermienergie steigt $\text{Im}\Sigma$ quadratisch an und ist im übrigen Energiebereich materialabhängig sehr stark strukturiert. Für unsere Zwecke genügt es jedoch, den Imaginärteil der Selbstenergie von der Fermienergie aus linear auf den Wert -0,8eV ansteigen zu lassen, denn die Einführung der Selbstenergie bei den Sakisaka-Kurven soll nur den Vergleich der errechneten Kurven mit den gemessenen Kurven erleichtern. Wie Abbildung 5.4.4.2 zeigt, beschreiben die errechneten Kurven bis auf den Untergrund im linken Bereich die Meßkurven ausgezeichnet. Damit kann durch Analyse der errechneten Kurven die Struktur der gemessenen Kurven ergründet werden.

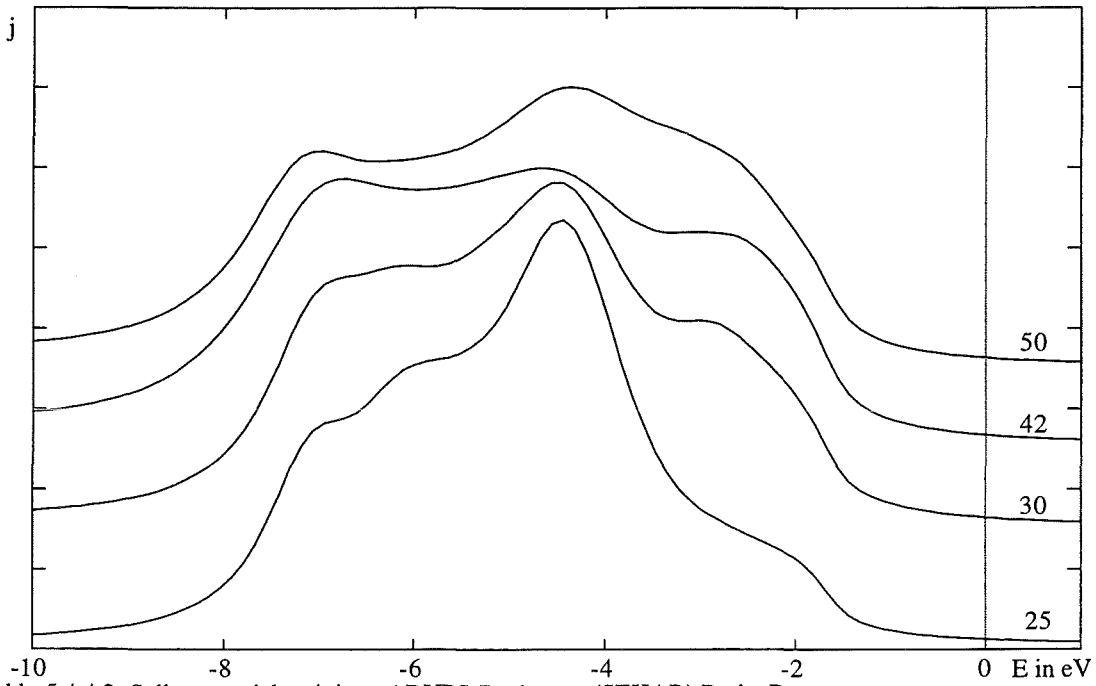
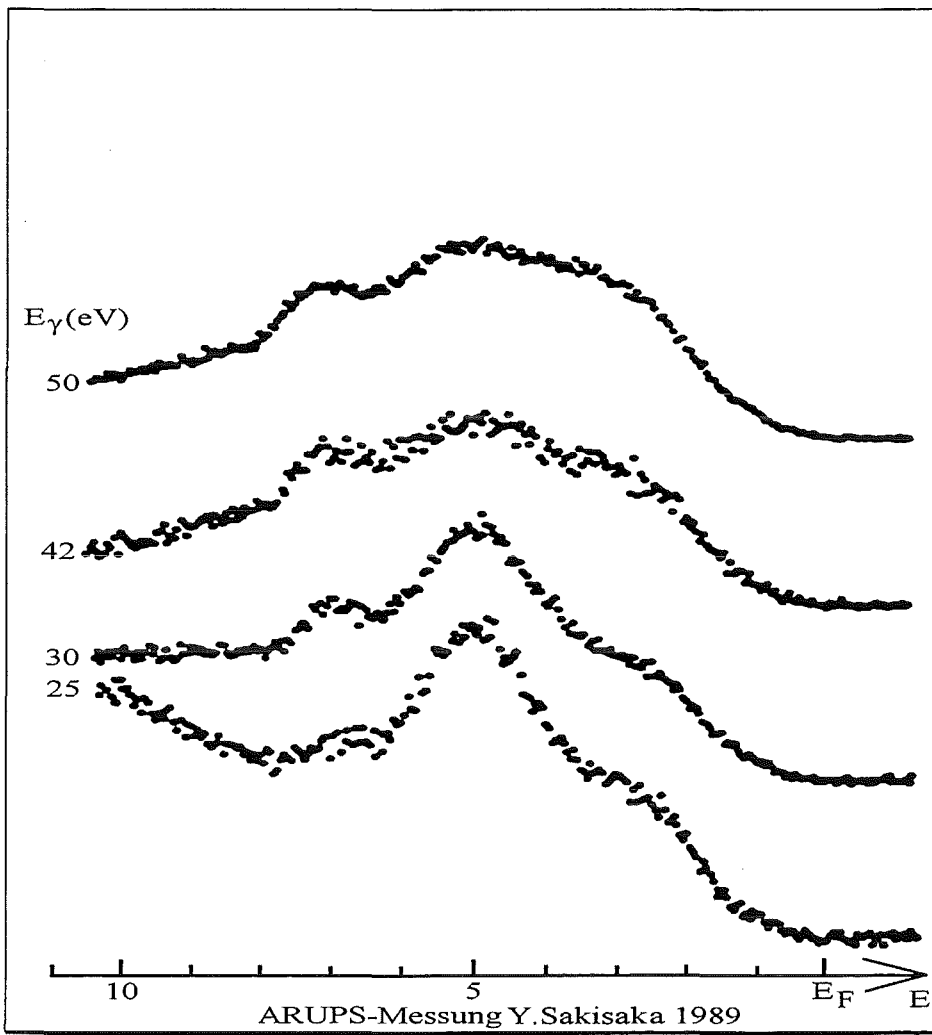


Abb. 5.4.4.2: Selbstenergiekorrigierte ARUPS-Rechnung (SEKAR) Probe B



ARUPS-Messung Y. Sakisaka 1989

§5.4.5 Analyse der Messung von Sakisaka et al.

Die gute Übereinstimmung der selbstenergiekorrigierten ARUPS-Rechnung (SEKAR) mit der Messung von Y.Sakisaka et al. gibt uns die Möglichkeit zu analysieren, wodurch die Form der gemessenen Kurven bestimmt ist. In den gemessenen Kurven haben die Peaks eine Halbwertsbreite von ca. 2eV und werden mit einer Energieauflösung von 0,2eV abgetastet. Die Verbreiterung ist also nicht hauptsächlich durch die Energieauflösung des Elektronenanalysators bedingt. Führen wir in der VAR eine komplexe Selbstenergie ein, so verschmieren sich die Kurven und wir erhalten bei ungefähr $\text{Im}\Sigma = -0,8\text{eV}$ die Halbwertsbreiten der Meßkurven.

Zur weiteren Analyse ist es zweckmäßiger, die unverbreiterten Kurven zu betrachten. Dort sieht man besser leichte Änderungen der Kurvenform.

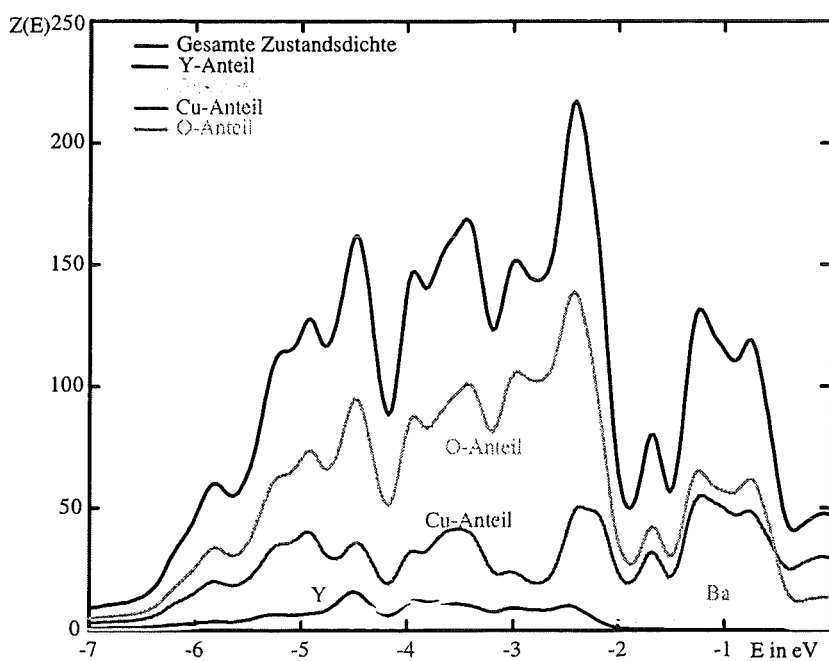


Abb. 5.4.5.1: Zustandsdichte $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$

In Abbildung 5.4.5.1 haben wir die Zustandsdichten von $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$, verschmiert mit der Energieauflösung der Messung, eingemalt.

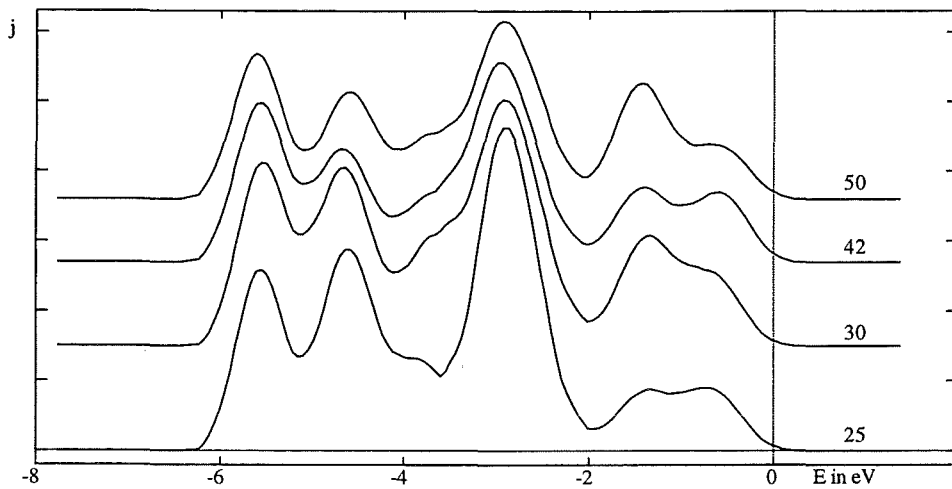


Abb. 5.4.5.2: Vielschicht-ARUPS-Rechnung (VAR) mit Festkörperpotential Probe B

Wir vergleichen nun mit der VAR (Abb. 5.4.3.2): Die Gesamtbreite der ARUPS-Kurven ist mit der Breite der besetzten Zustandsdichte identisch, denn das einfallende Licht kann im Bereich der unbesetzten Zustandsdichte nicht absorbiert werden. Aus den partiellen Zustandsdichten in Abb. 5.4.5.1 können wir grob die atomare Zusammensetzung der ARUPS-Kurven ermitteln. Demnach liefern im ganzen Bereich die Sauerstoffe den Hauptanteil, nur an der Fermienergie überwiegt Kupfer. Die Drehimpulszusammensetzung der ARUPS-Kurven kann ebenfalls grob aus den partiellen nach Drehimpulsen aufgelösten Zustandsdichten (Gleichung 21) entnommen werden. Die ARUPS-Rechnung (Gleichungen 60+61) selbst gibt nur an, welche Atome und Drehimpulse nennenswerte Beiträge liefern, nicht aber wie groß diese Beiträge sind. Die Ursache hierfür ist, daß in Gleichung 60 die Summen über die Atome κ und die Drehimpulse l im Matrixelement A stehen und sich damit innerhalb eines Betragsquadrates befinden. Anders verhält es sich mit den Beiträgen der Bänder: In Gleichung 60 steht die Summe über die Bänder λ vor dem Betragsquadrat, also können die errechneten ARUPS-Kurven leicht nach Bandanteilen zerlegt werden. Aus den ARUPS-Kurven kann man offensichtlich keine näheren Informationen über die besetzte Zustandsdichte des Materials erhalten, denn je nach eingestrahelter Photonenenergie erhält man eine andere ARUPS-Kurve.

Wodurch kommt die photonenenergieabhängige Form der Meßkurven zustande?
 Betrachten wir uns dazu die Formel der VAR (Gleichung 53). Um zu prüfen, ob die Energieabhängigkeit durch das Matrixelement A verursacht wird, setzen wir das Matrixelement A gleich 1 und erhalten Abbildung 5.4.3.3. Ohne Matrixelement haben alle Kurven eine fast identische Struktur, wobei die Höhe der Amplituden ungefähr mit $\sqrt{E_\gamma}$ geht (Siehe Anhang8). Die Abhängigkeit der ARUPS-Kurven von der Photonenenergie ist also durch das Matrixelement verursacht.

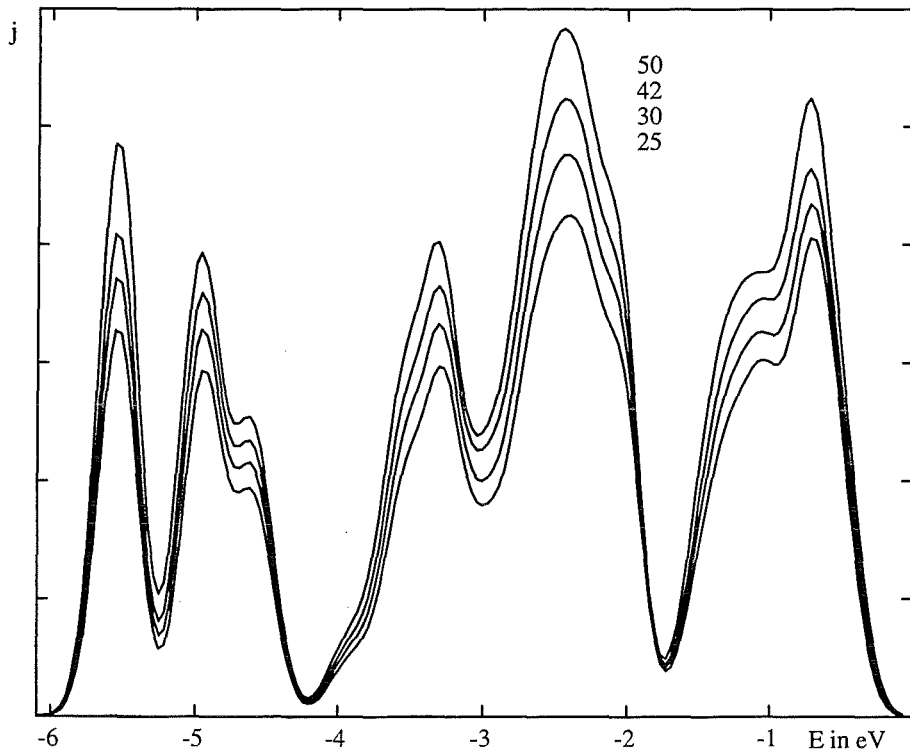


Abb. 5.4.5.3: Vielschicht-ARUPS-Rechnung (VAR) ohne Matrixelement A

Betrachten wir uns das Matrixelement genauer: In den beiden folgenden Abbildungen 5.4.3.4 und 5.4.3.5 sind jeweils eine Rechnung mit und ohne Berücksichtigung des Photonenimpulses dargestellt.

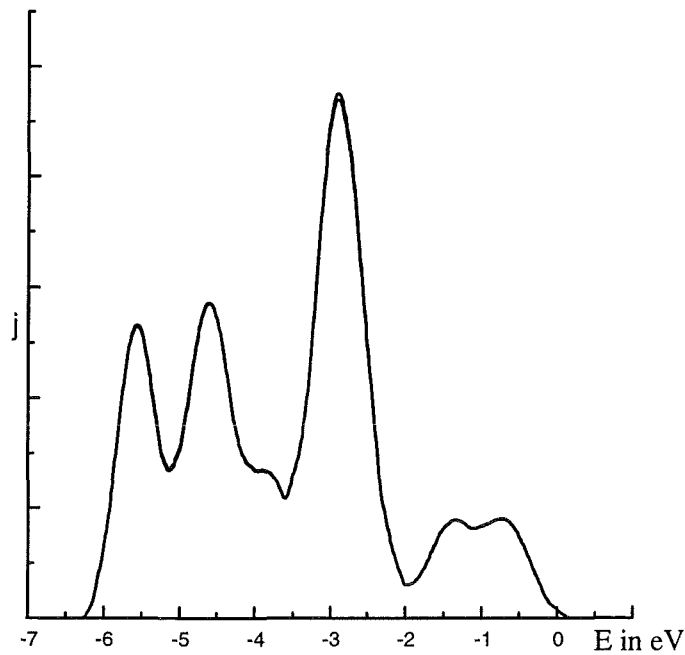


Abb. 5.4.5.4: VAR mit und ohne Photonenimpuls
Die Photonenenergie beträgt 25eV

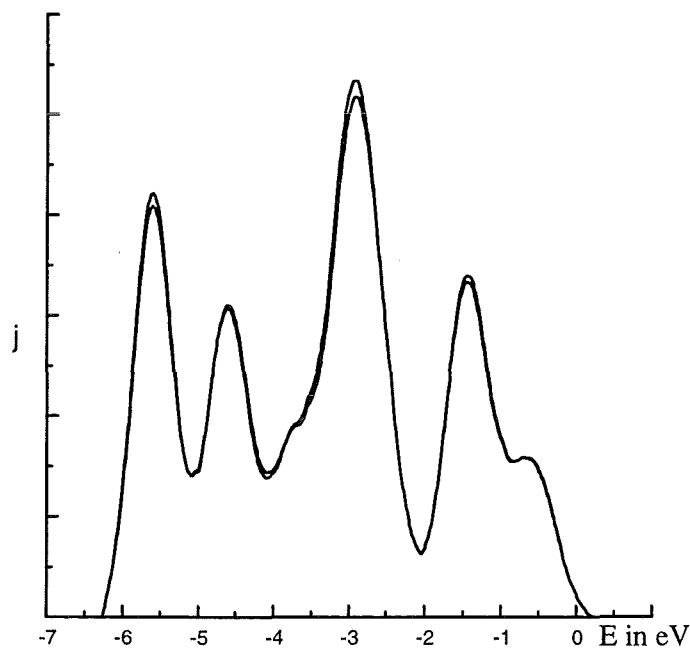


Abb. 5.4.5.5: VAR mit und ohne Photonenimpuls
Die Photonenenergie beträgt 50eV

Wir erkennen eine sehr geringe Abhängigkeit der ARUPS-Kurven vom Photonenimpuls. Das war zu erwarten, denn der Photonenimpuls ist im Vergleich zum Elektronenimpuls sehr klein (Faktor ≈ 150).

Über die Energieerhaltung §2.2 wirkt sich eine veränderte Photonenenergie auch auf die Photoelektronenenergie ω und damit auf den Betrag des Photoelektronenimpulses \vec{k} aus. Eine weitere Analyse der Rechnung zeigt, daß sowohl die Kugelwellenfunktion

$Y_{l\tilde{m}}\left(\left(\bar{k} - \bar{k}_\gamma\right)^0\right)$ als auch die sphärische Besselfunktion $j_l\left(\left|\bar{k} - \bar{k}_\gamma\right|\rho\right)$ sehr geringe Abhängigkeiten von der Photonenenergie aufweisen. Auch das haben wir erwartet, stammen doch diese beiden Funktionen aus der Entwicklung der Exponentialfunktion $e^{-i\bar{p}\left(\bar{k} - \bar{k}_\gamma\right)}$ und der lokale Ortsvektor \bar{p} ist kleiner als die Atomvektoren \bar{k} und die Schichtvektoren \bar{R}_j . Nun können wir das Matrixelement in Gleichung 53 wie folgt schreiben:

$$A = \sum_{\kappa, j'} e^{-i(\bar{R}_j + \bar{k})\bar{k}} \text{Rest}_{\kappa, j'} \quad \begin{array}{l} \kappa = \text{Atomindex} \\ j' = \text{Schichtindex} \end{array}$$

und den Photostrom

$$\bar{j} \propto \left| \sum_{\text{Atome}} \text{Atombeiträge} \cdot \text{Phasenfaktor} \right|^2 = \left| \sum_{\kappa, j'} \text{Rest}_{\kappa, j'} e^{-i(\bar{R}_j + \bar{k})\bar{k}} \right|^2 \quad (62)$$

Jedes Atom in den emitierenden Schichten in Oberflächennähe ist eine Photoelektronenquelle. Aufgrund der unterschiedlichen Orte der Atome $(\bar{R}_j + \bar{k})$ haben die Elektronen atomabhängig eine unterschiedliche Phase. Der Photostrom bildet sich als Summe aller atomaren Elektronenbeiträge, d. h. ARUPS-Kurven sind Interferenzkurven einzelner Atombeiträge. Wenn sich also mit steigender Photonenenergie der Betrag der Photoelektronenimpulse vergrößert, wird der Phasenfaktor der atomaren Beiträge größer und das Interferenzbild ändert sich.

Zusammenfassung:

- Die großen Halbwertsbreiten der Meßkurven sind durch die Selbstenergie des Propagators $G^{+}(\omega-E_{\gamma})$ bedingt.
- Der Untergrund im linken Kurvenbereich ist ein Vielteilcheneffekt. Die Photoelektronen geben durch Stoß mit Bandelektronen Energie ab und erzeugen Elektronen-Loch-Paare.
- Der Gesamtbereich der ARUPS-Kurven ist durch die besetzte Zustandsdichte vorgegeben, denn nur im besetzten Bereich sind Elektronen vorhanden um das eingestrahlte Licht zu absorbieren.
- Aus den partiellen Zustandsdichten können grob die Beiträge der Atome und Drehimpulse zur ARUPS-Kurve entnommen werden. An der Fermienergie sind die Hauptbeiträge Cu_{Ed} (42,7%), Cu_{Kd} (18,8%), O_{Ep} (16,5%) und O_{Ap} (9,4%).
- Die ARUPS-Rechnung (Gleichung 60) gibt die Bandzusammensetzung an. Die Strukturen in den ARUPS-Kurven bestehen meist aus einer Summe von Bändern, so besteht z. B. der Mittelpeak in der Messung von Sakisaka et al. aus den Bändern 22-28, also aus 7 Bändern.
- Aus den gemessenen ARUPS-Kurven kann man keine detaillierten Informationen über die besetzte Zustandsdichte erhalten. Insbesondere kann man aus dem photonenergieabhängigen Kurvenverlauf nicht auf die Elektronendispersion in z-Richtung schließen.
- **ARUPS-Kurven sind Interferenzkurven einzelner Atombeiträge.**
- Größere Photonenenergien erzeugen größere Photoelektronenimpulse $\hbar\vec{k}$, andere Phasenfaktoren (Gleichung 62) und damit andere Interferenzkurven.

§5.4.6 Selbstenergiekorrigierte ARUPS-Rechnung (SEKAR) zu der Messung von Sakisaka et al. mit LMTO-Daten

Bisher haben wir in §5.4 ausschließlich als Eingabedaten die Ergebnisse der LMTO+SIC-Bandstrukturmethode verwendet. Nun präsentieren wir unsere ARUPS-Rechnungen mit LMTO-Eingabedaten:

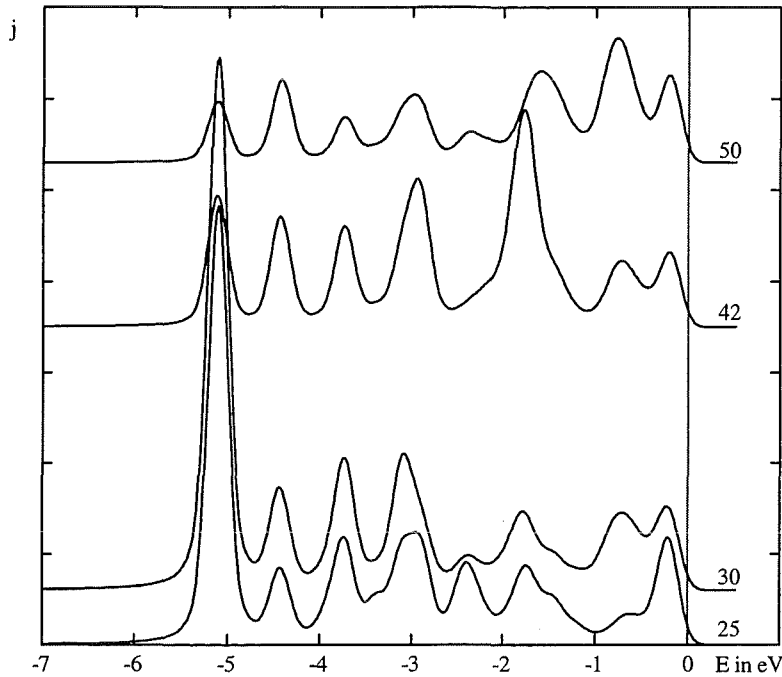


Abb. 5.4.6.1: Vielschicht-ARUPS-Rechnung (VAR) mit Festkörperpotential und LMTO-Daten Probe A

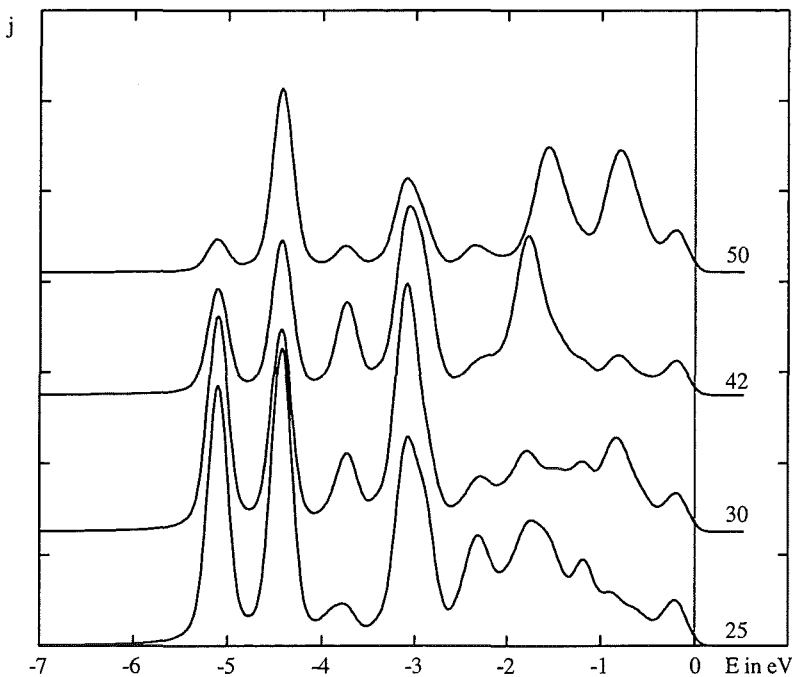


Abb. 5.4.6.2: Vielschicht-ARUPS-Rechnung (VAR) mit Festkörperpotential und LMTO-Daten Probe B

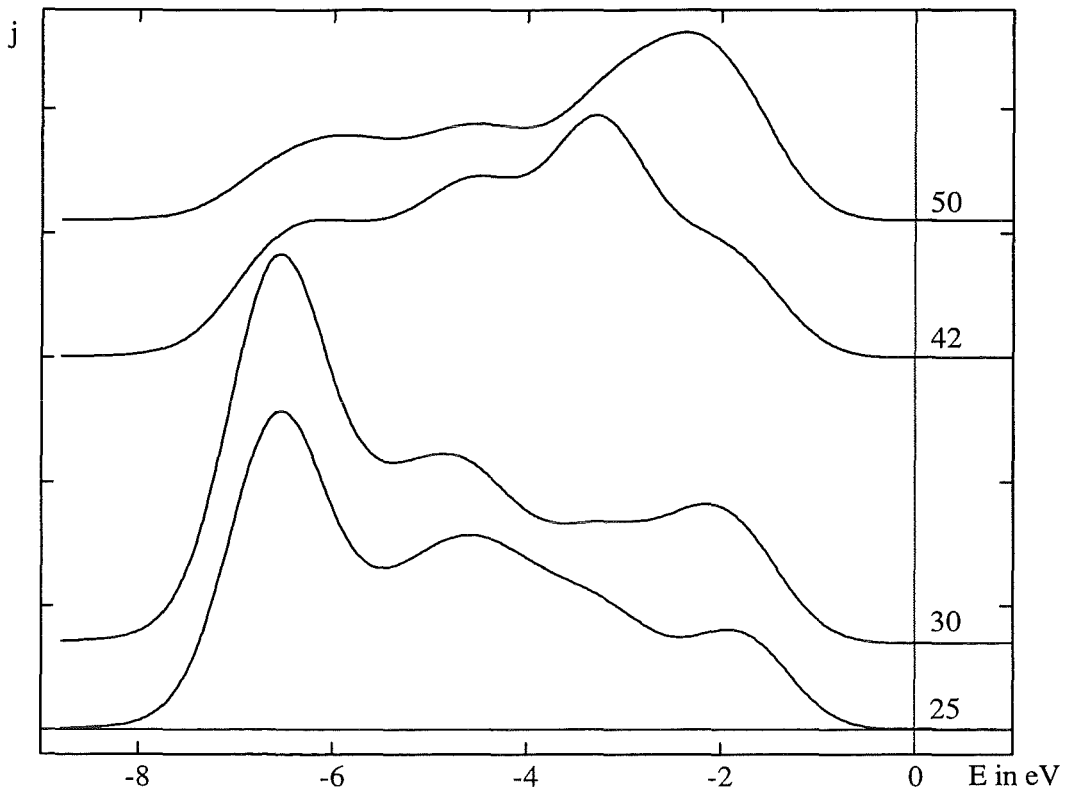


Abb. 5.4.6.3: Selbstenergiekorrigierte ARUPS-Rechnung (SEKAR) mit LMTO-Daten Probe A

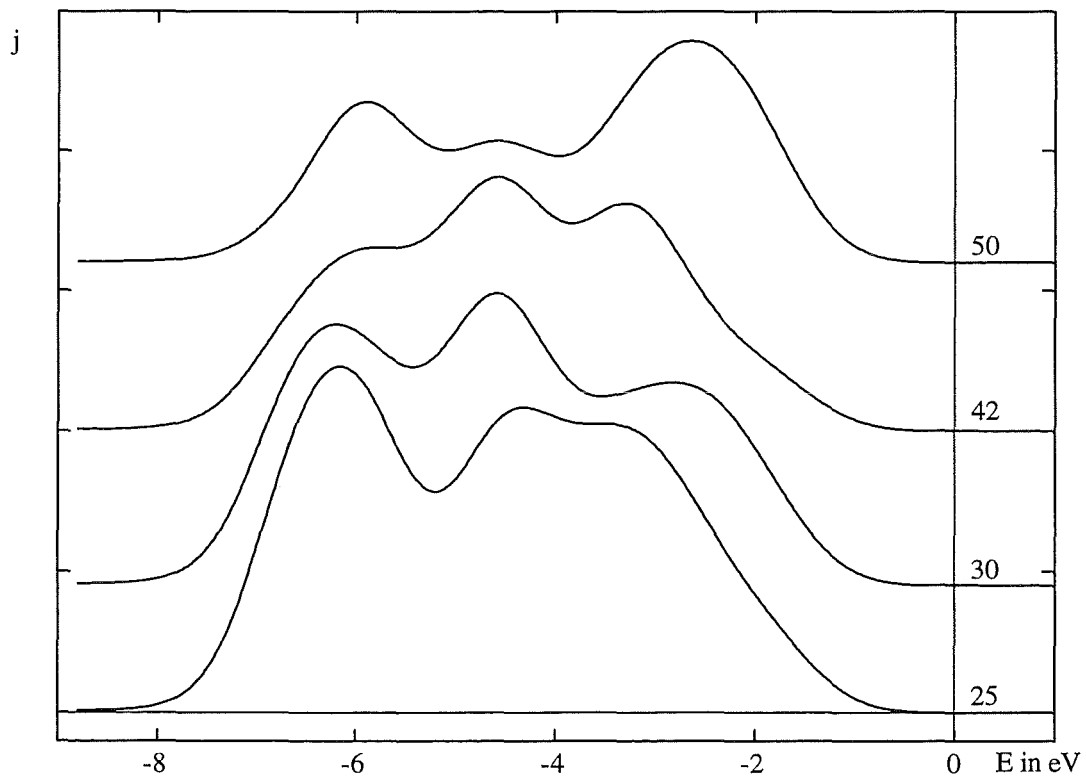


Abb. 5.4.6.4: Selbstenergiekorrigierte ARUPS-Rechnung (SEKAR) mit LMTO-Daten Probe B

Vergleichen wir auch hier mit den Messungen von Sakisaka et al.:

- Probe B stimmt auch hier besser mit der Messung überein als Probe A.
- Die Kurven $E_\gamma=30\text{eV}$ und $E_\gamma=42\text{eV}$ sind einigermaßen gut, aber die beiden anderen Kurven weichen doch erheblich von der Messung ab. => Diese Rechnungen sind zur Analyse der Meßkurven ungeeignet.
- Die LMTO-ARUPS-Rechnung weicht wesentlich stärker von der Messung ab als die LMTO+SIC-ARUPS-Rechnung => Die LMTO+SIC-Ergebnisse (§5.2) beschreiben die Wirklichkeit besser als die LMTO-Ergebnisse.

§5.4.7 Selbstenergiekorrigierte ARUPS-Rechnung (SEKAR) zu der Messung von Tobin et al. mit LMTO+SIC-Daten

Die in Abbildung 5.3.2 angegebene ARUPS-Messung von J. Tobin et al. zeigt in allen drei Kurven einen großen Peak im rechten Bereich um ca. $E = -1\text{eV}$. Vergleicht man damit die VAR mit Festkörperpotential aus §5.4.3, so findet man diesen Peak in den Rechnungen von Probe A wieder. (Probe B hat statt des starken Peaks im rechten Bereich einen ausgeprägten Mittelpeak) Deshalb haben wir mit den der Tobin-Messung entsprechenden Programmparametereinstellungen (Energieauflösung, Winkelauflösung, Meßtemperatur, Photonenenergie, Polarisationsvektor, Elektronenausfallwinkel, Photoneneinfallwinkel) eine VAR mit LMTO+SIC-Eingabedaten für die Probe A durchgeführt. In Abbildung 5.4.7.1 sind die 3 unverschmierten Kurven für die Brillouin-Zonenbereiche um die Punkte Γ , Y und X eingemalt.

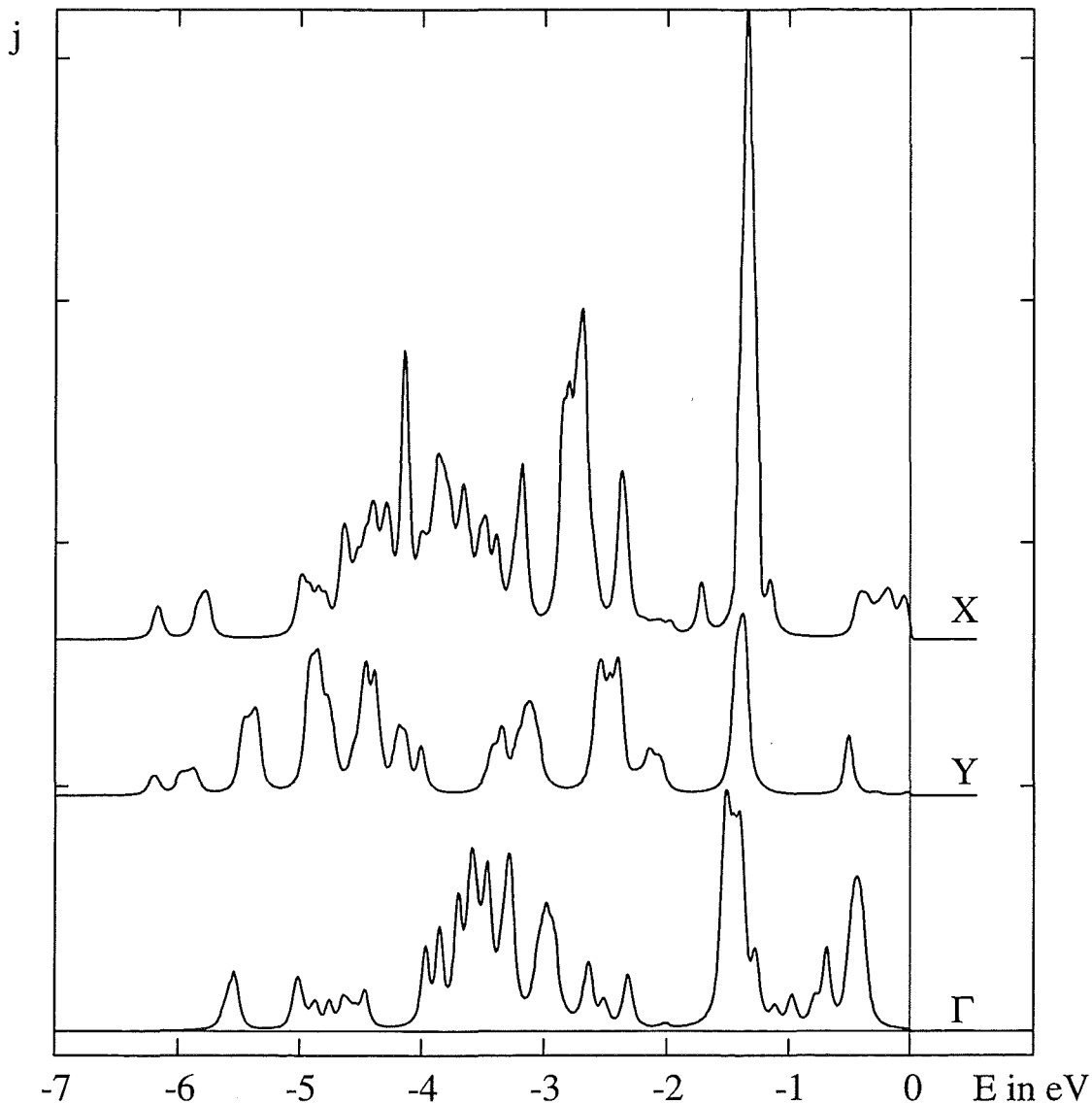


Abb. 5.4.7.1: Vielschicht-ARUPS-Rechnung (VAR) mit LMTO+SIC-Daten Probe A

Um besser mit der Meßkurve vergleichen zu können, führen wir auch hier wie in §5.4.4 eine komplexe Selbstenergie ein:

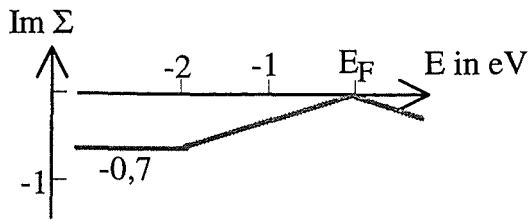


Abb. 5.4.7.2: Imaginärteil der Selbstenergie

Um die errechneten Kurven auf die Breite der von Tobin gemessenen Kurven zu verschmieren, benötigen wir einen Imaginärteil der Selbstenergie Σ von -0.7eV , was sehr nahe an dem aus der Messung von Sakisaka et al. gewonnenen Wert von $-0,8\text{eV}$ liegt.

Aus der Verschiebung der Kurven lesen wir einen Realteil $\text{Re } \Sigma \approx 0$ ab. Dieser Wert weicht erheblich von dem Wert $+1,5\text{eV}$ für die Messung von Sakisaka et al. ab. Die von uns näherungsweise berechneten Selbstenergien für die Bänder 34-36 (Abb. 5.4.8.1 - 5.4.8.3) haben Realteile und Imaginärteile in ungefähr gleicher Größenordnung. Außerdem wechselt der Realteil sein Vorzeichen, wodurch sich Beiträge verschiedener Bänder teilweise aufheben. Deshalb erwarten wir, daß der Betrag des Realteils der Selbstenergie kleiner als der Betrag des Imaginärteils der Selbstenergie ist.

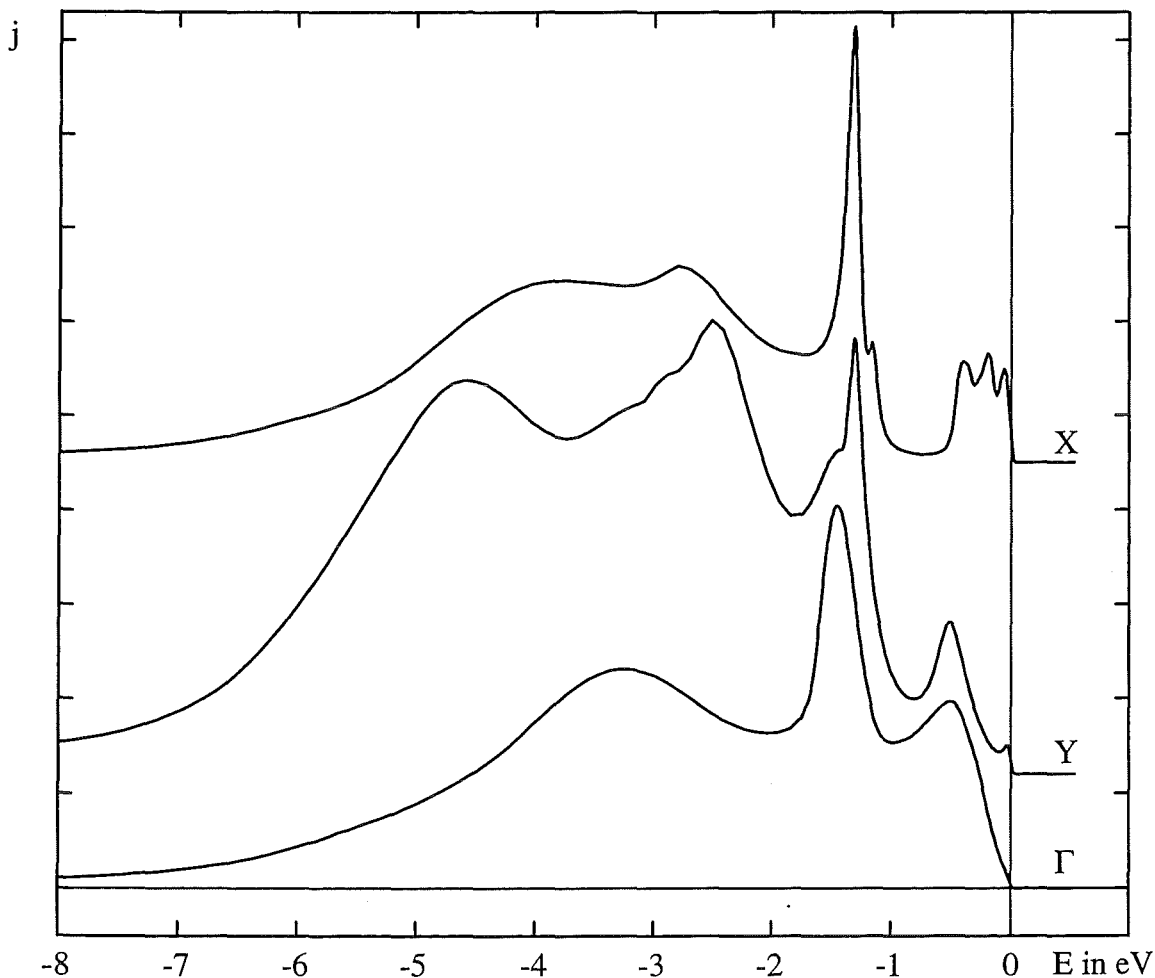


Abb. 5.4.7.2: Selbstenergiekorrigierte ARUPS-Rechnung (SEKAR) mit LMT0+SIC-Daten Probe A

Vergleichen wir nun die selbstenergiekorrigierte ARUPS-Rechnung mit LMTO+SIC-Eingabedaten mit der Messung von Tobin et al.:

- Wir erkennen bei allen 3 Kurven eine gute Übereinstimmung.
 - Bei der X-Kurve erhalten wir die breiten flache Struktur im mittleren Energiebereich, den scharfen Peak bei ca. 1eV und die kleine Struktur in der Nähe der Fermienergie. Der Hauptpeak bei 1,3eV hat die gemessene Amplitude und liegt nur 0.3eV neben der Messung (1eV).
 - Bei der Y-Kurve stimmt die breite Doppelpeakstruktur bei $E=2-4,5\text{eV}$ in Form, Lage und Amplitude sehr schön mit der Messung überein. Auch der 1eV-Peak hat die richtige Amplitude und liegt energetisch an derselben Stelle wie in der X-Kurve, also bei $E=1,3\text{eV}$.
 - Auch bei der Γ -Kurve stimmt die Amplitude und die Lage des Hauptpeaks ($E=-1,5\text{eV}$) mit der Messung überein und bei niedrigerer Energie liegt eine breite Struktur mit der gemessenen Amplitude. Die errechnete Γ -Kurve ist jedoch verglichen mit der Messung etwas zu wenig verschmiert und hat einen Zusatzpeak bei $E=-0,5\text{eV}$.
- Die Übereinstimmung der errechneten Kurven mit der Messung ist gut genug, um die Meßkurve erklären zu können.

Die Analyse der Messung von Tobin et al.:

- Prinzipiell gilt das in der Zusammenfassung von §5.4.5 gesagte auch hier.
- Die scharfe Struktur bei $E=1\text{eV}$ ist kein Oberflächenzustand, wie oft vermutet wird, sondern besteht aus unterschiedlichen Bulkbandern (Siehe auch dazu Abb. 5.2.11).

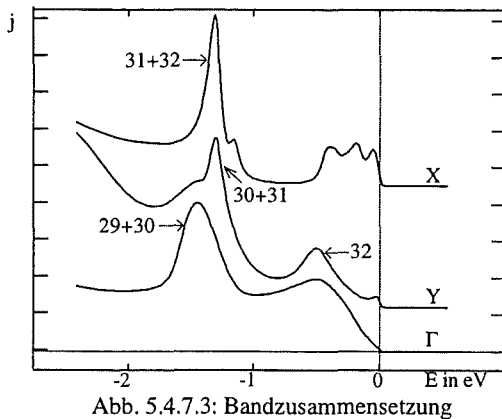


Abb. 5.4.7.3: Bandzusammensetzung

Am Γ -Punkt wird der Peak durch die Bänder 29+30 gebildet. Band 29 sinkt vom Γ -Punkt aus sowohl in x- als auch in y-Richtung energetisch ab und liefert so keinen Beitrag zum 1eV-Peak an den Punkten X und Y mehr. Band 30 fällt ebenfalls in x-Richtung energetisch ab und liefert am X-Punkt deshalb keinen Beitrag zum 1eV-Peak. In y-Richtung aber bleibt seine Energie ungefähr konstant, weshalb es am Y-Punkt zum Peak beiträgt.

Band 31 trägt zum 1eV-Peak an den beiden Punkten X und Y bei. Band 32 liefert einen Anteil zum 1eV-Peak in der Umgebung von Punkt X und den rechten kleineren Peak in Kurve Y. Es ist also falsch dem scharfen Peak in den drei Tobin-Meßkurven ein einziges kaum dispersives Band zuzuordnen!

§5.4.8 Selbstenergiekorrigierte ARUPS-Rechnung (SEKAR) zu der Messung von Lui et al. mit LMTO+SIC- und LMTO-Daten

R. Lui et al. haben mit ihren Messungen in Abb. 5.3.4 versucht, die Fermioberfläche möglichst genau zu bestimmen. Wir haben bereits in den Eingabedaten die gesamte Fermifläche vorgegeben und erhalten durch die ARUPS-Rechnung keine neuen Informationen über die Lage der Fermifläche. Weshalb also rechnen wir überhaupt die Messungen von Lui et al.? Zum einen liefert der Vergleich unserer Rechnung mit der Messung eine zusätzliche Kontrolle unserer Programme. Zum zweiten liefert sie uns vielleicht ein Hinweis darauf, welche Bandstrukturmethode (LMTO oder LMTO+SIC) die Elektronenstruktur von $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ besser beschreibt. Außerdem wollen wir die von Lui et al. gemessenen Kurven besser verstehen und allgemeine Informationen über Messungen in der Umgebung der Fermienergie gewinnen.

Neben der Einstellung von operativer Energieauflösung, Elektronenanalysatorposition und Polarisationsvektor haben wir versucht die komplexe Selbstenergie zu berücksichtigen. Gegenüber der Rechnung für die Sakisaka-Kurven haben wir nun den Vorteil der geringen Bandzahl, denn im gesamten Meßbereich der Lui-Kurven kommen nur 4 Bänder vor ($\lambda=33-36$). Der Realteil der Selbstenergie läßt sich aus dem Imaginärteil der Selbstenergie berechnen:

$$\text{Re } \Sigma_{\lambda}(\omega) = \frac{1}{\pi} \int d\varpi \frac{\text{Im } \Sigma_{\lambda}(\varpi)}{\varpi - \omega}$$

Bleibt also noch, den Imaginärteil der Selbstenergie zu bestimmen. Dies exakt zu tun ist beliebig aufwendig und hat mit dem Thema dieser Arbeit nur am Rand zu tun. Deshalb haben wir uns mit einer groben Näherung begnügt. Wie aus Anhang 9 hervorgeht, ist der Imaginärteil der Selbstenergie in dieser Näherung proportional zur Zustandsdichte. Den Proportionalitätsfaktor haben wir so gewählt, daß die Verbreiterung der 7° -Kurve mit der Messung übereinstimmt. An dieser Stelle geben wir die Beiträge der Bänder 34-36 zur komplexen Selbstenergie an:

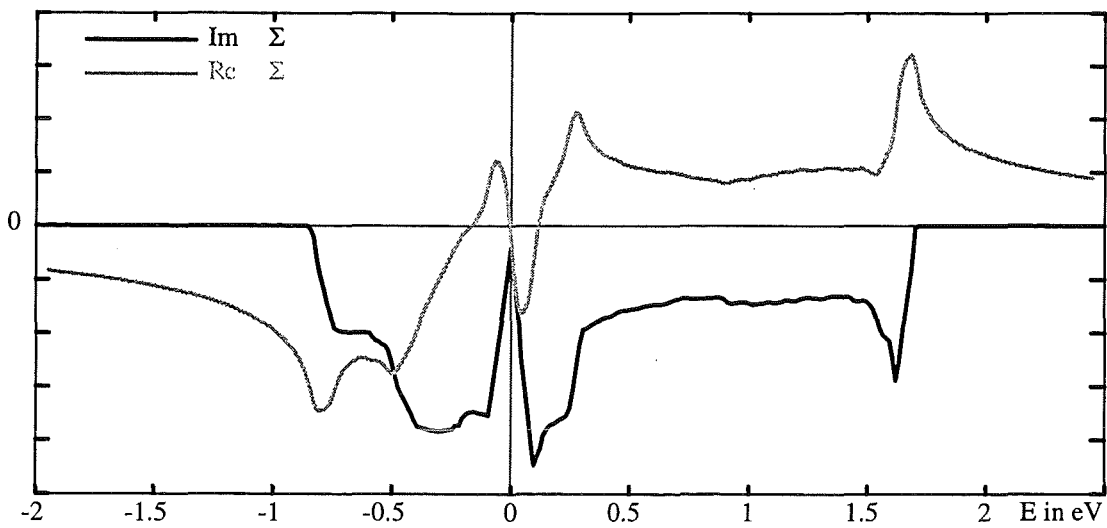


Abb. 5.4.8.1: Komplexe Selbstenergie Band 34

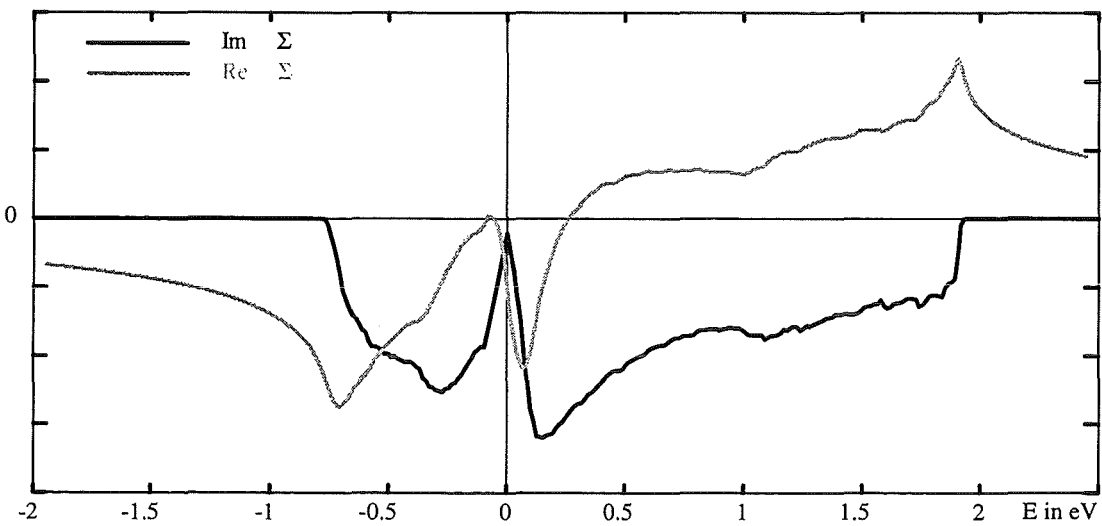


Abb. 5.4.8.2: Komplexe Selbstenergie Band 35

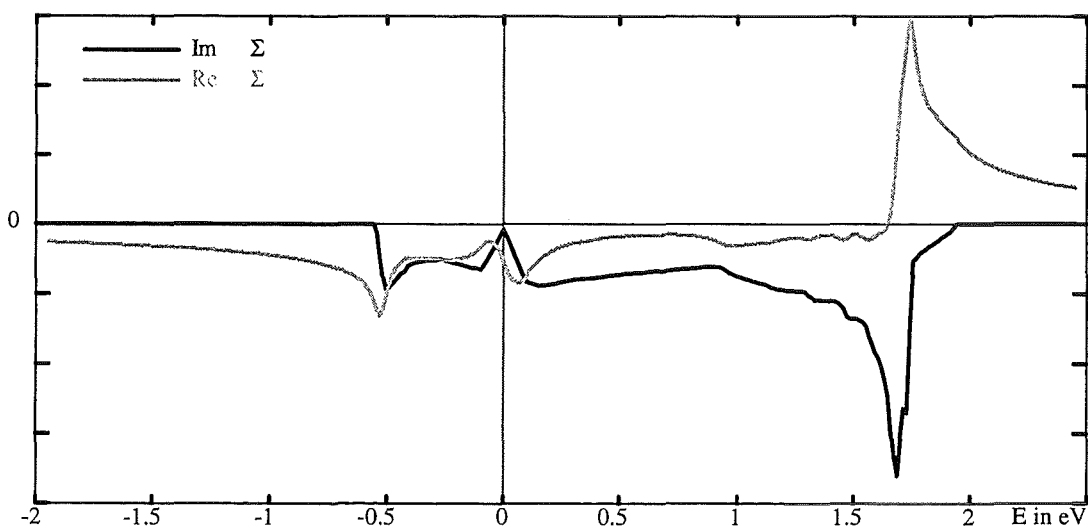


Abb. 5.4.8.3: Komplexe Selbstenergie Band 36

Nun geben wir die Ergebnisse der SEKAR mit den LMTO+SIC-Daten an:

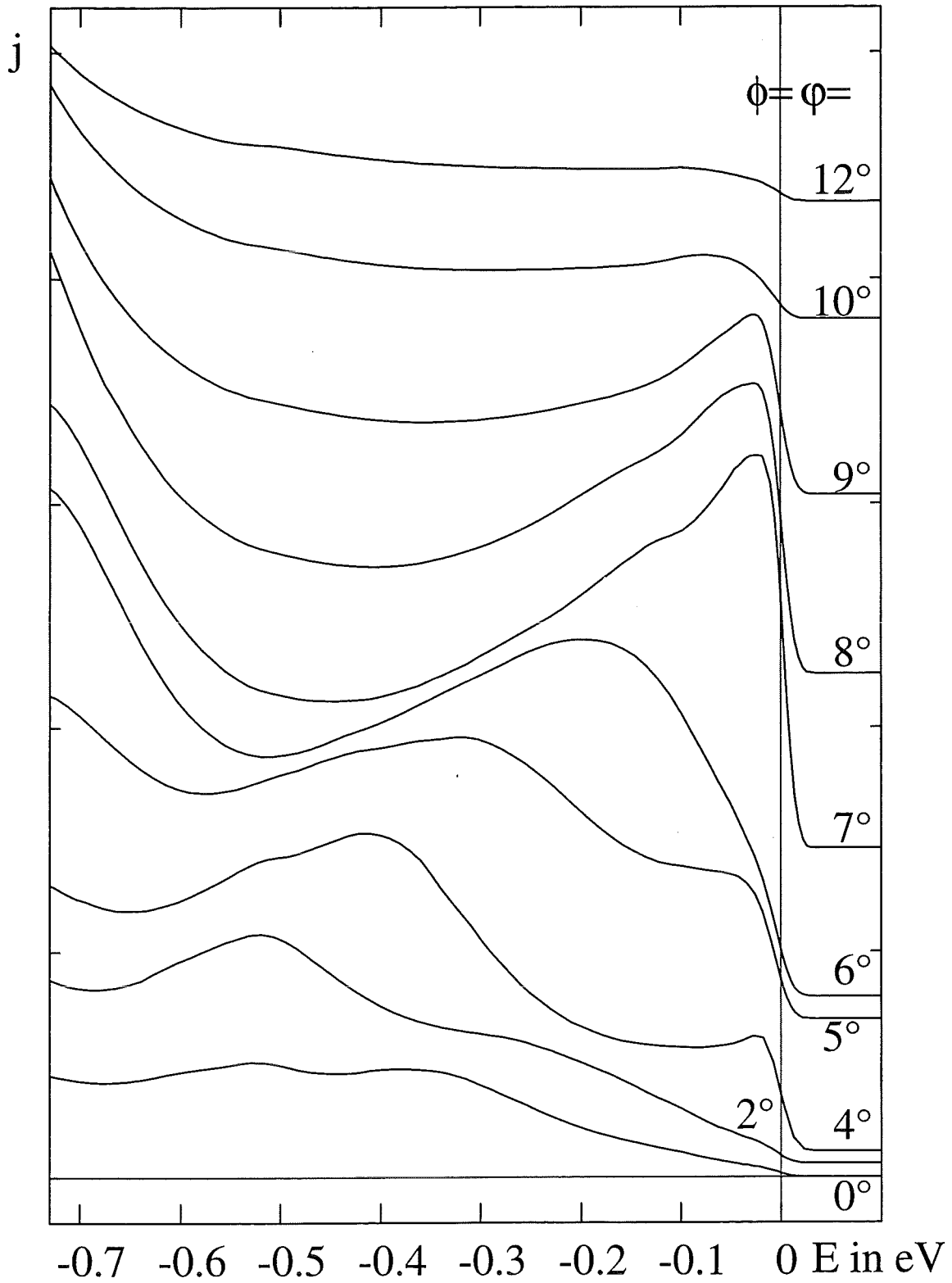


Abb. 5.4.8.4: Selbstenergiekorrigierte ARUPS-Rechnung mit LMTO+SIC-Daten Probe B

Wir erkennen im Vergleich mit der Messung (Abb. 5.3.4) eine sehr gute Übereinstimmung bei fast allen Kurven. Die aus den LMTO+SIC-Daten ermittelte Fermioberfläche von Band 36 (Abb. 5.2.15) stimmt nicht genau mit der Messung überein. Daraus folgt die Abweichung der theoretischen von den experimentellen ARUPS-Kurven für die Winkel 4° und 5° . Nun im Vergleich dazu die Ergebnisse der Rechnung mit den LMTO-Daten:

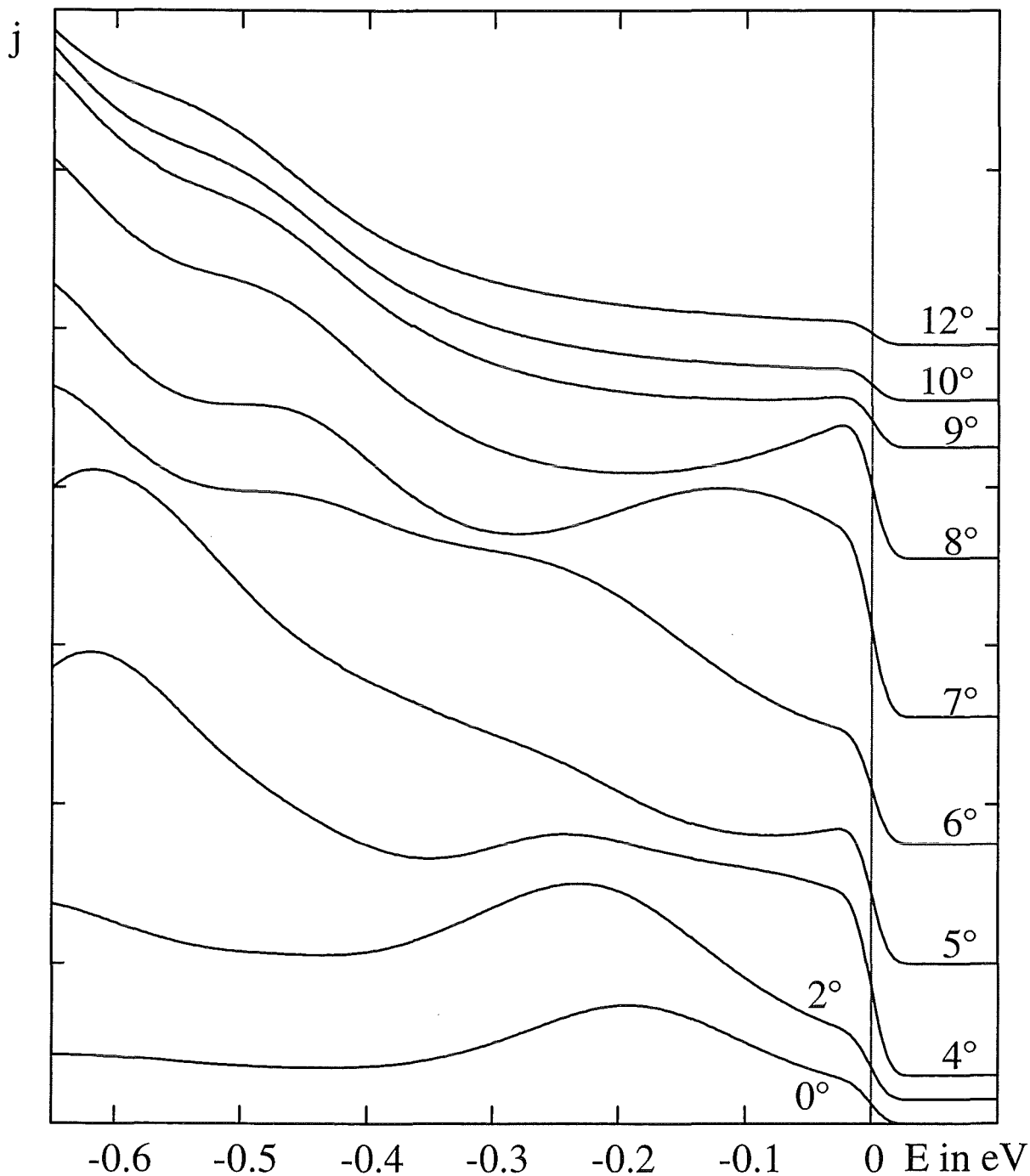


Abb. 5.4.8.5: Selbstenergiekorrigierte ARUPS-Rechnung mit LMTO-Daten Probe B

Die LMTO-Rechnung beschreibt die Messungen bei 6° und 7° schlechter als die SIC-Rechnung und auch bei 9° - 12° ist der linke Teil der Kurven gegenüber der Messung deutlich erhöht. Zusammen mit den Resultaten aus den Rechnungen zur Messung von Sakisaka et al. folgern wir, daß die LMTO+SIC-Methode die Elektronenstruktur von $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ im besetzten Bereich besser beschreibt als die LMTO-Methode.

Nun betrachten wir uns die mit den LMTO+SIC-Daten berechneten ARUPS-Kurven aus Abb. 5.4.8.4 genauer. Wir fragen, aus welchen Bändern die Kurven bestehen und wie groß die einzelnen Bandbeiträge sind. Dazu haben wir die wichtigen Kurven 4° , 6° , 7° , 8° und 9° herausgenommen.

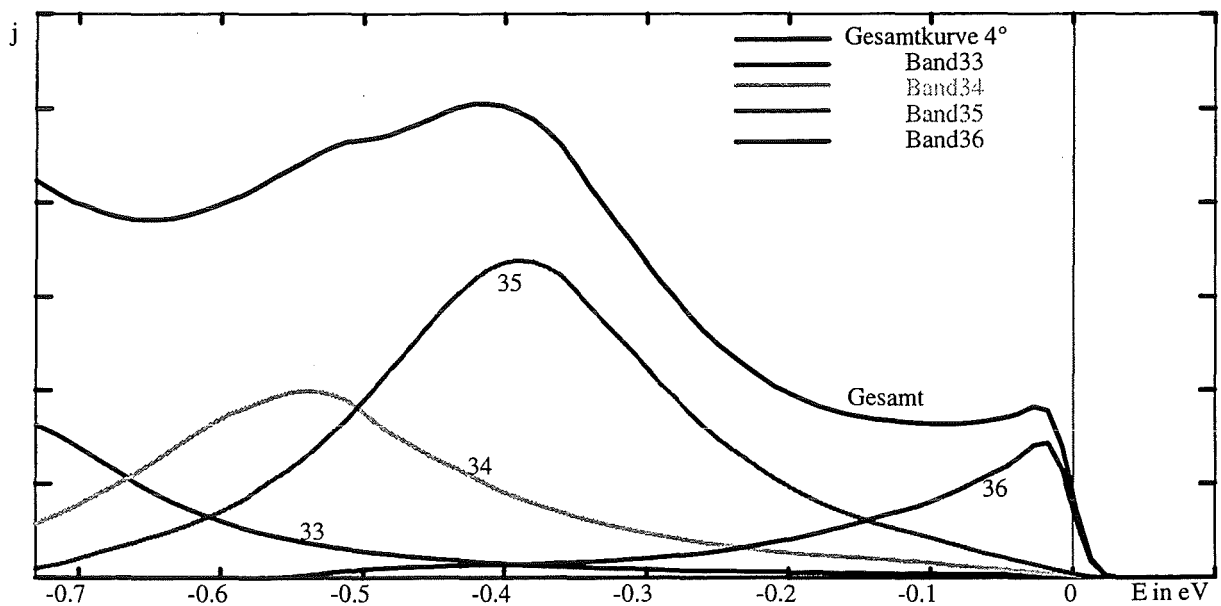


Abb. 5.4.8.6: Bandzusammensetzung von Kurve 4°

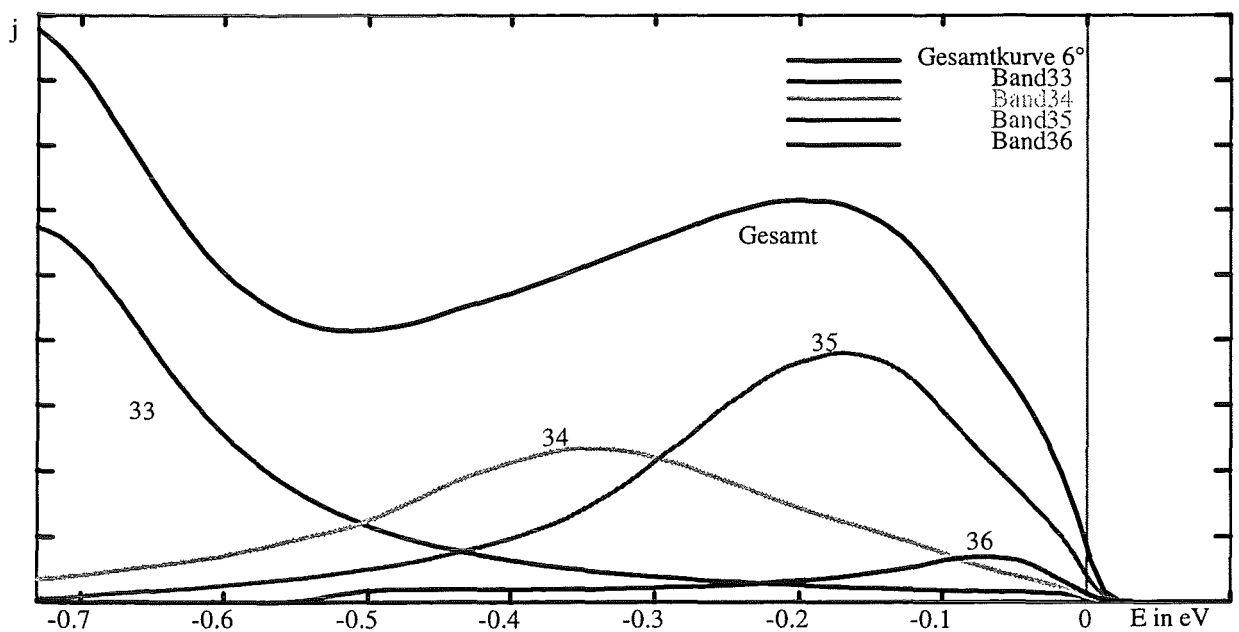


Abb. 5.4.8.7: Bandzusammensetzung von Kurve 6°

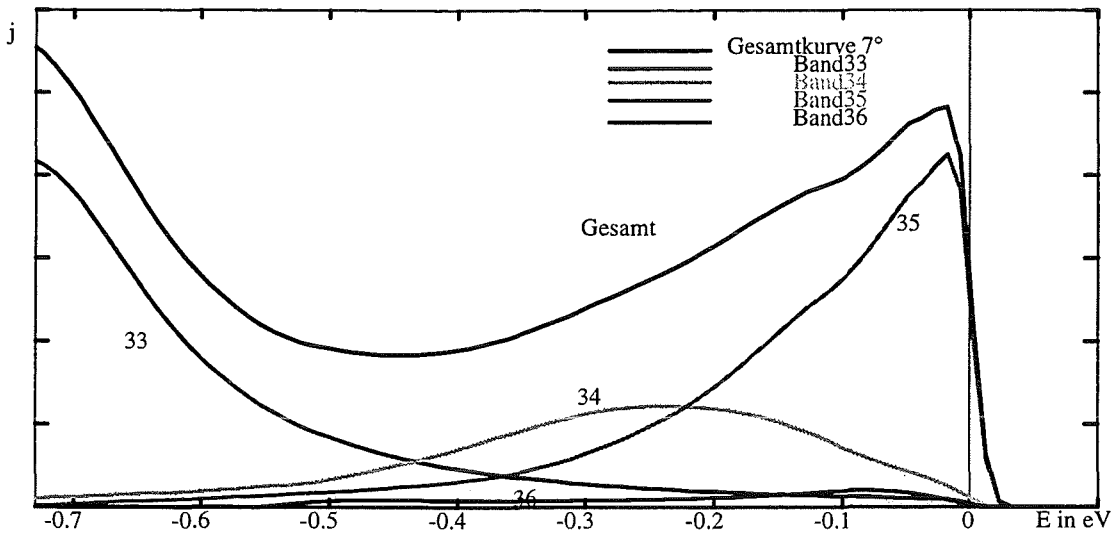


Abb. 5.4.8.8: Bandzusammensetzung von Kurve 7°

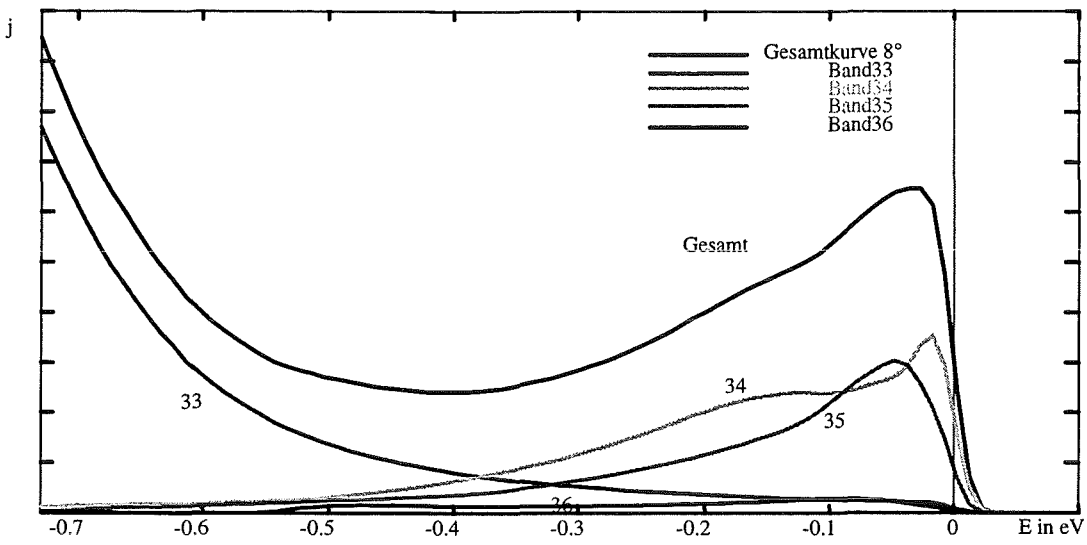


Abb. 5.4.8.9: Bandzusammensetzung von Kurve 8°

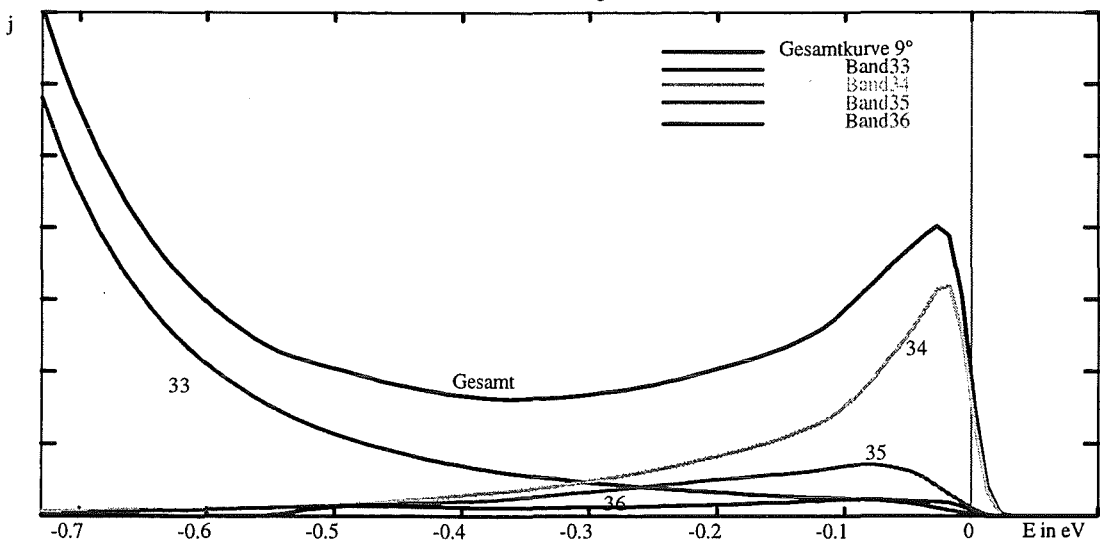


Abb. 5.4.8.10: Bandzusammensetzung von Kurve 9°

Kurve 4° (Abb. 5.4.8.6) : In diesem Bereich der Brillouin-Zone schneidet bei der LMTO+SIC-Rechnung Band 36 die Fermioberfläche, Band 35 bildet den Hauptpeak bei $E=-0,38\text{eV}$ und Band 34 erkennt man als Schulter auf der linken Flanke des Hauptpeaks.

Kurve 6°(Abb. 5.4.8.7): In diesem Bereich liefert Band 36 nur noch einen kleinen Beitrag in der Nähe der Fermienergie, Band 35 ist energetisch nach rechts gerückt und liegt nun bei $E=-0,17\text{eV}$. Der Beitrag von Band 34 hat leicht abgenommen, so daß man in der Gesamtkurve Band 34 nicht als getrennten Peak erkennen kann. Band 33 liefert den Anstieg der Kurve bei $E=-0,7\text{eV}$.

Kurve 7° (Abb. 5.4.8.8): Ab diesem Winkel fällt Band 36 nicht mehr ins Gewicht. Die hohe und in der Nähe der Fermienergie recht scharfe Struktur der Kurve wird fast ausschließlich von Band 35 erzeugt, denn Band 34 liefert auch hier eine viel kleinere Amplitude. In diesem Bereich kreuzt Band 35 die Fermioberfläche und der Anstieg bei niedrigen Energien ist wieder durch Band 33 verursacht.

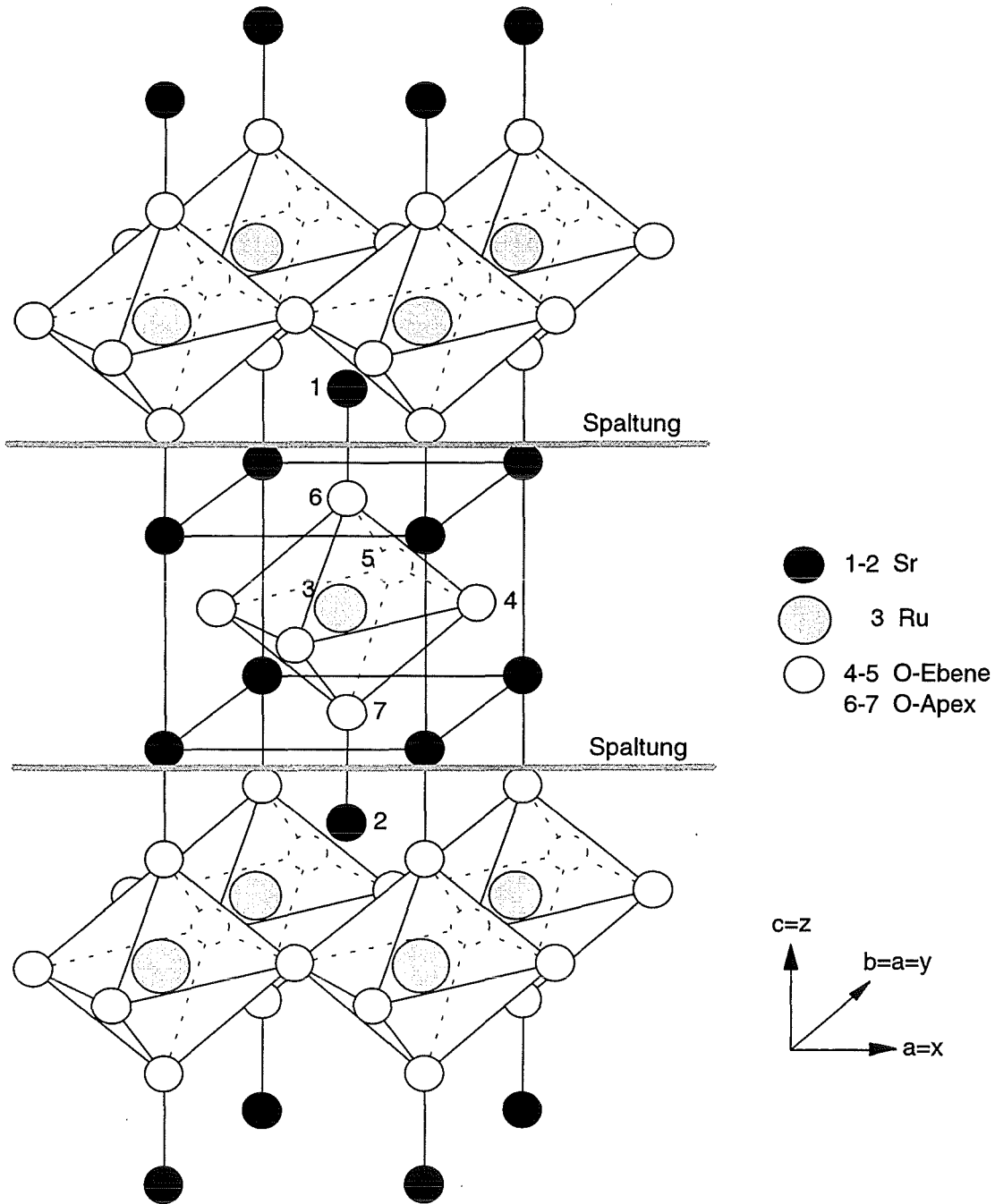
Kurve 8° (Abb. 5.4.8.9): Obwohl Band 35 die Fermioberfläche bereits überquert hat, liefert es in diesem Bereich noch einen Restbeitrag in der selben Höhe wie Band 34.

Kurve 9° (Abb. 5.4.8.10): In diesem Bereich ist Band 35 weit genug oberhalb der Fermienergie, so daß es nur noch wenig zur Kurve beiträgt. Nun überquert Band 34 die Fermioberfläche und liefert den Hauptbeitrag zur Kurve. Band 33 verursacht nach wie vor den Anstieg bei $E=-0,7\text{eV}$.

Ein Band kann also noch erheblich zur Kurve in der Nähe der Fermienergie beitragen, obwohl es bereits die Fermioberfläche überquert hat. Band 1 kann also in der Messung von Lui et al. (Abb. 5.4.3) auch bereits bei 5° die Fermioberfläche kreuzen und bei 6° trotzdem noch die Schulter bei der Fermienergie verursachen.

§6 Sr₂RuO₄

§6.1 Eigenschaften und Struktur



- Metall
- Supraleiter $T_c \approx 1.2\text{K}$
- Paramagnetisch
- bct-Struktur (bodycentered tetragonal)

Gitterkonstanten und Atompositionen für Sr₂RuO₄

Die Daten sind den Messungen von T. Vogt et al.²² entnommen.

Elementarzelle:

$$\begin{aligned} a &= 3,8613 \text{ \AA} = 7,29680 \text{ AE} & \text{AE} &= \text{Atomare Einheiten} \\ b &= 3,8613 \text{ \AA} = 7,29680 \text{ AE} \\ c &= 12,7217 \text{ \AA} = 24,04054 \text{ AE} \end{aligned}$$

Brillouin-Zone (Quader):

$$\begin{aligned} \hat{a} &= 1,6272 \text{ \AA}^{-1} = 0,8611 \text{ AE} \\ \hat{b} &= 1,6272 \text{ \AA}^{-1} = 0,8611 \text{ AE} \\ \hat{c} &= 0,9878 \text{ \AA}^{-1} = 0,5227 \text{ AE} \end{aligned}$$

Gittertranslationsvektoren:

$$\vec{R}_1 = \begin{pmatrix} a/2 \\ a/2 \\ -c/2 \end{pmatrix}, \vec{R}_2 = \begin{pmatrix} -a/2 \\ a/2 \\ c/2 \end{pmatrix} \text{ und } \vec{R}_3 = \begin{pmatrix} a/2 \\ -a/2 \\ c/2 \end{pmatrix}$$

Atompositionen (in AE):

Atomindex	Atom	x-Koordinate	y-Koordinate	z-Koordinate
1	Strontium	0,0000	0,0000	8,4767
2	Strontium	0,0000	0,0000	-8,4767
3	Ruthenium	0,0000	0,0000	0,0000
4	O _{Ebene a}	3,6484	0,0000	0,0000
5	O _{Ebene b}	0,0000	3,6484	0,0000
6	O _{Apex}	0,0000	0,0000	3,9258
7	O _{Apex}	0,0000	0,0000	-3,9258

§6.2 Bandstrukturergebnisse

Analog zu §5.2 geben wir nun Zustandsdichten, Banddispersionen und Fermiflächen für Sr_2RuO_4 an, wobei zur Berechnung der Daten die downfolded LMTO-Methode mit einer reduzierten effektiven Hamiltonfunktion Verwendung fand. Zusätzlich möchten wir die Ergebnisse einer LMTO-Rechnung mit vollem Basissatz präsentieren, um zu zeigen, welche Größen empfindlich auf leichte Änderungen in den Bandstrukturmethoden reagieren. Die beiden LMTO-Rechnungen unterscheiden sich in folgendem Punkt: Bei der downfolded LMTO (ab jetzt mit LMTO1 beziffert) ist der zugrundeliegende Hamiltonoperator auf die Drehimpulskomponenten reduziert, die nennenswerte Beiträge im interessierenden Energiebereich liefern, während er bei der zweiten Methode (ab jetzt mit LMTO2 beziffert) auch Drehimpulse mit kleineren Beiträgen berücksichtigt. Beide Rechnungen sind keine SIC-Rechnungen.

Zustandsdichten

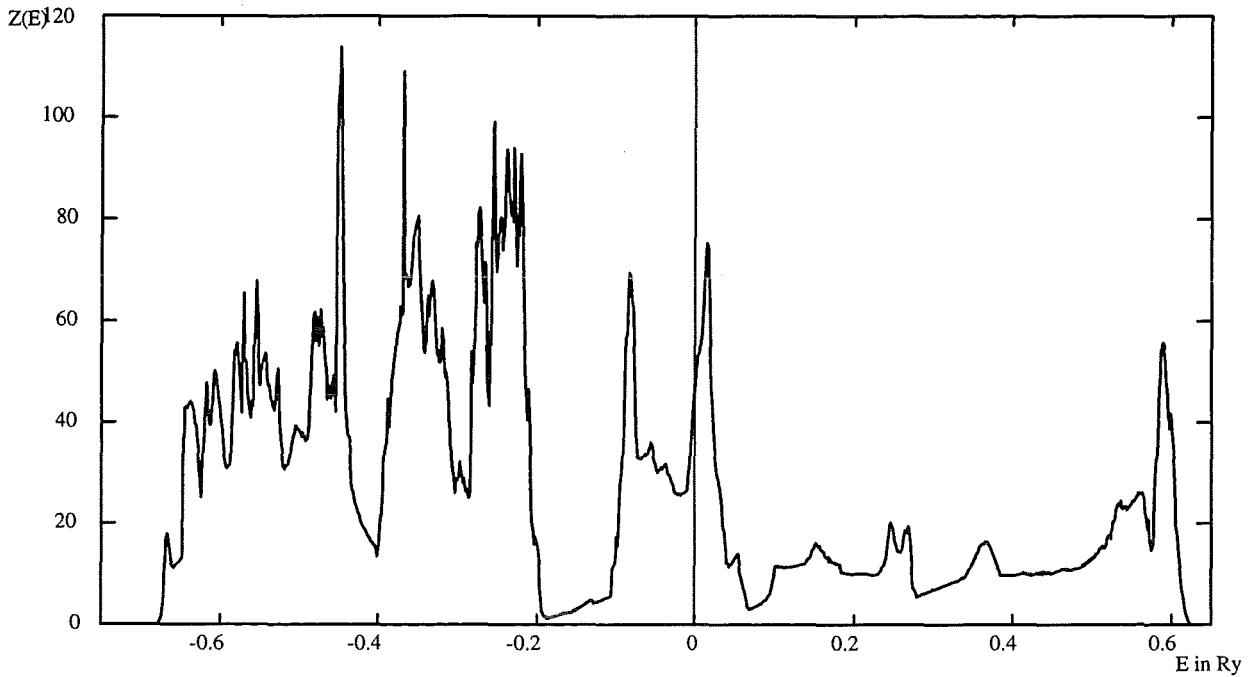


Abb. 6.2.1: Gesamte Zustandsdichte (LMT01)

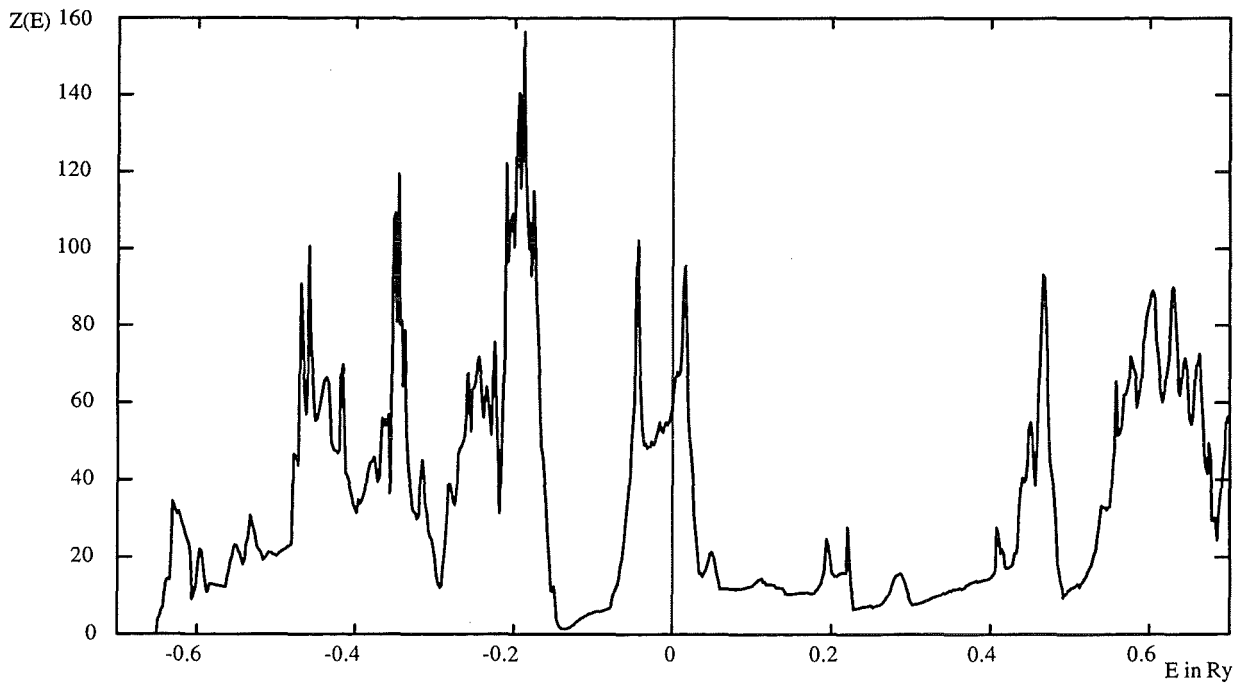


Abb. 6.2.2: Gesamte Zustandsdichte (LMT02)

Die beiden Zustandsdichten haben in der Nähe der Fermienergie eine ähnliche Struktur. Bei LMT02 ist die Zustandsdichte um ca. 1/3 höher und die Doppelpakstruktur etwas schmaler. Für ARUPS interessant ist auch der hohe Peak bei $E = -0.2$ Ry in der LMT02-Kurve. Etwas größere Unterschiede zeigen sich im für XAS relevanten,

unbesetzten Bereich: So ist bei $E=0.08\text{Ry}$ im LMT01 ein Bereich von geringer Zustandsdichte, welcher bei LMT02 völlig aufgefüllt ist.

Nun geben wir zur genaueren Analyse der LMT01-Zustandsdichte die partiellen Zustandsdichten an:

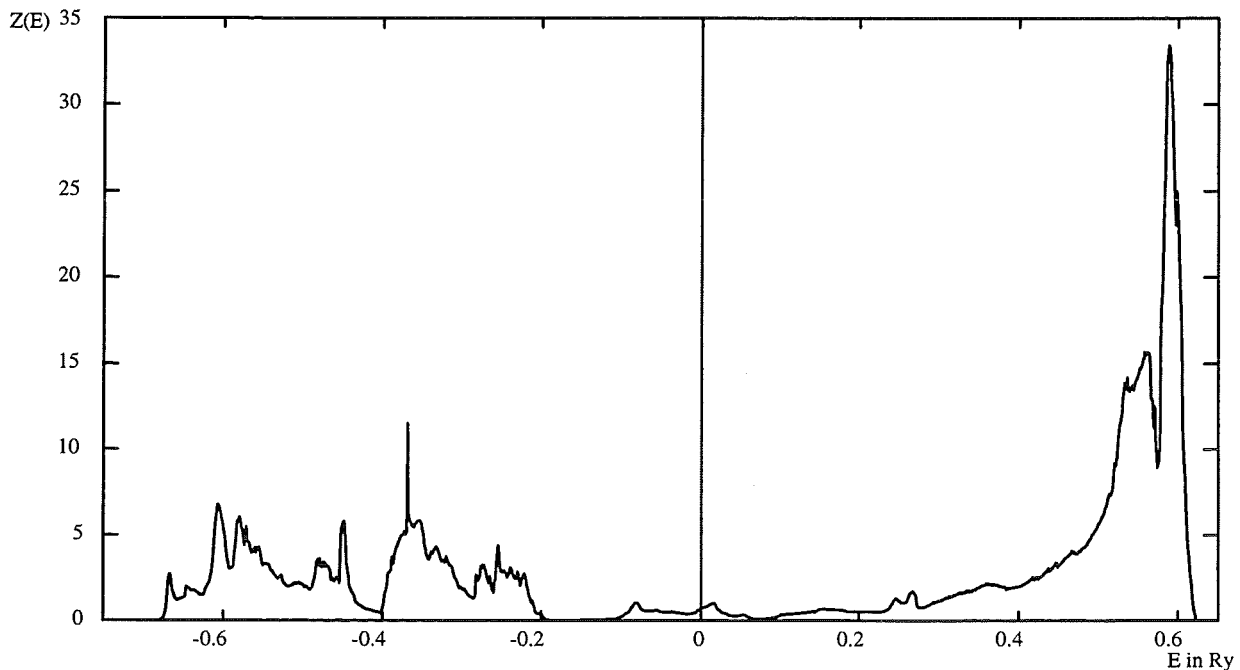


Abb. 6.2.3: Partielle Zustandsdichte Sr (LMT01)

Strontium liefert nur einen sehr geringen Anteil zur Zustandsdichte im für ARUPS relevanten Bereich.

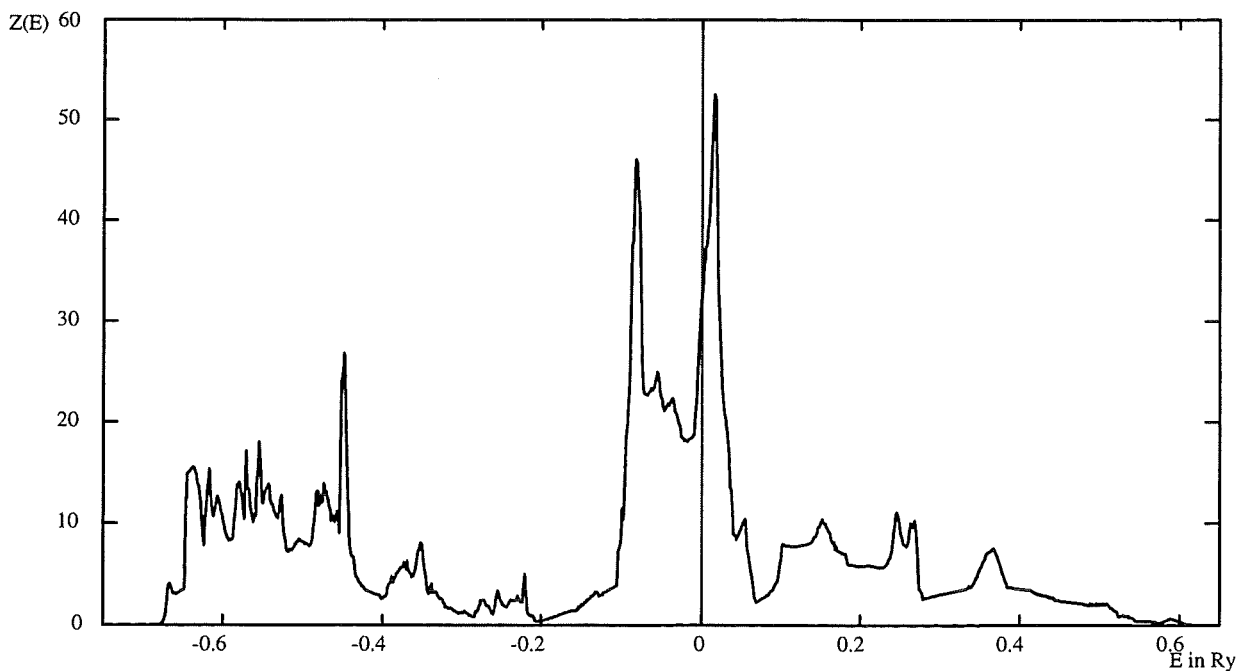


Abb. 6.2.4: Partielle Zustandsdichte Ru (LMT01)

Das Rutheniumatom erzeugt den Hauptanteil zur Zustandsdichte in der Umgebung der Fermienergie. Auch im energetisch tieferen, besetzten Bereich ist der Rutheniumanteil immerhin ungefähr 10% der gesamten Zustandsdichte.

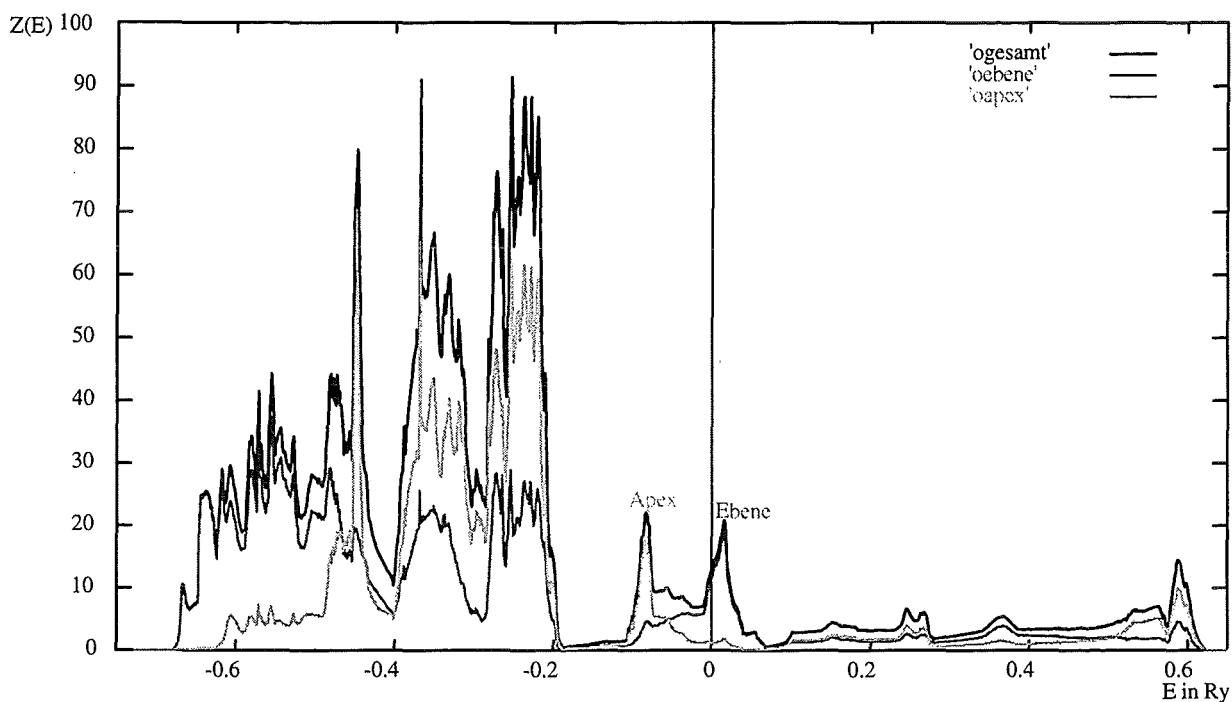


Abb. 6.2.5: Partielle Zustandsdichte O (LMTO1)

Die Sauerstoffatome liefern den Hauptbeitrag zur gesamten Zustandsdichte im besetzten Bereich und in der Umgebung der Fermienergie noch ca. 1/3. Sehr interessant sind auch die beiden Peaks um E_F . Der linke Peak im besetzten Bereich wird durch die Apexsauerstoffe erzeugt, während den rechten Peak im unbesetzten Bereich die Ebenensauerstoffe erzeugen.

Analog zu §5.2 geben wir die Entwicklungsgrenzen der Drehimpulsquantenzahl l für die LMTO1 an:

Atomsorte	Strontium	Ruthenium	Sauerstoff
$l_{\max}(\text{LMTO})$	3	3	2

Aus l_{\max} folgt für die Anzahl der Bänder:

$$\begin{aligned}
 \text{Bandanzahl} &= 2\text{Sr} + \text{Ru} + 4\text{O} \\
 &= 2(0,1,2,3) + (0,1,2,3) + 4(0,1,2) \\
 &= 2(1+3+5+7) + (1+3+5+7) + 4(1+3+5) \\
 &= 84
 \end{aligned}$$

Bei beiden LMTO-Rechnungen sind die Bänder bis $\lambda=12$ vollständig besetzt, die Bänder $\lambda=13-15$ teilweise gefüllt und alle Bänder ab $\lambda=17$ völlig leer. Nur für Band 16 machen die beiden Rechnungen unterschiedliche Aussagen: LMTO1 läßt Band 16

ungefüllt, wohingegen die LMTO2-Rechnung einen kleinen Teil des Bandes 16 auffüllt.

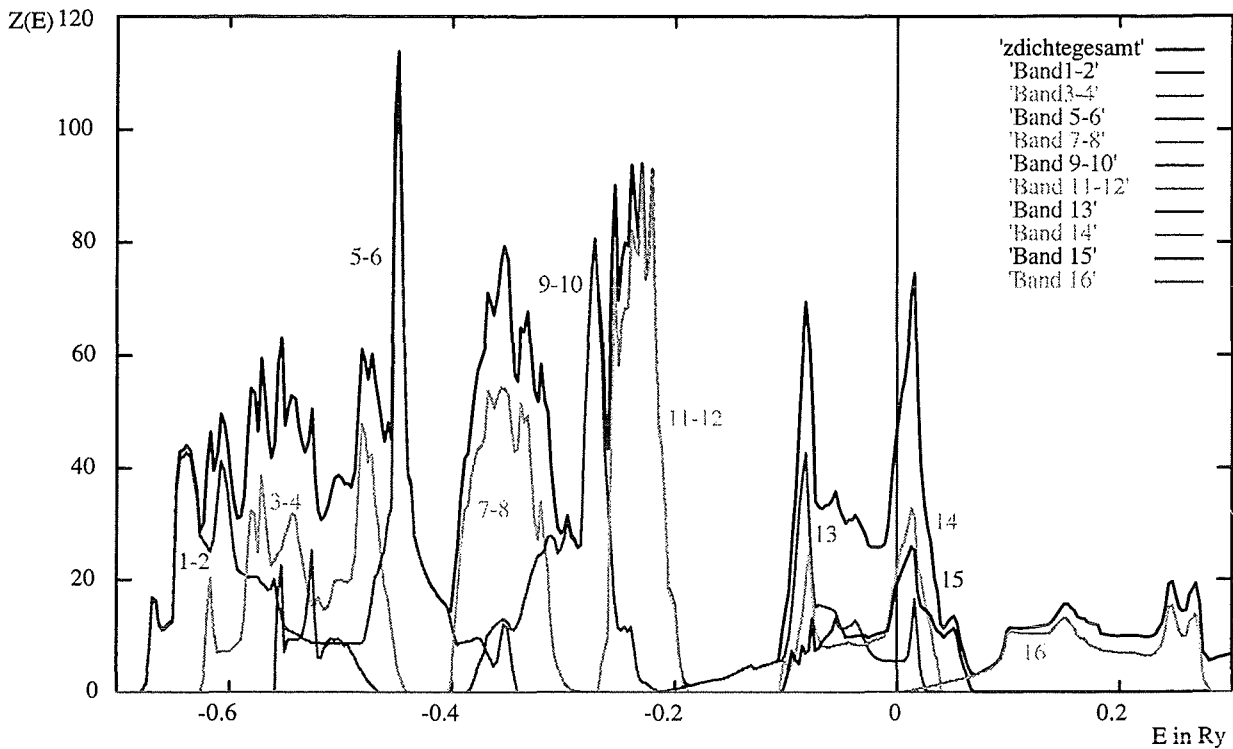


Abb. 6.2.6: Zustandsdichte nach Bändern aufgelöst (LMTO1)

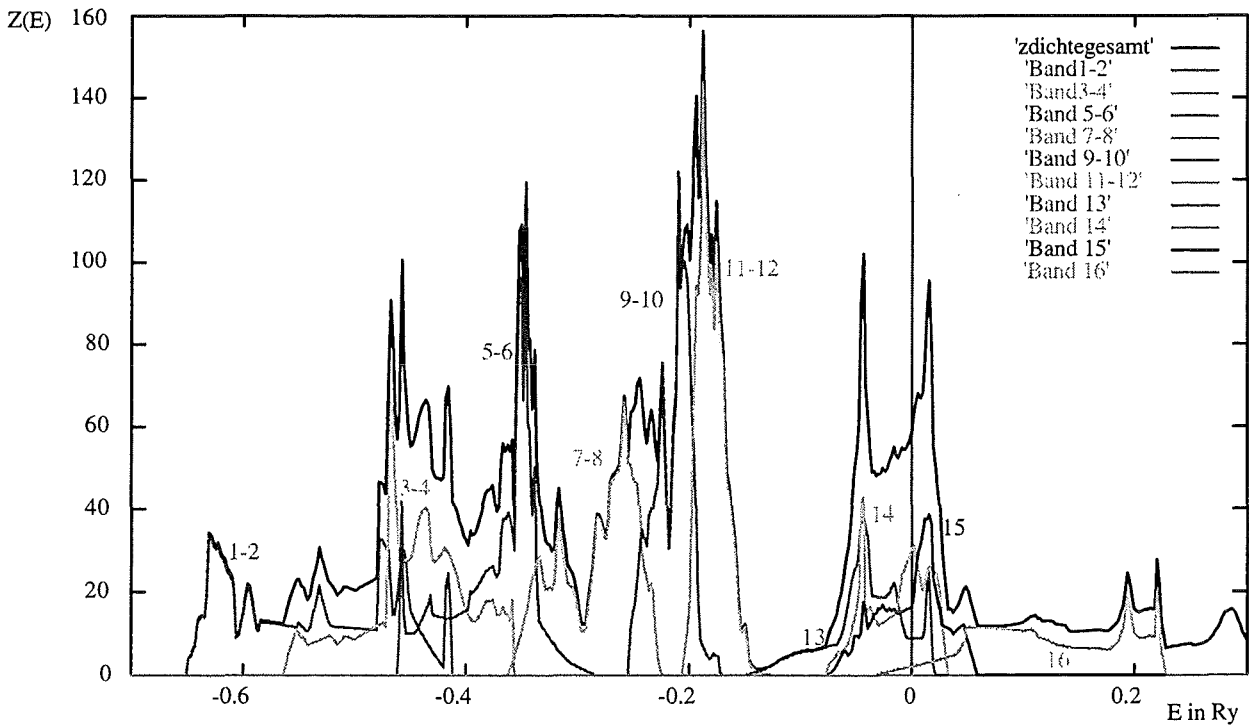


Abb. 6.2.7: Zustandsdichte nach Bändern aufgelöst (LMTO2)

Abbildung 6.2.6 verdeutlicht die Beiträge der Bänder zur gesamten Zustandsdichte der LMTO1-Rechnung. Man erkennt, daß die beiden Peaks um E_F durch drei Bänder

gebildet werden. Wie man in Abbildung 6.2.7 deutlich erkennt, schneidet bei der LMTO2-Rechnung zusätzlich noch Band 16 die Fermienergie, wobei der Beitrag dieses Bandes zur Zustandsdichte bei E_F gering ist.

Die Zustandsdichte um E_F setzt sich folgendermaßen aus Atombeiträgen zusammen:

Charakter	Ru d	OE p	OA p	Rest
Anteil in % (LMTO1)	69,9	24,6	2,5	3,0
Anteil in % (LMTO2)	71,0	17,7	4,5	6,8

Die Hauptbeiträge in der Umgebung der Fermienergie stammen vom Rutheniumatom mit Drehimpuls $l=2$ und vom Ebenensauerstoff mit $l=1$.

Banddispersion

Um die Impulsabhängigkeit der Energiewerte der Bandelektronen darzustellen, verfolgen wir die für ARUPS besonders wichtigen Bänder 13-16 auf einem festgelegten Pfad durch die Brillouin-Zone. Die folgende Skizze zeigt diesen Pfad:

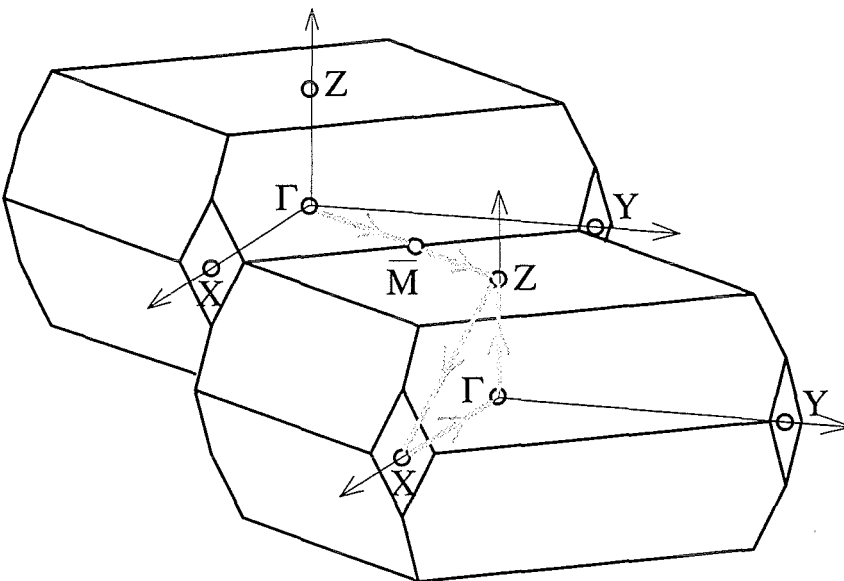


Abb. 6.2.8: Pfad durch die Brillouin-zone

Punkt	Γ	X	Y	Z
Koordinaten	(0,0,0)	$(B_x/2,0,0)$	$(0,B_y/2,0)$	$(0,0,B_z/2)$

In den folgenden beiden Abbildungen ist die Fermienergie in Rydberg eingetragen. Die Werte für die Fermienergie (LMTO1 = 0,2267 Ry und LMTO2 = -0,2757 Ry) sind bei den beiden Bandstrukturechnungen verschieden, weil beide Versionen den Potentialnullpunkt verschieden legen.

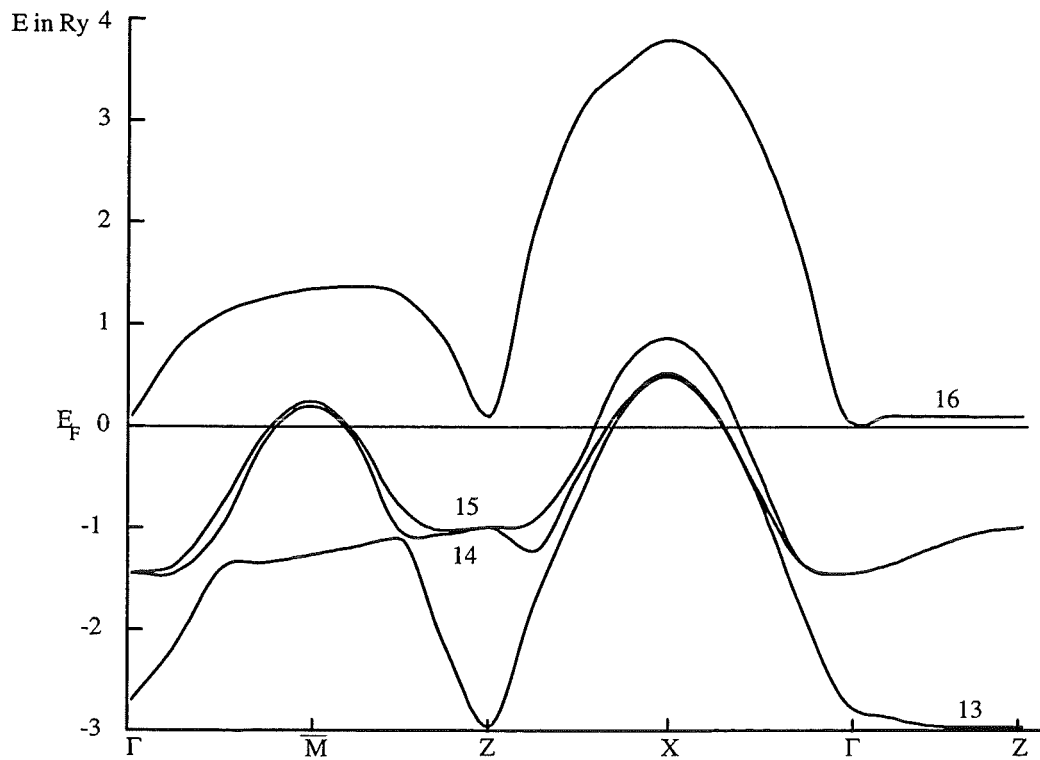


Abb. 6.2.9: Banddispersion LMTO1

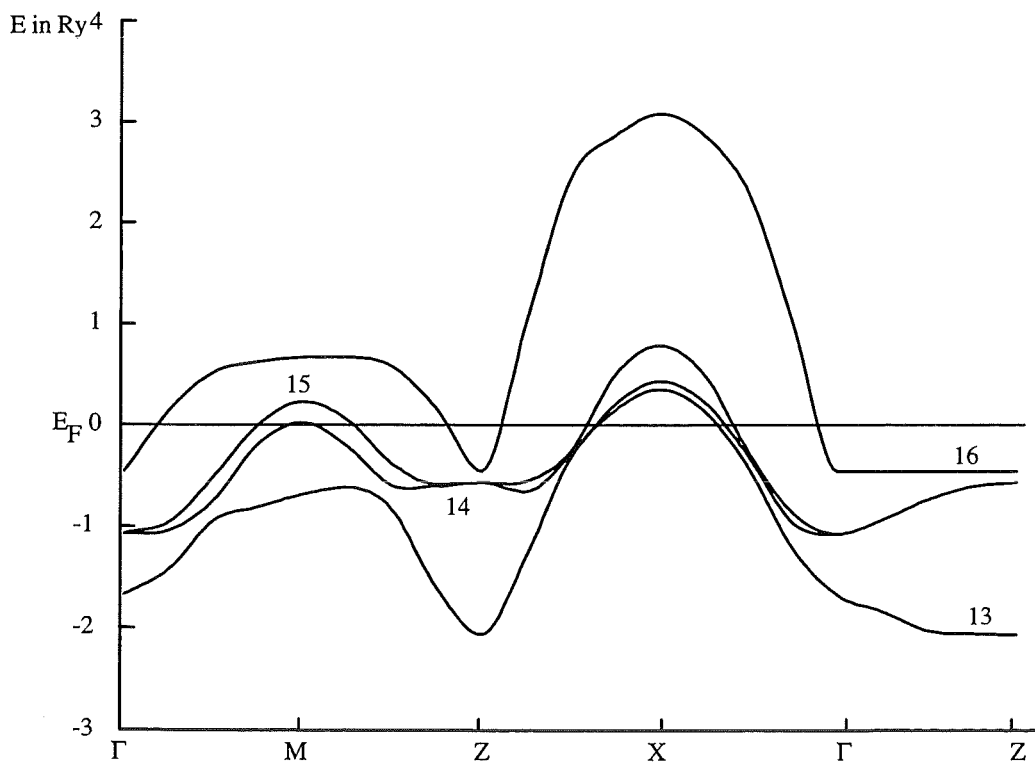
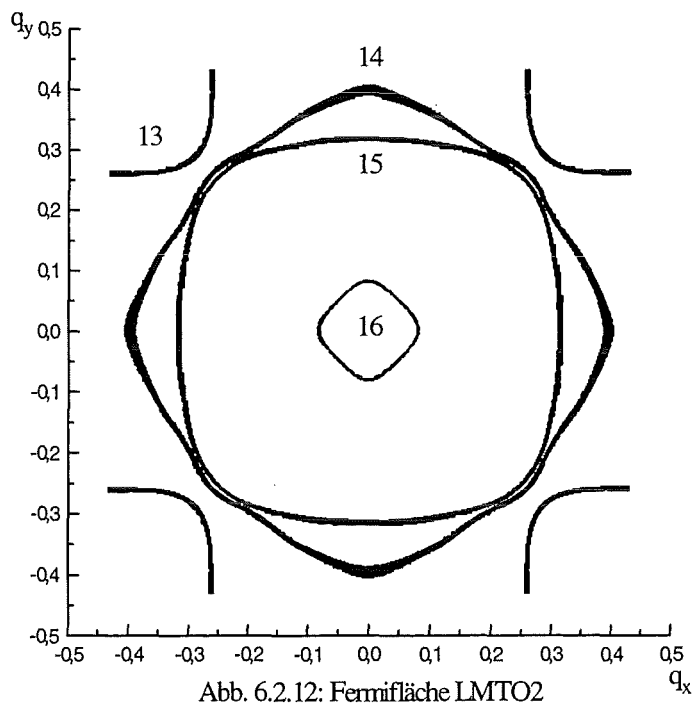
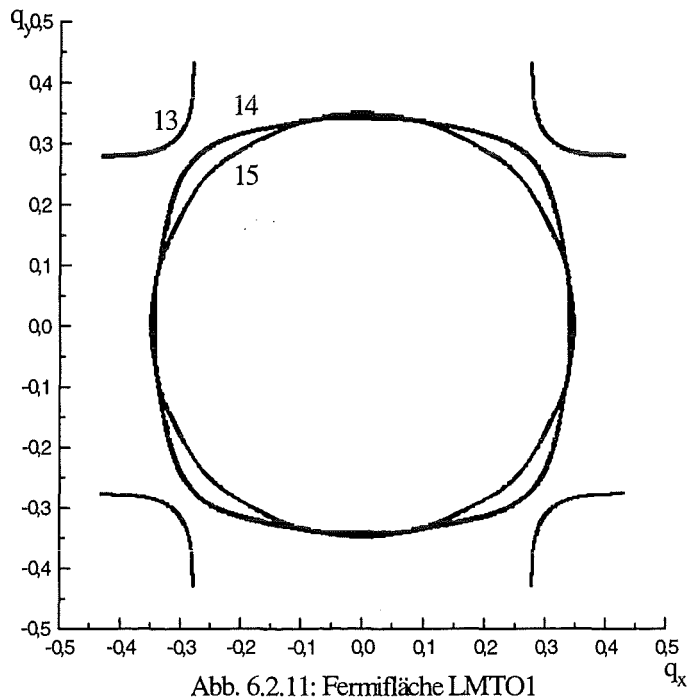


Abb. 6.2.10: Banddispersion LMTO2

Der Hauptunterschied der beiden Banddispersionen ist die Lage des Bandes $\lambda=16$ bezüglich der Fermienergie. Die Struktur der Bänder selbst ist aber sehr ähnlich.

Fermiflächen

Im Festkörper ist die Elektronenstruktur invariant gegenüber der Addition eines reziproken Gittervektors \vec{G} . Dies nutzen wir aus, um die komplizierte Form der Brillouin-Zone (Abbildung 6.2.8) auf einen einfachen Quader zu reduzieren. Die folgenden Abbildungen zeigen den Schnitt der Fermifläche mit der q_x - q_y -Ebene.



Vergleicht man die Fermiflächen miteinander, so taucht in LMTO2 nicht nur ein zusätzliches Band auf ($\lambda=16$), sondern auch die Form der anderen Bänder ändert sich. Besonders auffällig ist die Karoform des Bands 14 in der LMTO2 im Vergleich zur Kreisform in der LMTO1.

Zusammenfassung

Die aus LMTO1 und LMTO2 berechneten Zustandsdichten und die Banddispersion unterscheiden sich nur wenig voneinander. Die Fermifläche reagiert dagegen empfindlicher auf eine Änderung der Bandstrukturrechnung.

§6.3 Arups-Meßergebnisse:

Messungen von T. R. Cummins, M. Schmidt, C. S. Gopinath, D. H. Lu und S. Schuppler:

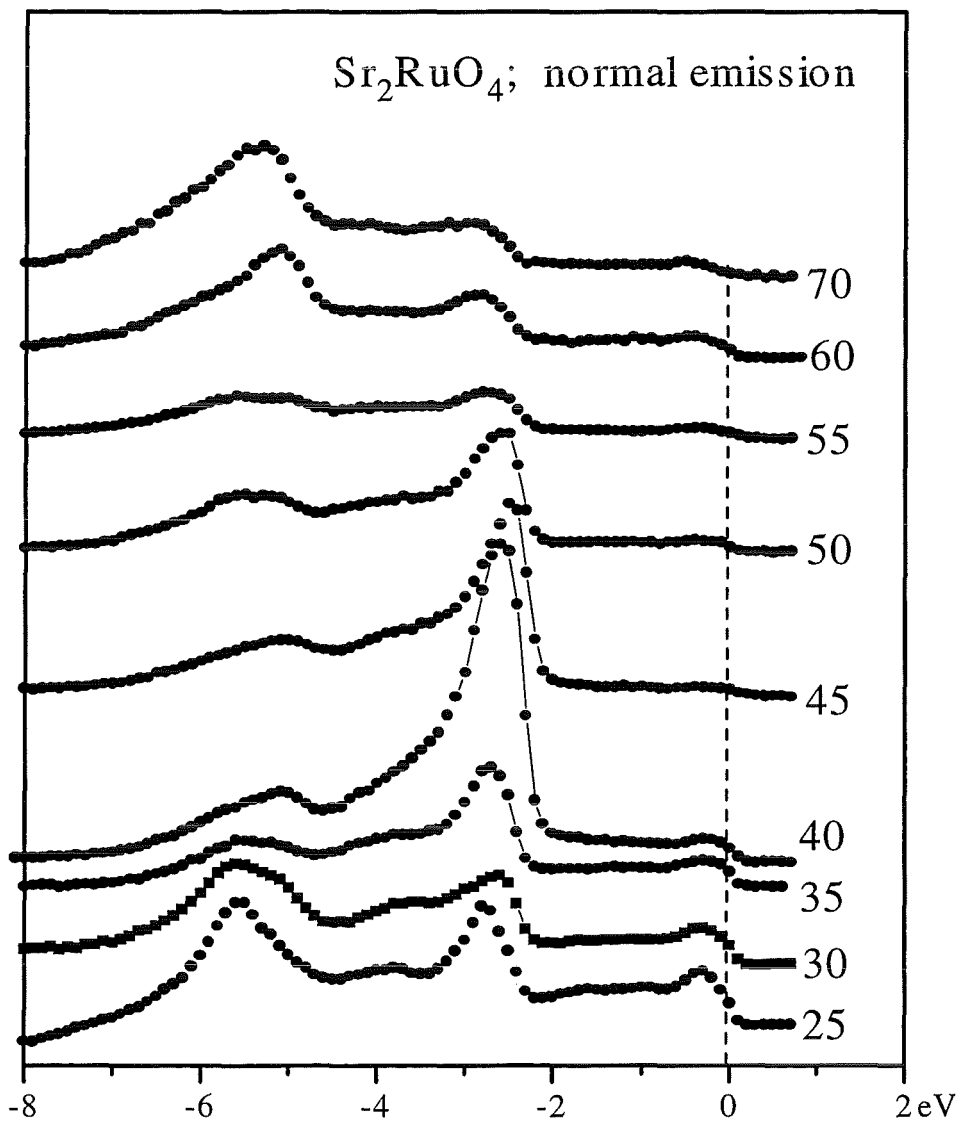


Abb.6.3.1: Photonenenergieabhängige ARUPS-Messung

Wichtige Daten zur Messung:

Energieauflösung: 150-300 meV

Meßtemperatur: 60K

Meßdruck: $<3 \times 10^{-11}$ mbar

Winkelauflösung: 1°

Probe: Einkristall

In der x-y-Ebene linear polarisiertes Licht

Zunächst präsentieren wir bisher noch nicht veröffentlichte Messungen an einem im Vakuum gespaltenen Sr_2RuO_4 -Einkristall. Es handelt sich dabei um Normalmessungen, die Photoelektronen verlassen also senkrecht zur Oberfläche den Festkörper, mit unterschiedlichen Photonenenergien (25eV - 70eV). Die Meßkurven bestehen aus 3 Peaks bei ungefähr $E=-0,3\text{eV}$, $E=-2,8\text{eV}$ und $E=-5,4\text{eV}$. Die Amplituden dieser Peaks sind stark von der Photonenenergie abhängig, wobei die Halbwertsbreiten der Strukturen annähernd konstant bleiben. Ganz auffällig ist die extrem hohe Amplitude bei der 40eV-Kurve, fällt diese doch zu beiden Seiten der Photoenergieskala rasch ab, und bei $E_\gamma=55\text{eV}$ ist die Amplitude des Mittelpeaks sogar nahezu verschwunden. Die Frage ist also: Wodurch entsteht diese resonanzartige Erhöhung des Mittelpeaks?

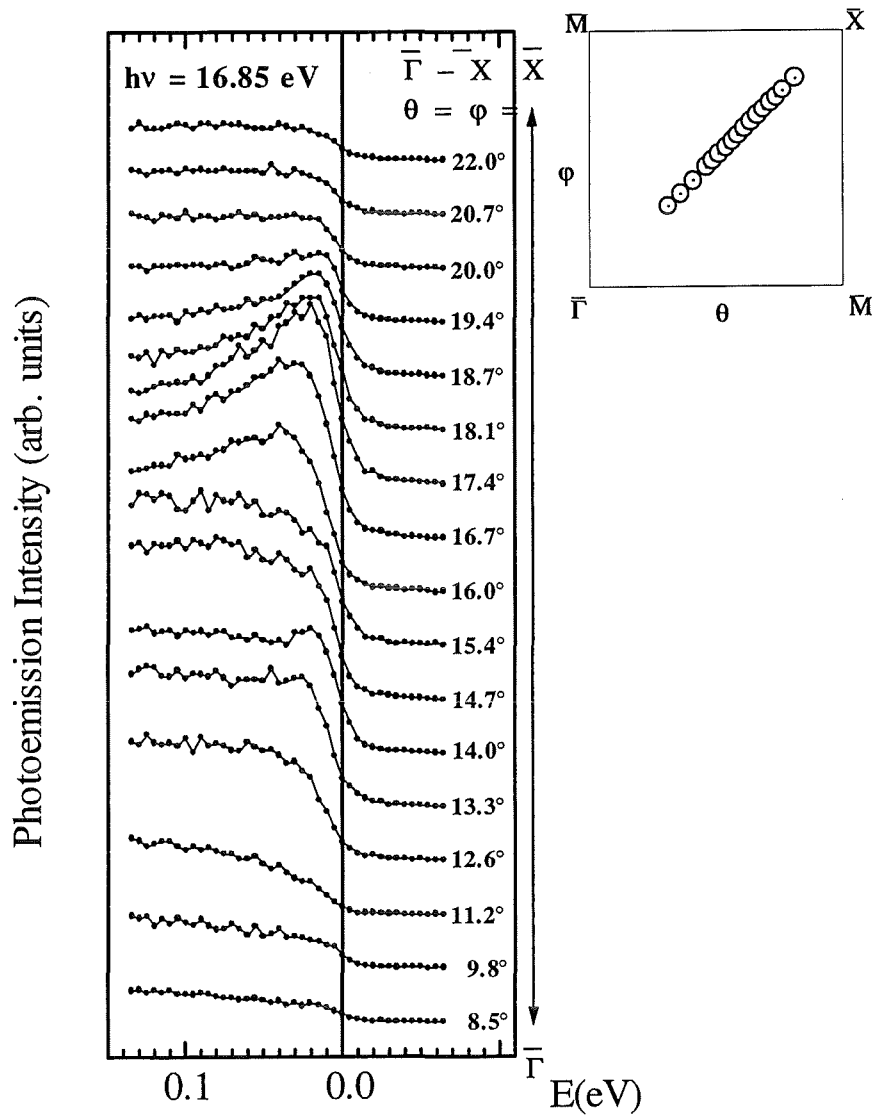


Abb. 6.3.2: ARUPS-Meßkurven

Wichtige Daten zur Messung:

Energieauflösung: 22 meV

Winkelauflösung: $\pm 1^\circ$

Meßtemperatur: 10K

Photonenenergie: 16,85 eV

Unpolarisiertes Licht aus der Ne I-Linie

Ausfallswinkel der Elektronen: Bei den Kurven angegeben

Probe: Einkristall

Meßdruck: $< 3 \times 10^{-11}$ mbar

Diese Arbeitsgruppe hat mit einer guten Winkelauflösung (1°) und einer ausgezeichneten Energieauflösung (22 meV) die Fermioberfläche von Sr_2RuO_4 vermessen. Wir haben aus der Vielzahl der gemessenen Kurven die auf der Γ -X-Linie herausgenommen und in Abbildung 6.3.2 eingetragen. Die Photoelektronen einer Meßkurve kommen jeweils aus einem engen Bereich aus der Brillouin-Zone. An jede Kurve haben wir die Winkelkoordinaten des jeweiligen Bereichs angetragen. Geht man also die Kurven von unten nach oben durch, so durchläuft man die Hauptdiagonale in der 2-dimensionalen Brillouin-Zone von links unten nach rechts oben. Um die genaue Position der Kreuzungen von Bändern mit der Fermioberfläche zu erhalten, wenden wir wieder die Kriterien aus §2.3 an:

- Von Kurve $12,6^\circ$ bis 14° läuft ein Peak ($\lambda=15$) nach rechts. Gleichzeitig steigt der Quotient an der Fermienergie an. Bei Kurve $14,7^\circ$ ist der Peak verschwunden und der Quotient abgesunken.

=> Knapp über 14° kreuzt ein Band ($\lambda=15$) die Fermioberfläche.

- Von Kurve $14,7^\circ$ bis $15,4^\circ$ steigt der Quotient an der Fermienergie an, fällt aber dann stark ab auf einen niedrigen Wert bei Kurve $16,0^\circ$. Auch eine leichte Schulter an der rechten Flanke der Kurve $15,4^\circ$ ist bei der 16° -Kurve verschwunden.

=> Ein Band ($\lambda=14$) mit geringer Amplitude kreuzt die Fermioberfläche zwischen $15,4^\circ$ und $16,0^\circ$.

- Aus den Kurven $16,0^\circ$ bis $18,7^\circ$ erkennt man ein starker Peak nach rechts zur Fermienergie wandern. Im Bereich um $18,1^\circ$ sinkt die Amplitude des Bandes stark ab und der Quotient an der Fermienergie ist maximal.

=> Ein Band mit großer Amplitude ($\lambda=13$) kreuzt bei $18,1^\circ$ die Fermioberfläche.

Nun geben wir noch die aus allen Meßkurven ermittelte Fermioberfläche an:

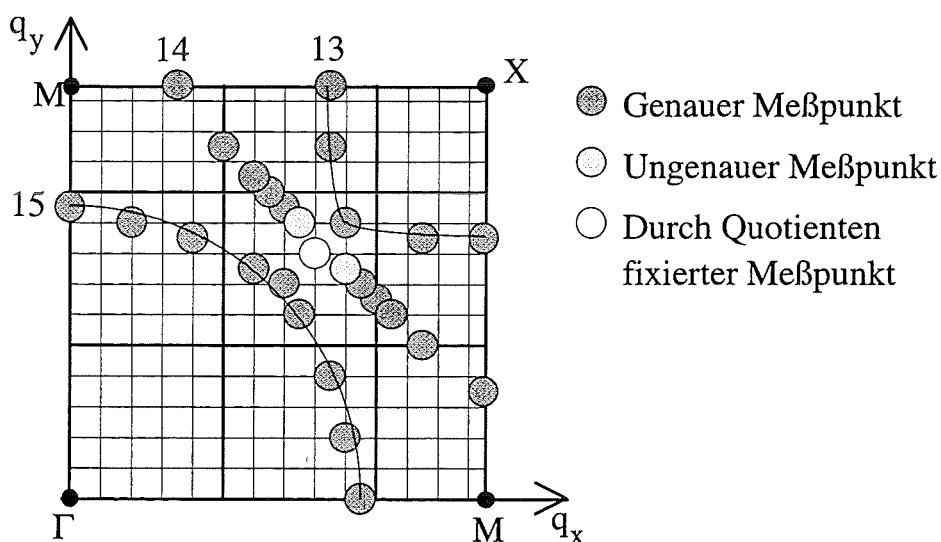


Abb. 6.3.3: Gemessene Fermioberfläche

Wie genau die Fermioberfläche in der Brillouin-Zone fixiert werden kann, hängt stark von der Amplitude des die Fermioberfläche bildenden Bandes ab, denn Bänder mit

kleinen Amplituden werden durch andere stärkere Bänder überdeckt und sind dann nur durch ein Quotientenmaximum an der Fermienergie zu lokalisieren.

Im Vergleich mit den errechneten Fermioberflächen (Abb. 6.2.11 und Abb. 6.2.12) finden wir gute Übereinstimmung für die Bänder 13 und 15 bei beiden Rechnungen. Die LMTO1-Rechnung liefert für Band 14 in der Brillouin-Zone eine quadratische Form. Die exaktere Rechnung LMTO2 ergibt dagegen eine Karoform und liegt damit wesentlich näher am Experiment. Exakt stimmt sie aber mit der Messung, besonders im Bereich um Punkt M, noch nicht überein. In der Umgebung des Γ -Punktes liegen uns keine genauen Messungen vor, so daß wir nicht entscheiden können, ob dort Band 16 die Fermioberfläche kreuzt.

§6.4 Berechnete ARUPS-Kurven:

§6.4.1 Selbstenergiekorrigierte ARUPS-Rechnung (SEKAR) zu der Messung von Cummins et al. mit LMT01-Daten

Auch die Sr_2RuO_4 -Einkristalle werden kurz vor der Messung im Vakuum gespalten. Die energetisch günstigste Position für die Spaltung haben wir in §6.1 in die Abbildung eingemalt. Bei Sr_2RuO_4 sind, anders als bei $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$, die beiden Seiten der Spaltstelle identisch, d.h. es gibt nur eine einzige Art der Oberfläche. Die äußersten Atome des Kristalls sind Apexsauerstoffatome und Strontiumatome, dann kommen Ebenensauerstoffatome und Rutheniumatome und schließlich wieder Apexsauerstoffatome und Strontiumatome. Für die Berechnung der ARUPS-Kurven im breiten Energiebereich haben wir wieder eine komplexe Selbstenergie angesetzt.

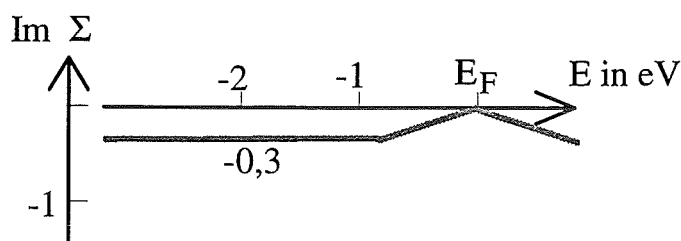


Abb. 6.4.1: Imaginärteil der Selbstenergie

Der Imaginärteil der Selbstenergie ergibt sich aus der Verschmierung der Meßkurve zu ungefähr $-0,3\text{eV}$ und der Realteil der Selbstenergie aus der Verschiebung der Energieachse zu $+0,75\text{eV}$.

In Abbildung 6.4.2 sind die Ergebnisse der LEEDs-Rechnung mit komplexer Selbstenergie dargestellt. Als Eingabedaten für diese Rechnung wurden die LMT01-Daten verwendet, weil zum Zeitpunkt der Rechnung die LMT02-Daten noch nicht vorlagen.

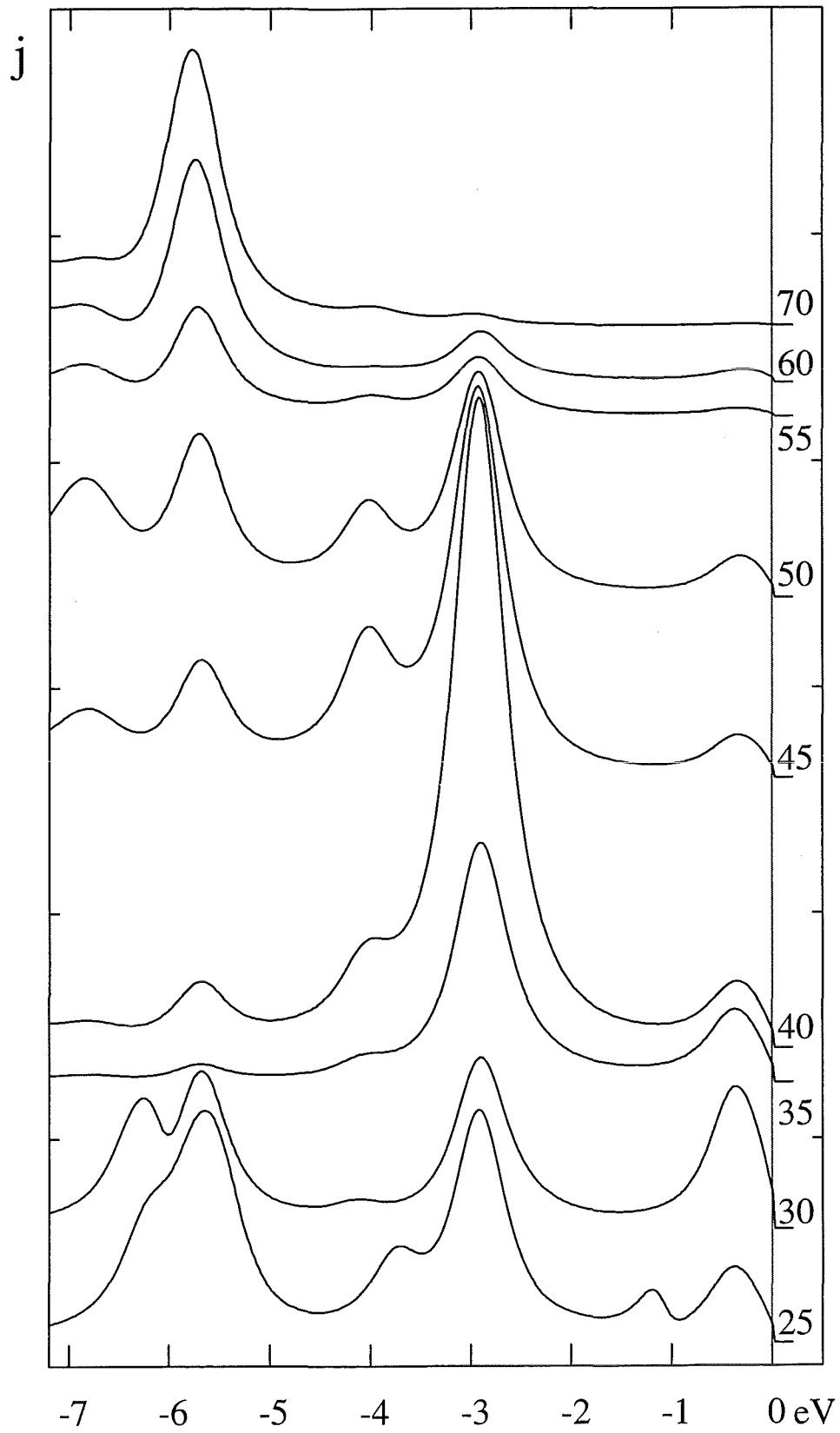


Abb. 6.4.2: Selbstenergiekorrigierte ARUPS-Rechnung (SIKAR) Sr_2RuO_4

Vergleichen wir nun die errechneten Kurven mit den Meßkurven aus §6.3: Der Mittelpeak bei $E = -2,8\text{eV}$ steigt von $E_\gamma = 25\text{eV}$ bis zum Maximum bei $E_\gamma = 40\text{eV}$ exakt der Messung entsprechend an, um dann rasch wieder abzufallen auf eine bei $E_\gamma = 55\text{eV}$ sehr kleine Amplitude. Die Messungen liefern bei weiterer Erhöhung der Photonenenergie E_γ eine leichte Erholung des Mittelpeaks. Bei der Rechnung dagegen verschwindet der kleine Rest des Mittelpeaks ganz. Die kleine Struktur bei der Fermienergie ist sowohl bei der Rechnung als auch bei der Messung bei großen Photonenenergien kleiner als bei geringer Photonenenergie. Auch der linke Bereich der Meßkurven wird durch die Rechnung gut wiedergegeben. Der Peak in der 25eV-Kurve nimmt zur 30eV-Kurve hin ab und verschwindet bei $E_\gamma = 35\text{eV}$. Bei größeren Photonenenergien (60eV und 70eV) erscheint er wieder und hat in der 70eV-Kurve die selbe Amplitude als in der 25eV-Kurve. Die Rechnung ist also gut genug, um die Analyse der Kurven zu gestatten.

Wir gehen bei der folgenden Analyse der Kurven ähnlich wie in §5.4.5 bei der Analyse der Sakisaka-Meßkurven vor. Zunächst betrachten wir uns die errechneten Kurven ohne das Matrixelement A aus Gleichung 61. Dazu haben wir die Kurven ohne Matrixelement in Abbildung 6.4.3 eingezeichnet. Wir erkennen analog zu Abbildung 5.4.5.3 eine identische Struktur aller Kurven, deren Amplitude von der Photonenenergie abhängt und mit E_γ steigt. Auch das kennen wir schon von den Sakisaka-Kurven.

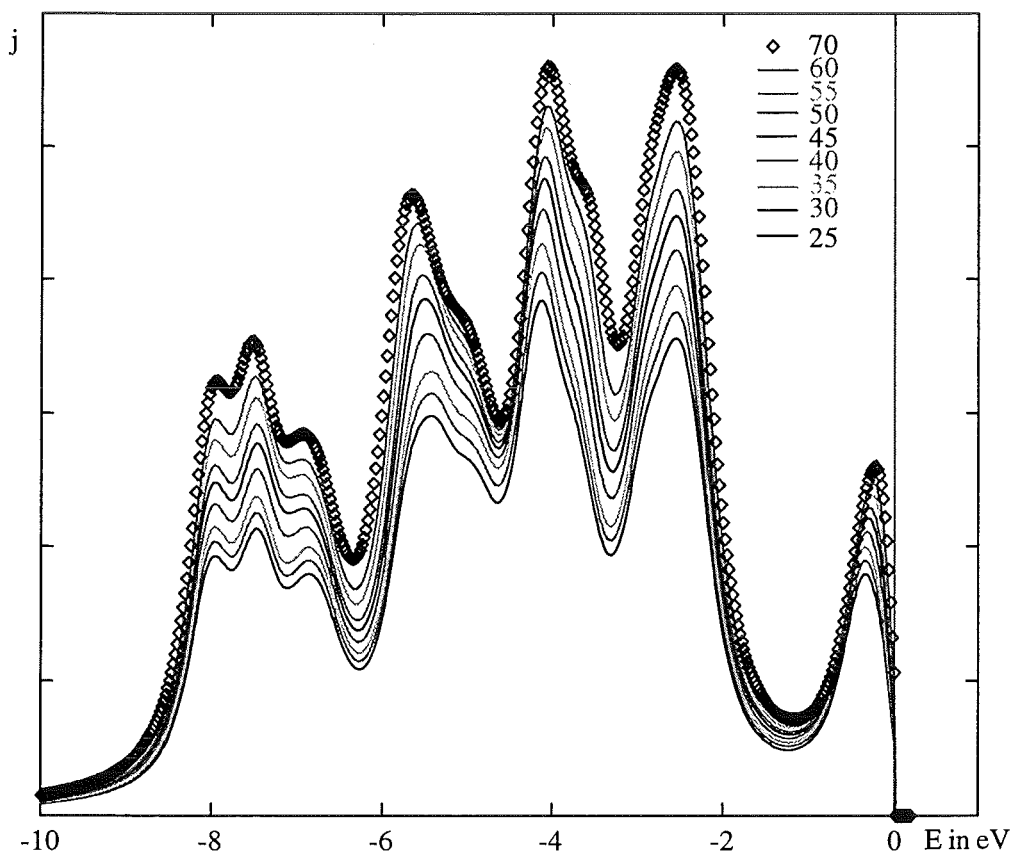


Abb. 6.4.3: Rechnung ohne Matrixelement A

Analog zu §5.4.5 betrachten wir nun das Matrixelement genauer:

Auch bei Sr_2RuO_4 bewirkt der Photonenimpuls des eingestrahlten Lichts nur eine sehr geringe Änderung der ARUPS-Kurven. (Der Photonenimpuls ist um den Faktor ≈ 150 kleiner als der Impuls der Photoelektronen) Das gleiche gilt auch für die aus der Entwicklung der Exponentialfunktion $e^{-i\bar{\rho}(\bar{k}-\bar{k}_\gamma)}$ stammenden Kugelwellenfunktionen $Y_{l\bar{m}}\left(\left(\bar{k}-\bar{k}_\gamma\right)^0\right)$ und den sphärischen Besselfunktionen $j_l\left(\left|\bar{k}-\bar{k}_\gamma\right|\rho\right)$. Der Ortsvektor $\bar{\rho}$ gibt dabei den Ort innerhalb einer Atomkugel in der Elementarzelle an. Verglichen mit den Ortsvektoren der Atomrümpfe selbst ist $\bar{\rho}$ klein und liefert damit nur einen geringen Phasenfaktor. Außerdem gibt es immer einen gespiegelten Ortsvektor $-\bar{\rho}$, der den Phasenfaktor wieder weitgehend aufhebt.

Damit sind die Kurvenformen auch bei Sr_2RuO_4 durch die Interferenz der atomaren Beiträge verursacht. In Gleichung 62

$$\bar{j} \propto \left| \sum_{\text{Atome}} \text{Atombeiträge} \cdot \text{Phasenfaktor} \right|^2 = \left| \sum_{\kappa, j'} \alpha_{\kappa, j'} e^{-i(\bar{R}_j + \bar{\kappa})\bar{k}} \right|^2$$

ist j' der Schichtindex und κ der Atomindex innerhalb einer Schicht, d. h. die Summe über j' beschreibt die Überlagerung der einzelnen Schichtbeiträge zur Gesamtkurve und die Summe über κ die Überlagerung der Atombeiträge innerhalb einer Schicht. Nun wollen wir sehen, welche Auswirkungen die Interferenz der einzelnen Schichten auf die ARUPS-Kurven haben. Dazu haben wir Rechnungen ohne diese Interferenz durchgeführt, d. h. $e^{-i\bar{R}_j\bar{k}} = 1$ gesetzt. In den folgenden 4 Abbildungen (6.4.4 - 6.4.7) sind Rechnungen mit und ohne Schichtinterferenz eingezeichnet.

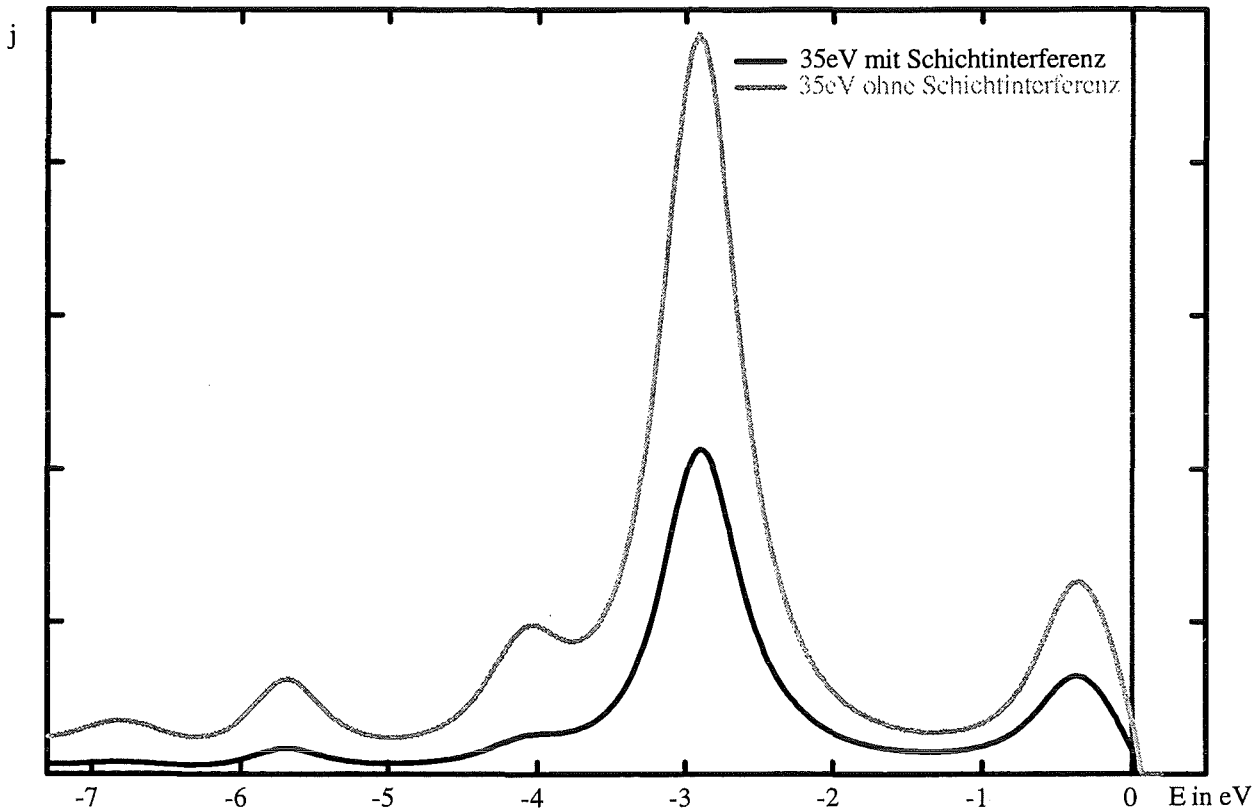


Abb. 6.4.4: Auswirkung der Schichtinterferenz 35eV-Kurve

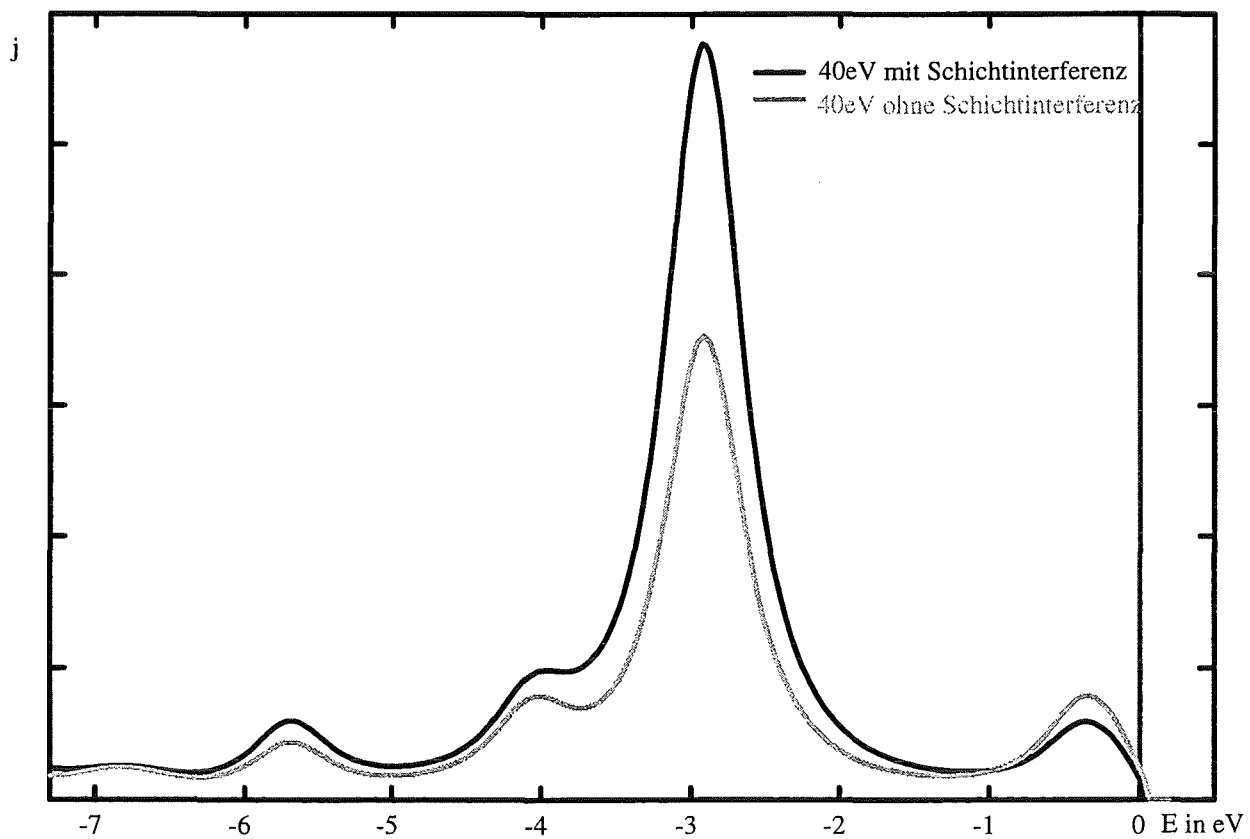


Abb. 6.4.5: Auswirkung der Schichtinterferenz 40eV-Kurve

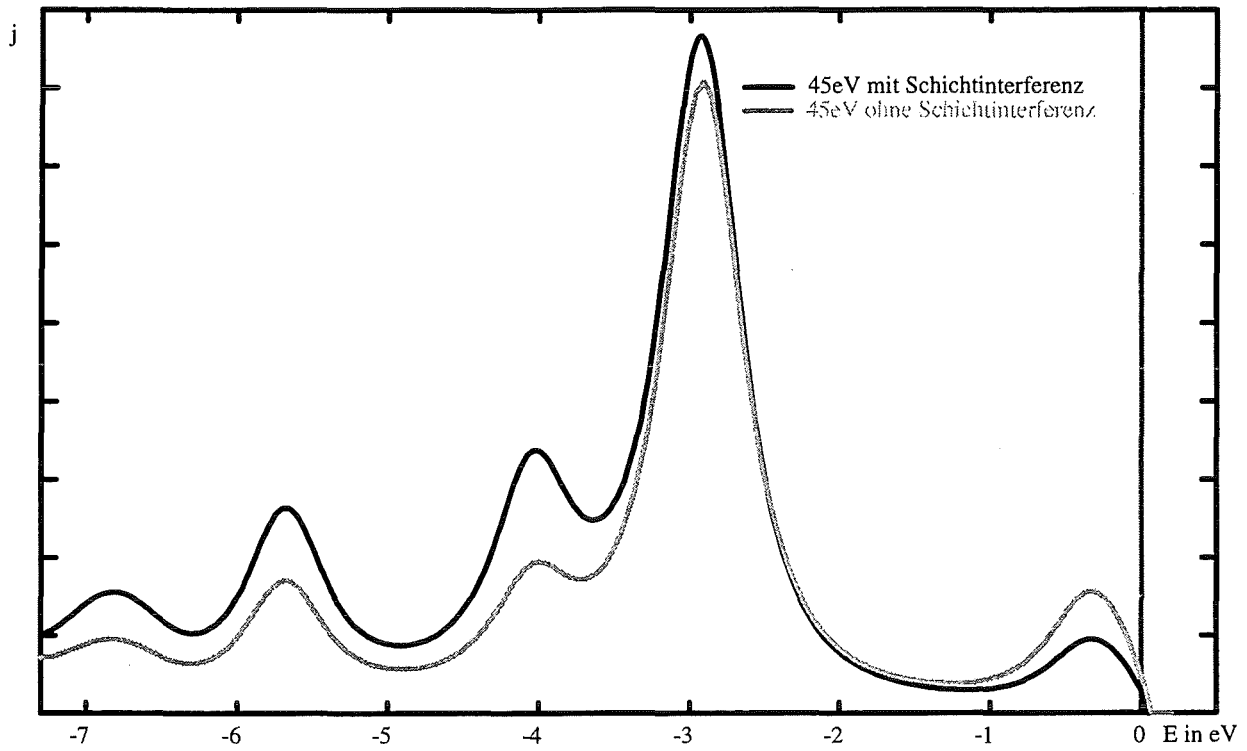


Abb. 6.4.6: Auswirkung der Schichtinterferenz 45eV-Kurve

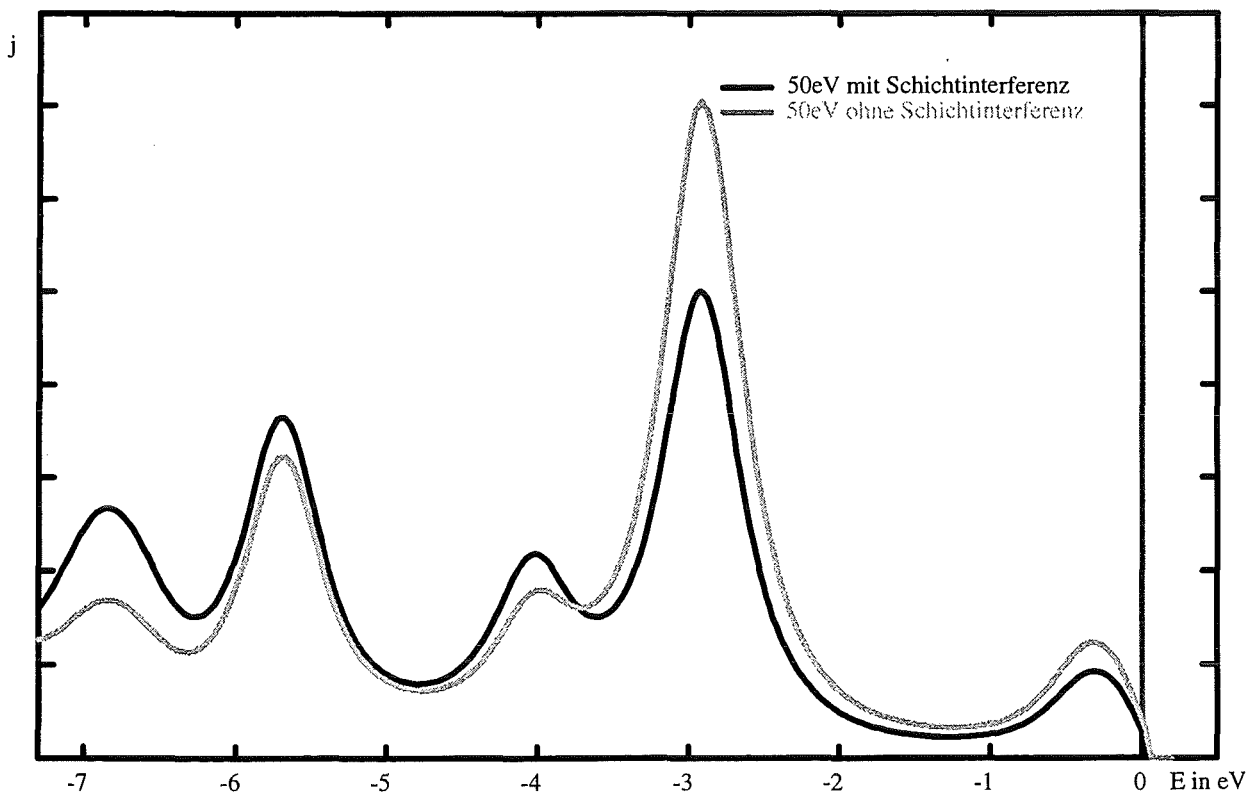


Abb. 6.4.7: Auswirkung der Schichtinterferenz 50eV-Kurve

Der Mittelpeak bei $E = -2,8\text{eV}$ nimmt durch die Schichtinterferenz in der 35eV-Kurve um ca. 50% ab (Abb. 6.4.4) und in der 40eV-Kurve (Abb. 6.4.5) um ca. 70% zu. In der 45eV-Kurve (Abb. 6.4.6) bewirkt die Schichtinterferenz nur noch eine Erhöhung um ca. 10% und in der 50eV-Kurve (Abb. 6.4.7) wird der Mittelpeak wieder um ca. 25% abgeschwächt. =>

Die Schichtinterferenz bewirkt die große Amplitude des Mittelpeaks in der 40eV-Kurve.

Welche Auswirkungen hat die Interferenz von atomaren Beiträgen innerhalb einer Schicht? Dazu betrachten wir die folgenden Abbildungen 6.4.8 - 6.4.16:

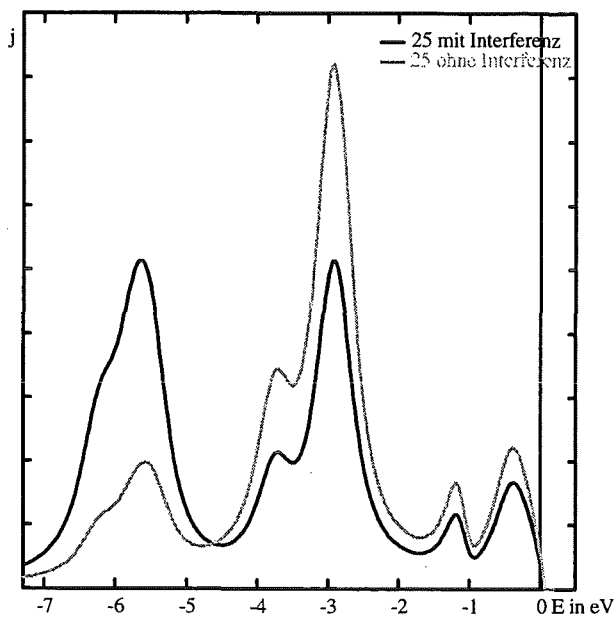


Abb. 6.4.8: Interferenz innerhalb einer Schicht 25eV-Kurve

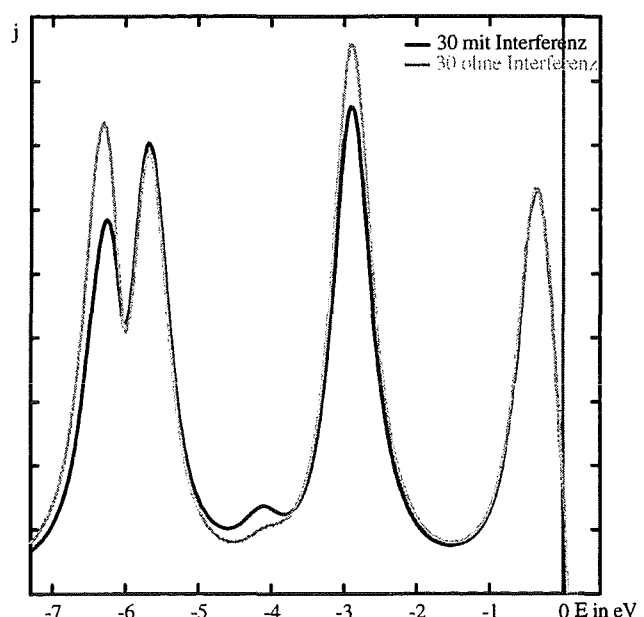


Abb. 6.4.9: Interferenz innerhalb einer Schicht 30eV-Kurve

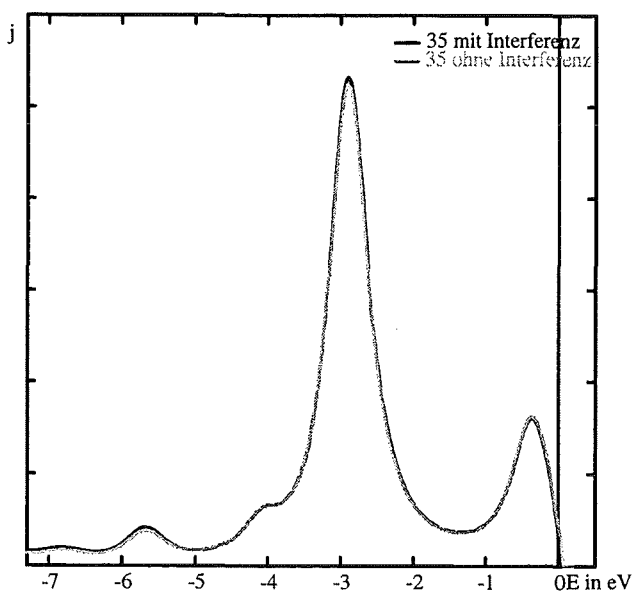


Abb. 6.4.10: Interferenz innerhalb einer Schicht 35eV-Kurve

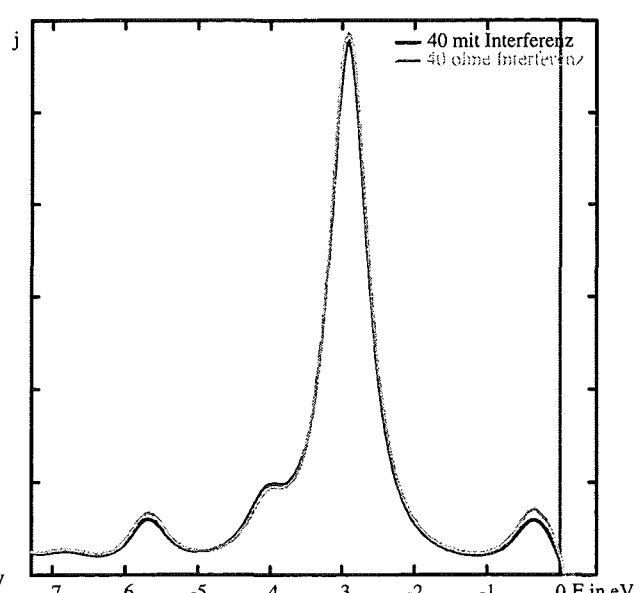


Abb. 6.4.11: Interferenz innerhalb einer Schicht 40eV-Kurve

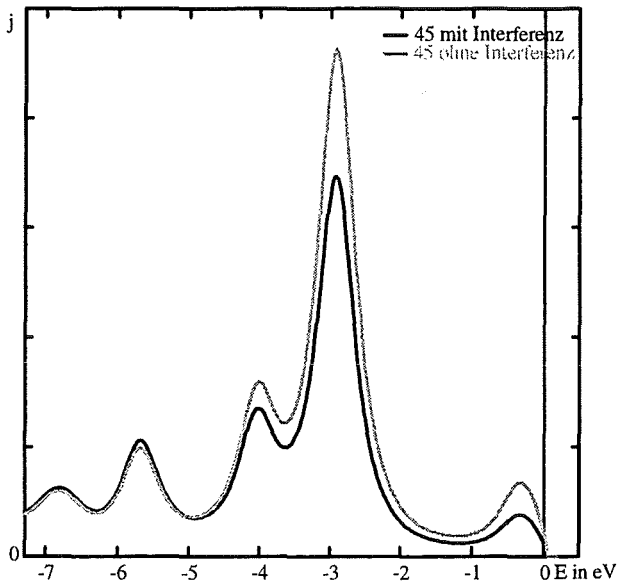


Abb. 6.4.12: Interferenz innerhalb einer Schicht 45eV-Kurve

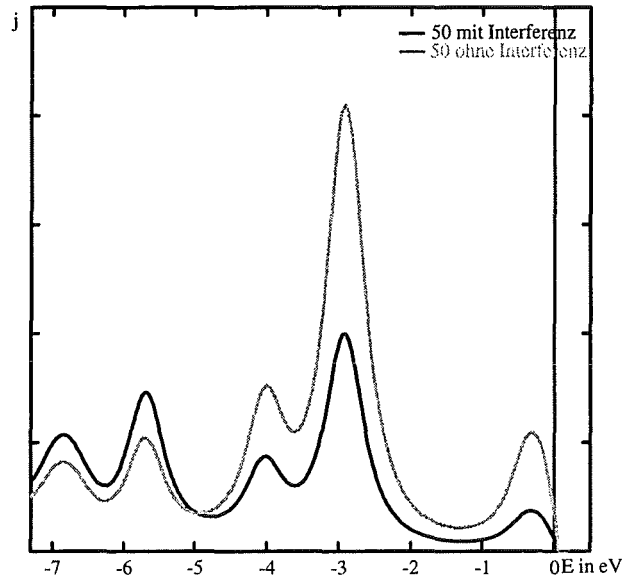


Abb. 6.4.13: Interferenz innerhalb einer Schicht 50eV-Kurve

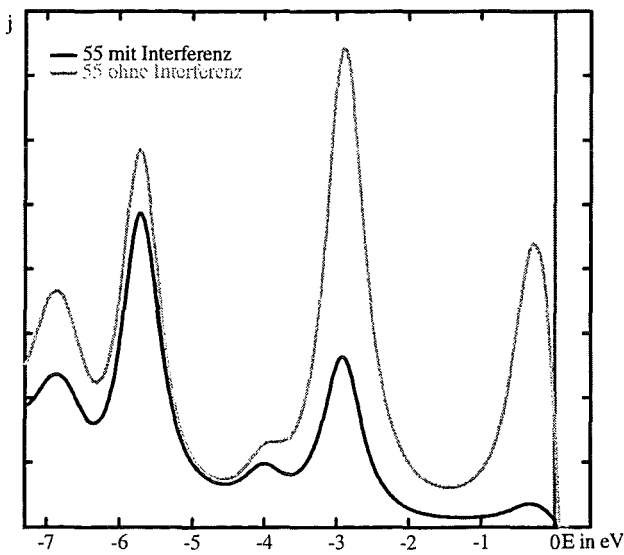


Abb. 6.4.14: Interferenz innerhalb einer Schicht 55eV-Kurve

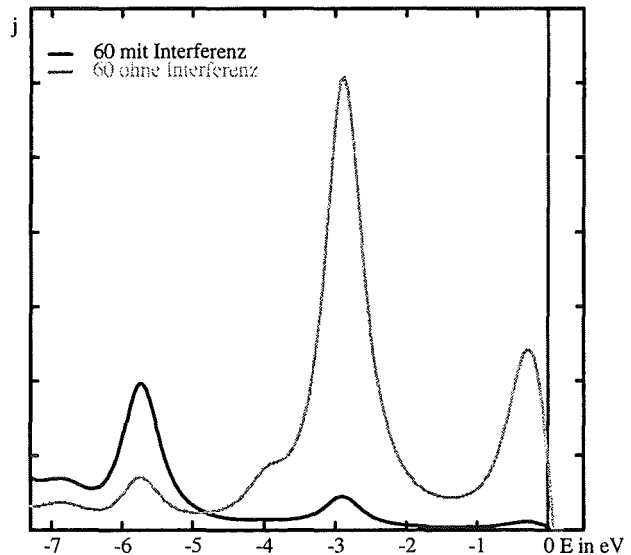


Abb. 6.4.15: Interferenz innerhalb einer Schicht 60eV-Kurve

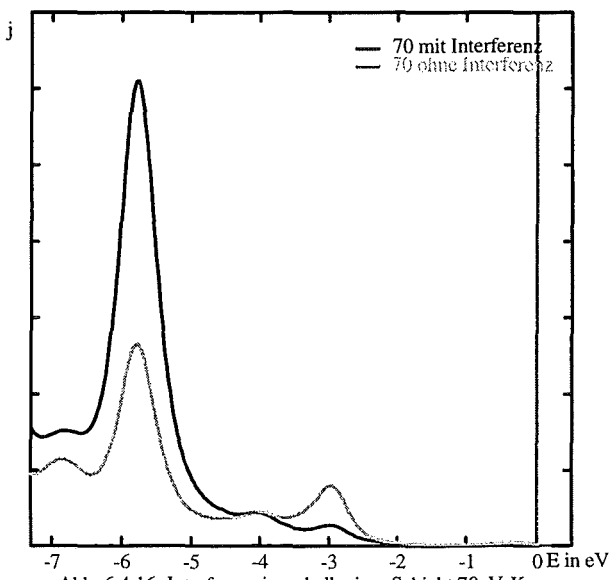


Abb. 6.4.16: Interferenz innerhalb einer Schicht 70eV-Kurve

Wir erkennen eine destruktive Interferenz des Mittelpeaks beginnend in der 45eV-Kurve. Diese destruktive Interferenz verstärkt sich bei der 50eV-Kurve, schwächt den Mittelpeak in der 55eV-Kurve auf einen Rest von 40% der Ursprungsamplitude ab und löscht ihn in der 60eV-Kurve fast völlig aus. In den Kurven 25eV, 60eV und 70eV hebt eine konstruktive Interferenz den linken Peak bei $E = -5,4\text{eV}$ um das Zweifache an, während in den

Kurven 45eV - 70eV eine destruktive Interferenz den rechten Peak in der Nähe der Fermienergie erheblich abschwächt. Ohne diese Abschwächung wäre z. B. in der 55eV-Kurve dieser rechte Peak gegenüber der Messung deutlich zu groß.

Die Struktur der ARUPS-Kurven wird hauptsächlich durch die Interferenz der Atombeiträge innerhalb einer Schicht verursacht.

Wir wollen noch den Mittelpeak der ARUPS-Kurven in Abb. 6.4.2 bzw. in Abb. 6.3.1 unter einem anderen Aspekt betrachten. Die energetische Position des Mittelpeaks bei $E=-2,8\text{eV}$ ist bei allen Kurven ungefähr gleich, man könnte also annehmen, der Mittelpeak wird durch eine feste Bandgruppe gebildet, eventuell sogar durch ein einziges Band? Mit der ARUPS-Rechnung haben wir nun das Mittel, dieser Frage nachzugehen.

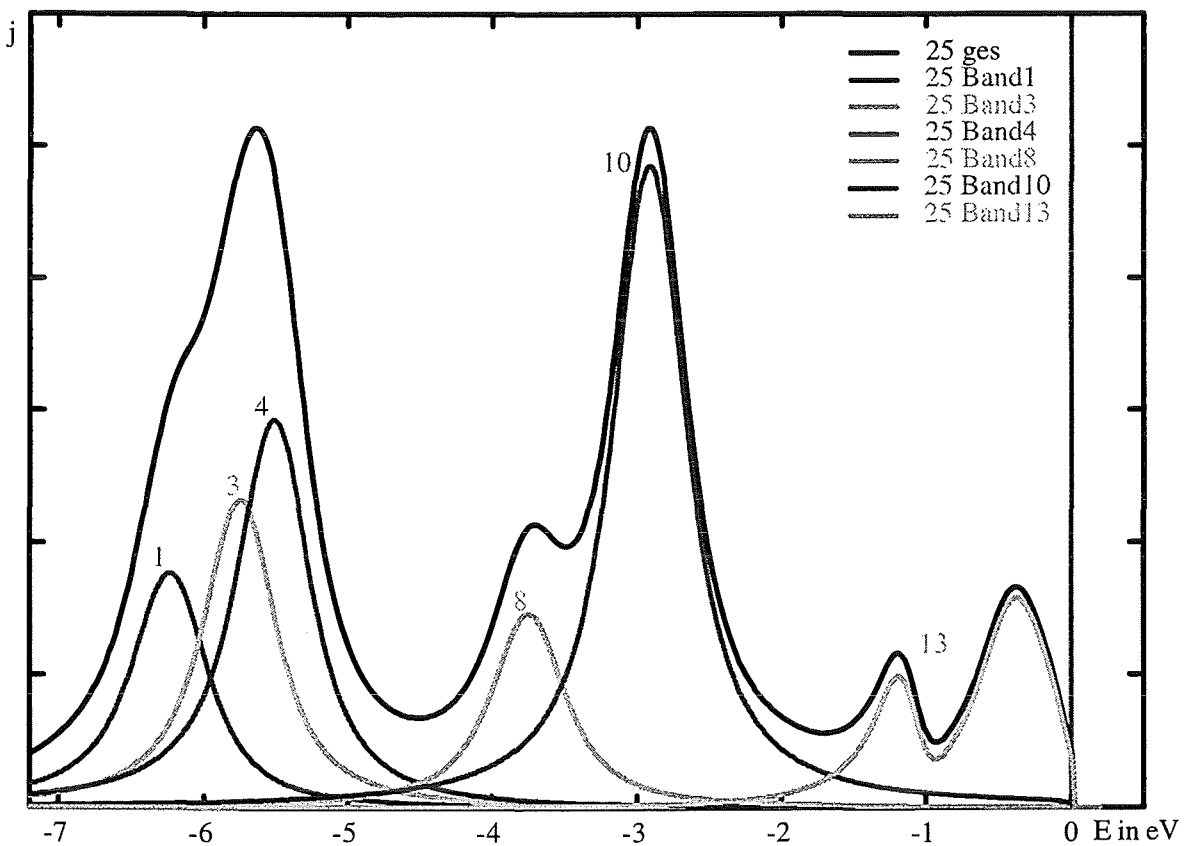


Abb. 6.4.17: Bandzusammensetzung der 25eV-Kurve

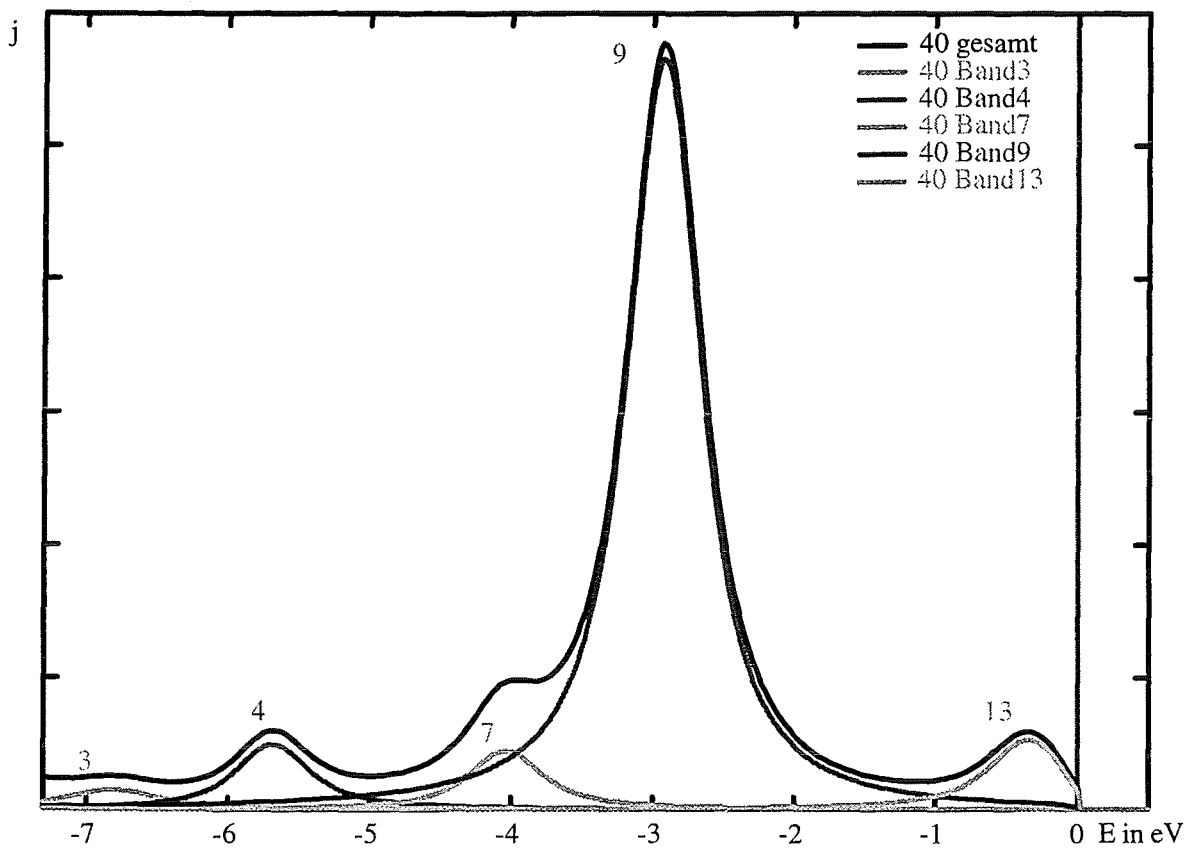


Abb. 6.4.18: Bandzusammensetzung der 40eV-Kurve

Wie man in Abb. 6.4.17 erkennt, setzt sich der Mittelpeak der 25eV-Kurve aus den Bändern $\lambda=8+10$ zusammen, der Mittelpeak in der 40eV-Kurve (Abb. 6.4.18) aber aus den Bändern $\lambda=7+9$. \Rightarrow Der Mittelpeak besteht je nach Photonenenergie aus anderen Bändern und es wäre völlig falsch aus der Lage des Mittelpeaks in den verschiedenen Kurven auf eine verschwindende Banddispersion zu schließen.

Bei einer unendlich großen freien Weglänge λ der Photoelektronen gibt es einen festen Zusammenhang zwischen den z-Komponenten der Impulse $k_{el,z} = q_z + k_{\gamma,z} + G_z$ und die Photoelektronen werden aus einem kleinen z-Bereich der Brillouin-Zone emittiert. Die Lage dieses kleinen z-Bereichs in der Brillouin-Zone hängt, über den angegebenen Impulszusammenhang, von der eingestrahelten Photonenenergie ab. Nur diejenigen Bänder, die in diesem z-Bereich die Energie -3eV (Lage des Mittelpeaks) haben, tragen zum Mittelpeak bei.

Bei einer endlichen freien Weglänge λ gibt es zwar keinen festen Zusammenhang zwischen den z-Komponenten der Impulse mehr, der ganze z-Bereich der Brillouin-Zone trägt also zur ARUPS-Kurve bei, trotzdem kommen die Hauptbeiträge noch aus dem kleinen z-Bereich in der Brillouin-Zone.

§6.4.2 Selbstenergiekorrigierte ARUPS-Rechnung (SEKAR) zu der Messung von Lu et al. mit LMT01-Daten

Wenden wir uns nun den Messungen von Lu, Schmidt, Cummins und Schuppler (Abb. 6.3.2) zu. Unsere ARUPS-Programme sind auf linear polarisiertes Licht ausgelegt. Diese Messungen verwenden aber unpolarisiertes Licht einer Ne-Lampe. Dieses Problem lösten wir dadurch, daß wir mehrere Rechnungen mit jeweils um 10° verdrehte Polarisationsvektoren durchführten und zu einem Gesamtergebnis aufsummierten. Für die Rechnungen benötigten wir neben den Daten der Messung (Energieauflösung, Winkelauflösung, usw.) auch noch die komplexe Selbstenergie Σ . Diese wurden mit der gleichen groben Näherung wie in §5.4.8 berechnet und der Proportionsfaktor der Verschmierung der $18,1^\circ$ -Kurve angepaßt. In den folgenden 3 Abbildungen (6.4.19 - 6.4.21) geben wir die Beiträge der Bänder 13-15 zur komplexen Selbstenergie an.

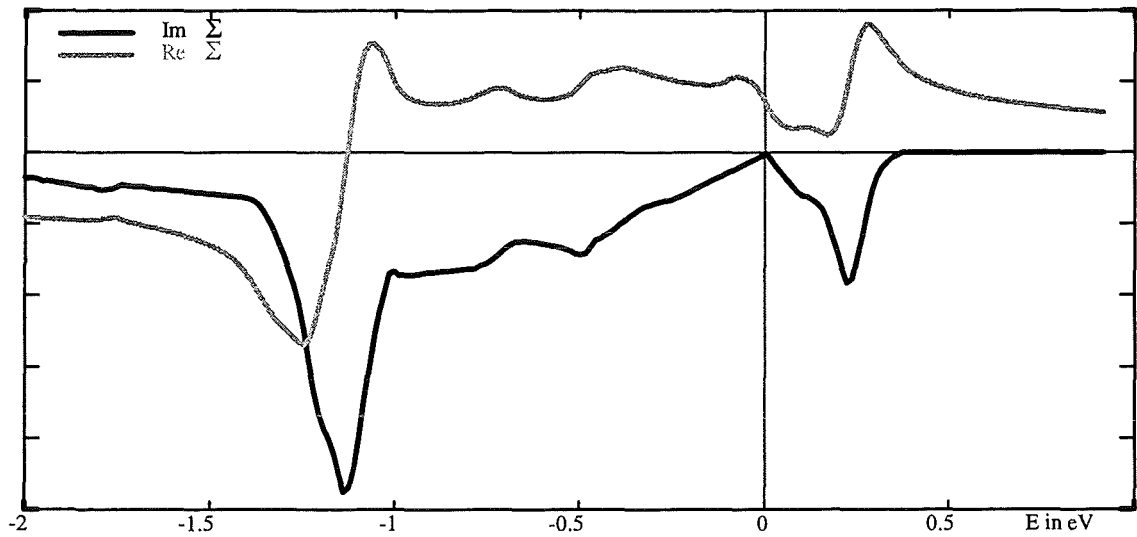


Abb. 6.4.19: Selbstenergie von Band 13

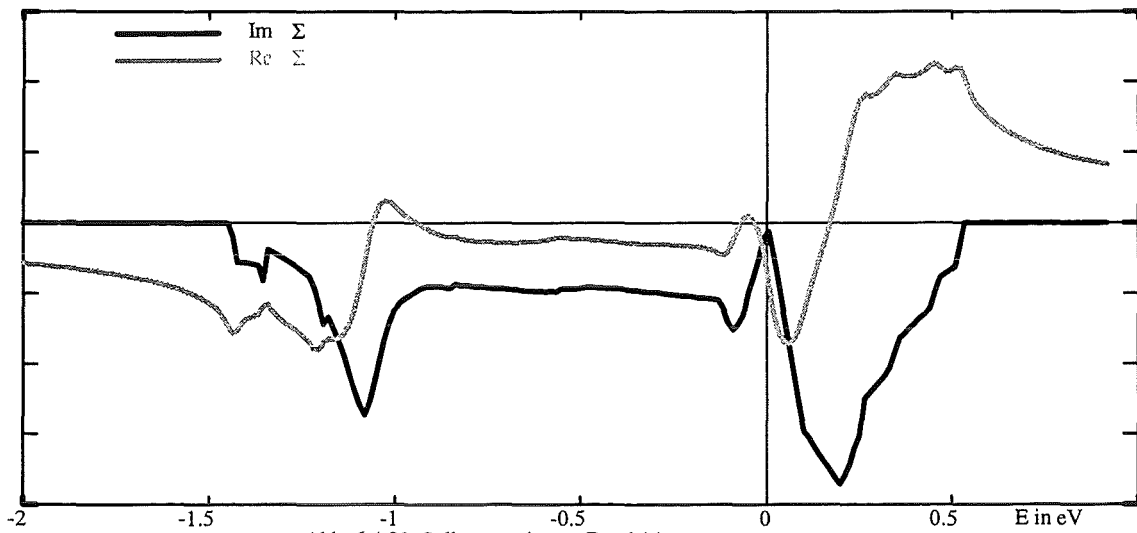


Abb. 6.4.20: Selbstenergie von Band 14

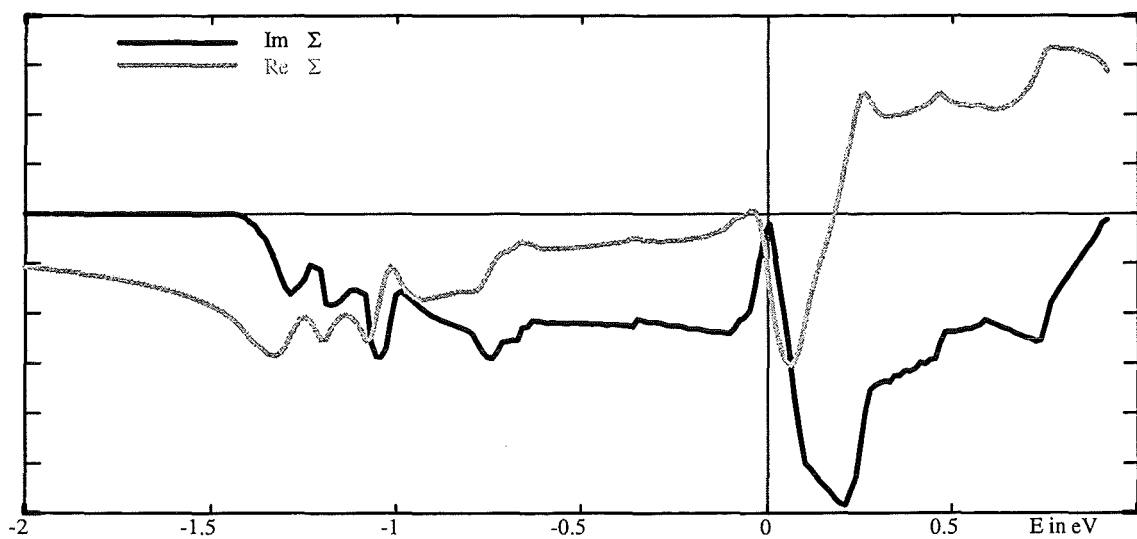


Abb. 6.4.21: Selbstenergie von Band 15

Abb. 4.6.22 zeigt die Ergebnisse der SEKAR für die Messung von Lu et al. (Abb.6.3.2):

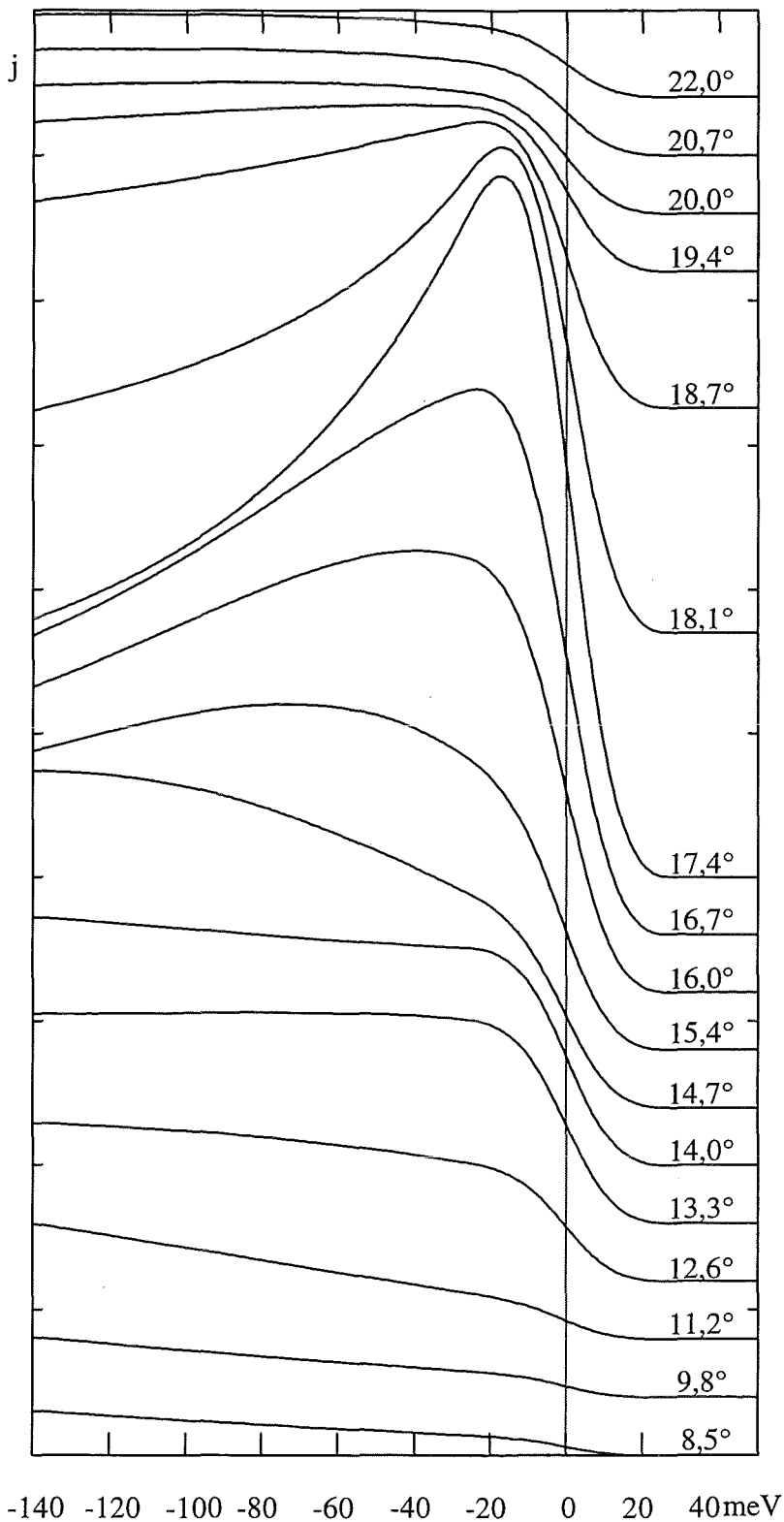


Abb. 4.6.22: Selbstenergiekorrigierte ARUPS-Rechnung

können wir jetzt folgende Fragen klären: Existiert dieses dritte Band wirklich? (Wodurch sich das Quotientenkriterium bestätigen würde)

Im Vergleich der Rechnung mit der Messung stellen wir eine ausgezeichnete Übereinstimmung fest. Die Kurven beginnen bei $8,5^\circ$ als sehr flache, sich kaum vom Untergrund abhebende Struktur, werden dann mit größerem Winkel zunächst im linken Energiebereich und dann auch an der Fermienergie höher, bis bei 14° ein Maximum der Kurvenhöhe an der Fermienergie erreicht ist. Von $14,7^\circ$ bis $19,4^\circ$ wandert ein zunächst breiter Peak von $E \approx -80 \text{ meV}$ nach rechts, wird schmaler und höher, bis er bei $18,1^\circ$ die Fermioberfläche kreuzt. Danach nimmt die Amplitude des Peaks auf einen kleinen Rest bei $20,0^\circ$ ab. Die flache Struktur in den Kurven $20,7^\circ$ und $22,0^\circ$ kommt von Bändern mit niedriger Energie, die die Fermioberfläche nicht kreuzen. Aus den Messungen (Abb.6.3.2) haben wir auf 3 die Fermioberfläche kreuzende Bänder geschlossen, wobei das mittlere Band nur durch das neue Quotientenkriterium an der Fermienergie entdeckt wurde. Mit unserer ARUPS-Rechnung

Weshalb ist die Amplitude dieses dritten Bands so klein? Die Amplitude eines Bandes sollte doch in der Umgebung der Fermienergie eine größere Amplitude haben als im sonstigen Energiebereich. Bestätigen die Rechnungen die Übergänge der anderen beiden Bänder?

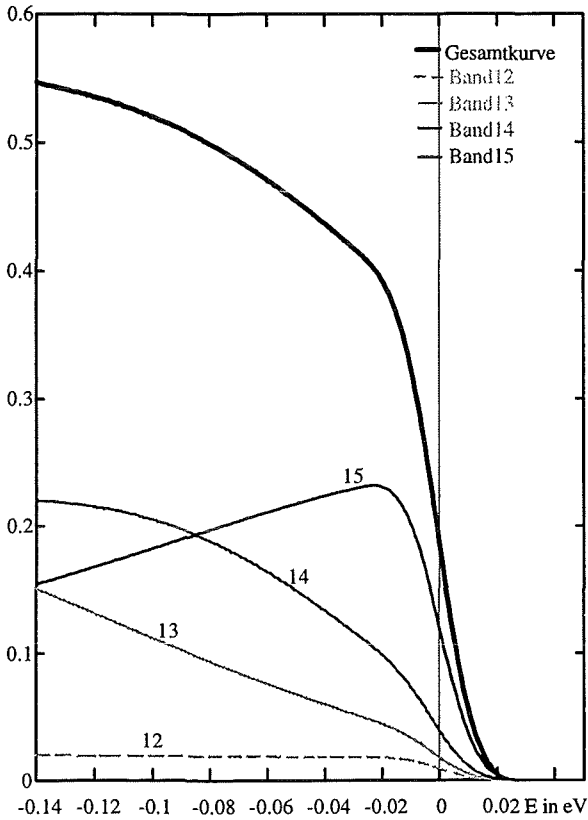


Abb. 4.6.23: Bandzusammensetzung der 12,6°-Kurve

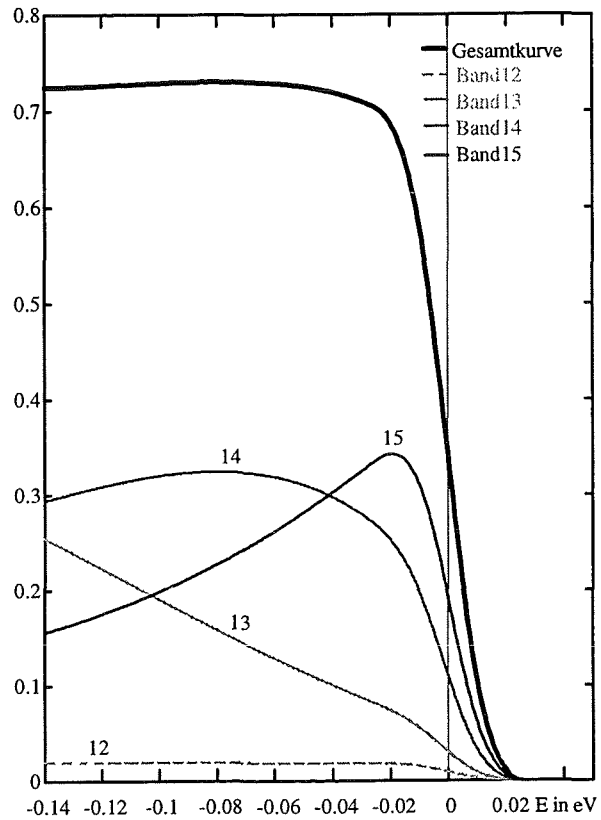


Abb. 4.6.24: Bandzusammensetzung der 13,3°-Kurve

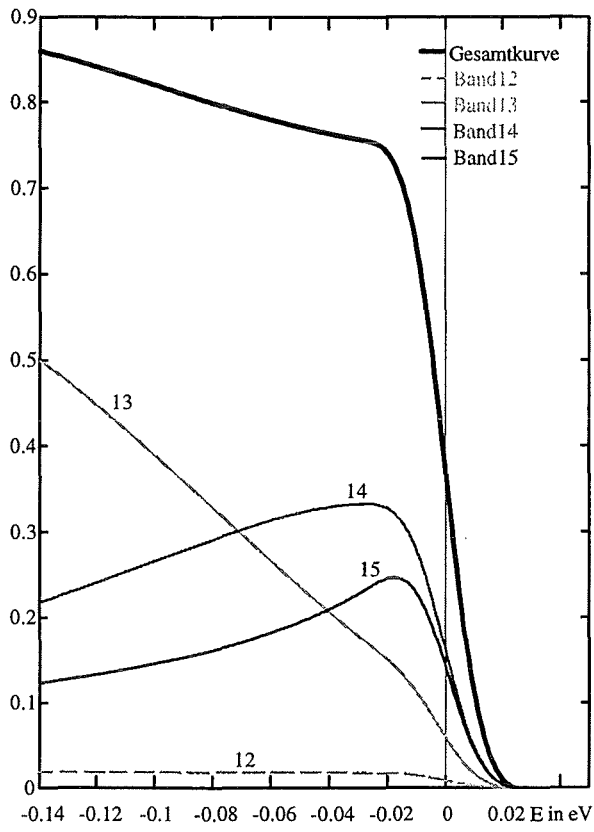


Abb. 4.6.25: Bandzusammensetzung der 14,0°-Kurve

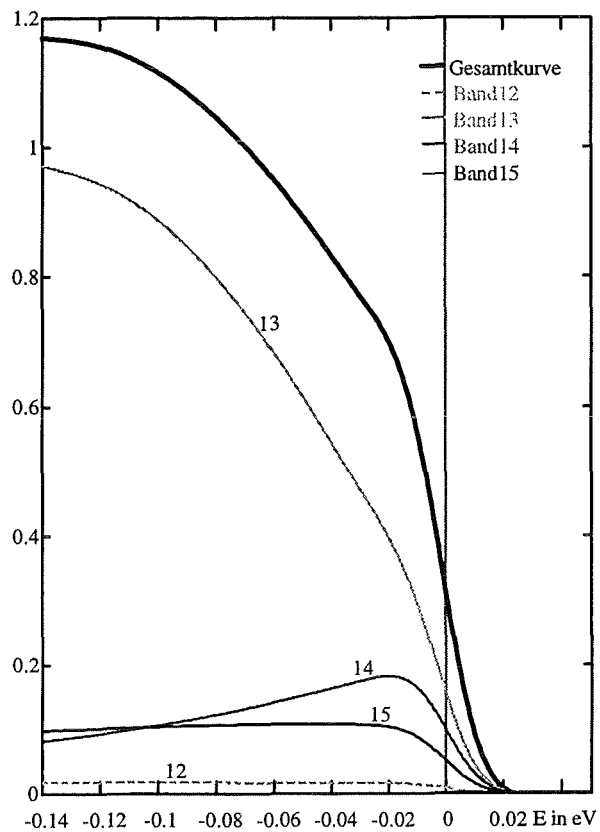


Abb. 4.6.26: Bandzusammensetzung der 14,7°-Kurve

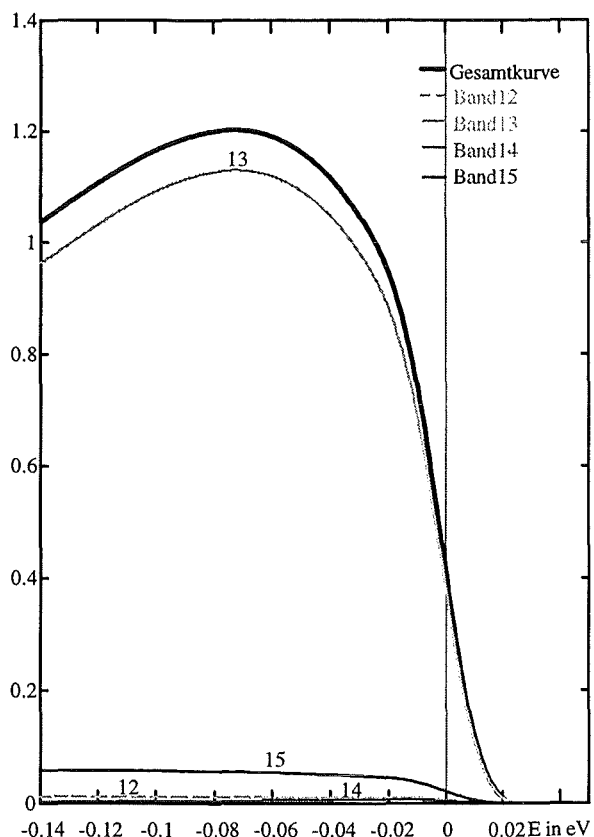


Abb. 4.6.27: Bandzusammensetzung der 15,4°-Kurve

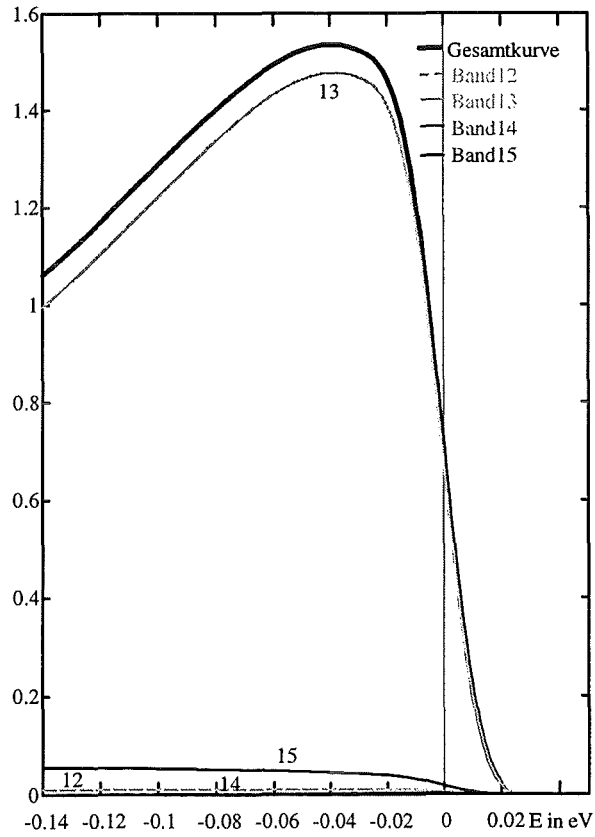


Abb. 4.6.28: Bandzusammensetzung der 16,0°-Kurve

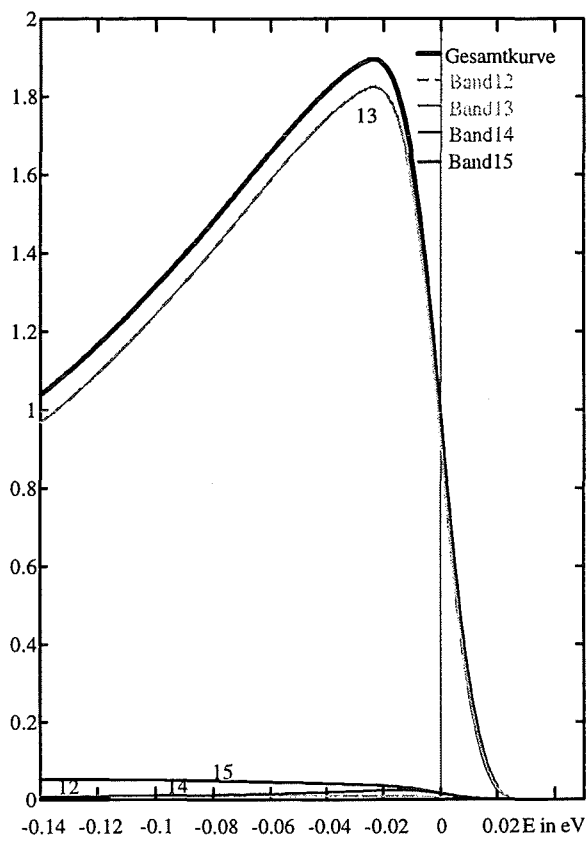


Abb. 4.6.29: Bandzusammensetzung der 16,7°-Kurve

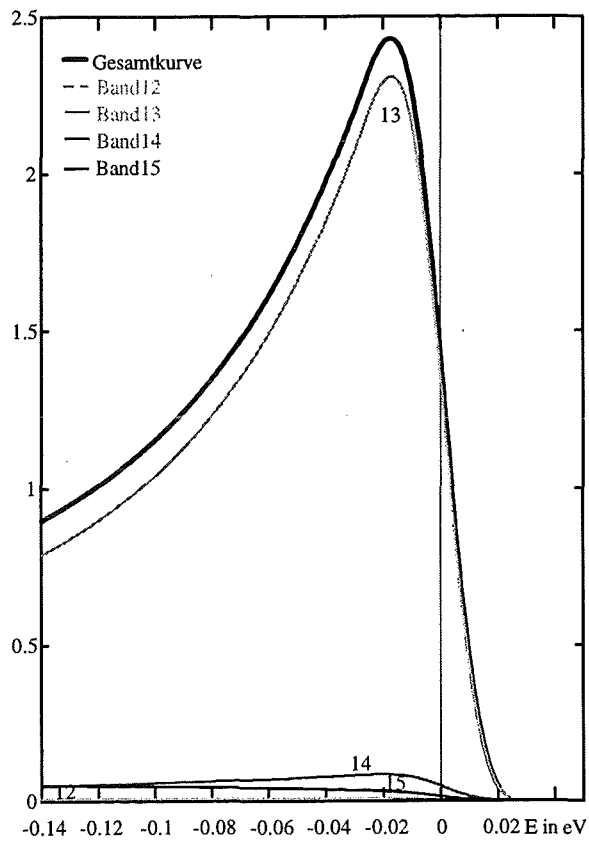


Abb. 4.6.30: Bandzusammensetzung der 17,4°-Kurve

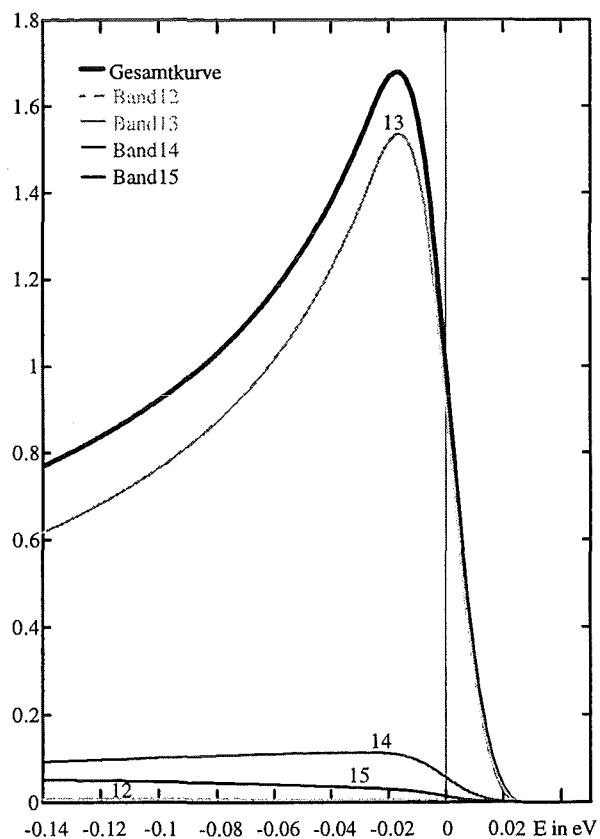


Abb. 4.6.31: Bandzusammensetzung der 18,1°-Kurve

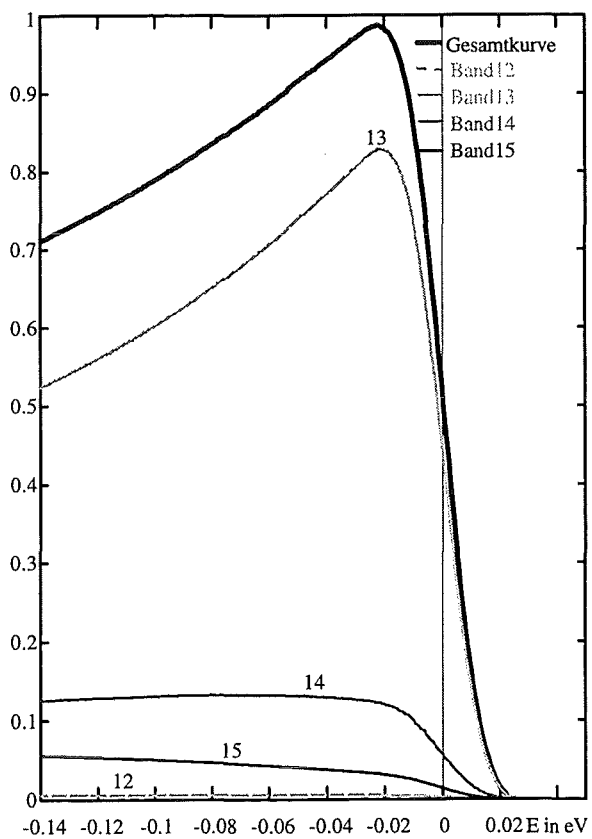


Abb. 4.6.32: Bandzusammensetzung der 18,7°-Kurve

In den Abbildungen 4.6.23 - 4.6.32 haben wir die Anteile der Bänder 12 - 15 mit der zugehörigen Gesamtkurve eingezeichnet. Damit können wir nun leicht die einzelnen Bänder durch die Kurven verfolgen und sehen, wie sich die Bandamplituden verändern:

- Band 15 hat in den Kurven $12,6^\circ$ - $14,0^\circ$ großen Anteil an den Gesamtkurven und kreuzt bei $14,0^\circ$ die Fermioberfläche. Danach nimmt seine Amplitude rasch ab, so daß der Beitrag von Band 15 ab $15,4^\circ$ vernachlässigt werden kann.

- Band 14 zeigt ein seltsames Verhalten! In den Kurven $12,6^\circ$ - 14° hat es eine große Amplitude, bewegt sich auf die Fermienergie zu und wird dabei schmaler und höher. Ab $14,7^\circ$ bewegt es sich zwar weiter auf die Fermienergie zu, aber statt zuzunehmen nimmt seine Amplitude ab. Zwischen $15,4^\circ$ und $16,0^\circ$ kreuzt es dann die Fermienergie und kann für größere Winkel vernachlässigt werden.

- Band 13 wandert von $12,6^\circ$ kontinuierlich nach rechts Richtung Fermienergie, wird dabei schmaler und höher, hat bei $17,4^\circ$ die größte Amplitude, kreuzt die Fermioberfläche bei $18,1^\circ$ und nimmt dann rasch ab um für größere Winkel als $20,7^\circ$ keinen nennenswerten Beitrag zur Gesamtkurve mehr zu liefern. Ab $14,7^\circ$ wird die Gesamtkurve von Band 13 dominiert.

Die Analyse der Kurven bestätigt das Quotientenkriterium und die Interpretation der Meßkurven in §6.3. Es kreuzen also wirklich 3 Bänder die Fermioberfläche an den angegebenen Positionen und die Amplitudenverhältnisse zwischen den Bändern haben die Rechnungen auch bestätigt. Bleibt noch die Frage zu klären:

Weshalb ist die Amplitude von Band 14 im Bereich um $15,4^\circ$ so klein?

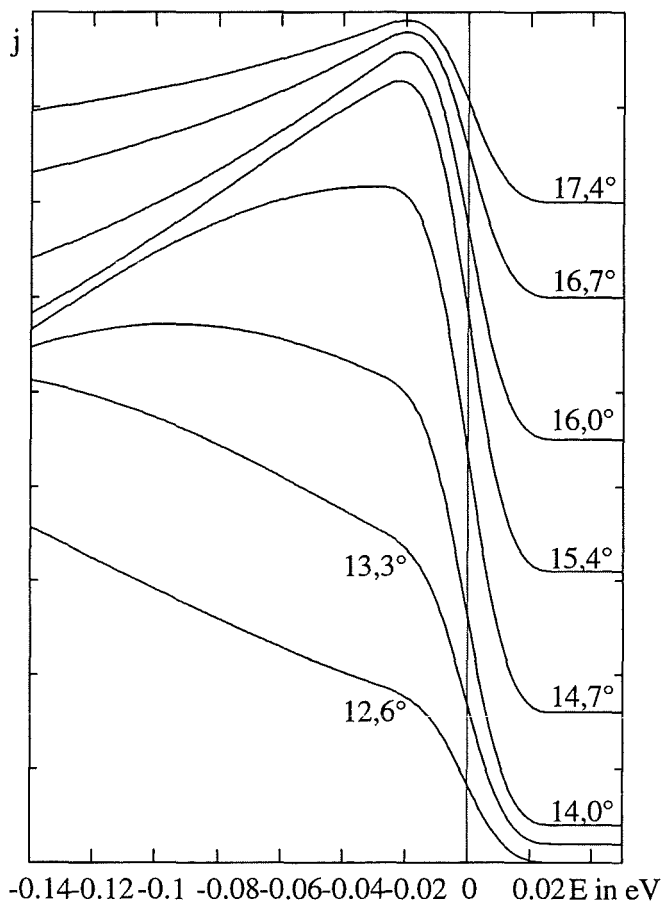


Abb. 6.4.33: Band 14 ohne Interferenz innerhalb einer Schicht

Maximum der Kurve weiter nach rechts wandert. Band 14 zeigt also jetzt das normale, in §2.3 beschriebene Verhalten, das Absinken der Amplitude ist verschwunden. Damit ist die destruktive Interferenz von Band 14 um $15,4^\circ$ bestätigt.

Wenn die Amplitude von Band 14 laut Rechnung, wie Abb. 4.6.24 zu entnehmen ist, nicht in der ganzen Brillouin-Zone klein ist, erscheint es sinnvoll dieses Band durch die Brillouin-Zone zu verfolgen. Durch die gute Zusammenarbeit mit der Experimentalgruppe um Herrn Schuppler hatten wir Zugriff auf die ARUPS-Meßdaten aus Abb. 6.3.3 und konnten so die Amplitude von Band 14 genauer verfolgen.

Bei den Messungen mit breitem Energiebereich haben wir erkannt, daß die Beiträge der einzelnen Atome sich als Interferenzbild zum Gesamtstrom aufsummieren. Ist vielleicht das Verschwinden der Amplitude bei $15,4^\circ$ auf eine destruktive Interferenz zurückzuführen? In Abbildung 6.4.33 haben wir die Ergebnisse einer Rechnung für Band 14 eingezeichnet. In dieser Rechnung wurde der Phasenfaktor, der die Interferenz der Atombeiträge innerhalb einer Schicht beschreibt, konstant gesetzt. Band 14 wandert von $12,6^\circ$ aus nach rechts, wird dabei schmaler und höher, bis es bei $15,4^\circ$ die Fermioberfläche kreuzt. Danach sinkt die Amplitude weiter ab, ohne daß das

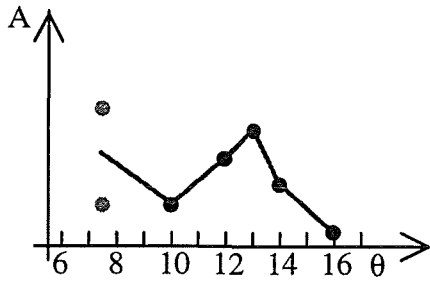


Abb. 6.4.34: Amplitude von Band 14

In Abbildung 6.4.34 haben wir die gemessenen Amplituden von Band 14 an verschiedenen Stellen in der Brillouin-Zone eingetragen. Dabei verfolgen wir Band 14 in der Umgebung der Fermioberfläche von links oben in Abb. 6.3.3 ($\theta=7,5^\circ$, $\varphi=27^\circ$) nach rechts unten bis zur Hauptdiagonalen bei Punkt ($\theta=16^\circ$, $\varphi=16^\circ$). Es ist problematisch die verschiedenen Messungen miteinander zu vergleichen, deshalb haben

wir jeder Messung den Quotient Peakhöhe/Untergrund entnommen und diesen Quotienten als Maß für die Amplitude des Bandes verwendet. (Bei $\theta=7,5^\circ$ gibt es zwei Messungen mit großen Unsicherheiten) Wir erkennen, daß die Amplitude von Band 14 nicht in der ganzen Brillouin-Zone konstant ist, sondern im Gegenteil starken Schwankungen unterliegt. Obgleich die Amplitudenwerte mit großen Unsicherheiten verbunden sind, ist doch deutlich ein Abfall der Bandamplitude von $\theta=13^\circ$ auf $\theta=16^\circ$ zu erkennen. D.h., nähert man sich der Hauptdiagonalen in Abb. 6.3.3, so verschwindet Band 14 im Untergrund der anderen Bänder.

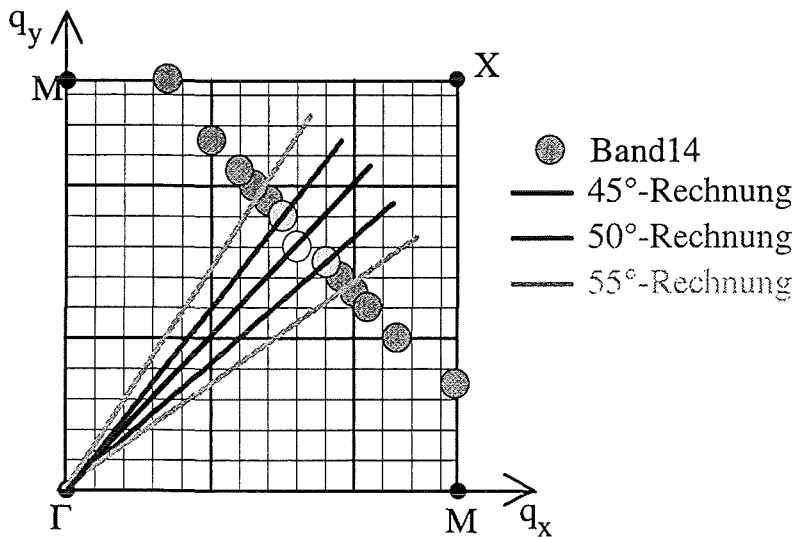


Abb. 6.4.35: Ergänzende Wege durch die B-Zone

Um dies zu bestätigen, haben wir zusätzlich zu den Rechnungen auf der Hauptdiagonalen noch weitere Rechnungen auf anderen Linien durch die Brillouin-Zone durchgeführt. Dabei muß die Amplitude des Bandes laut Abb. 6.4.34 von der 45°-Rechnung über die 50°-Rechnungen bis zur 55°-Rechnung deutlich ansteigen.

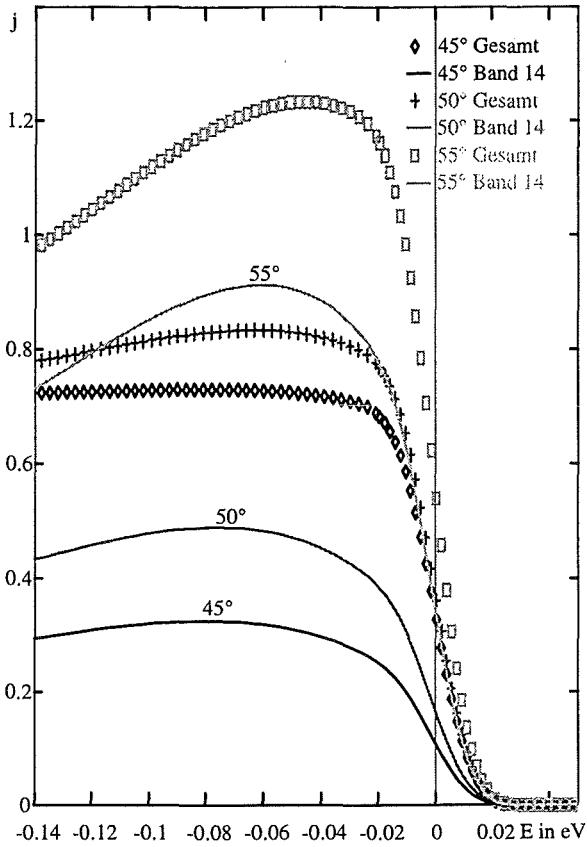


Abb. 6.4.36: 3 Wege durch die B-Zone (13,3°-Kurven)

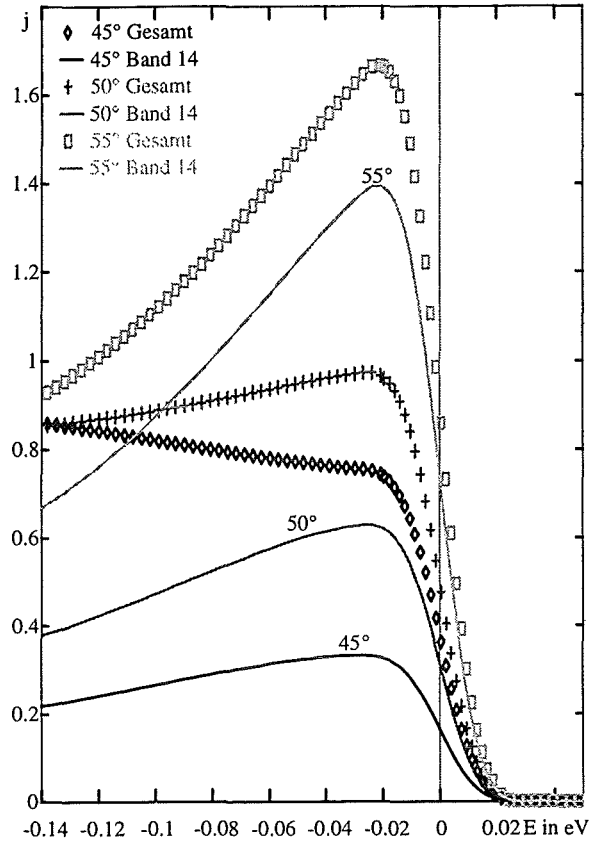


Abb. 6.4.37: 3 Wege durch die B-Zone (14,0°-Kurven)

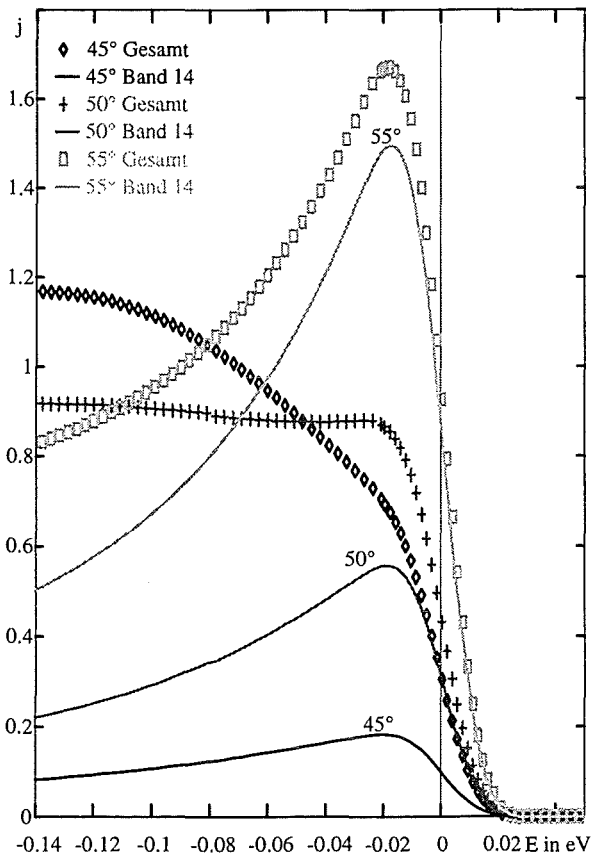


Abb. 6.4.38: 3 Wege durch die B-Zone (14,7°-Kurven)

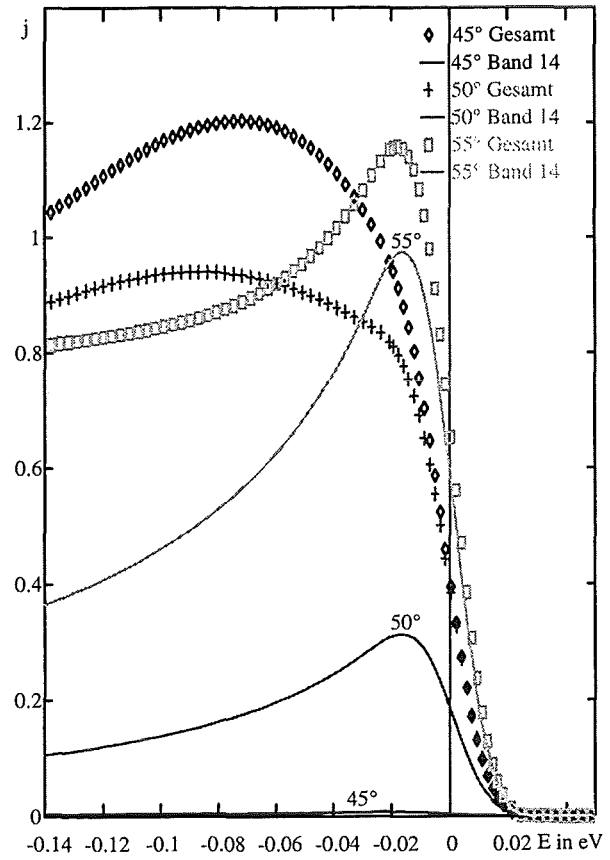


Abb. 6.4.39: 3 Wege durch die B-Zone (15,4°-Kurven)

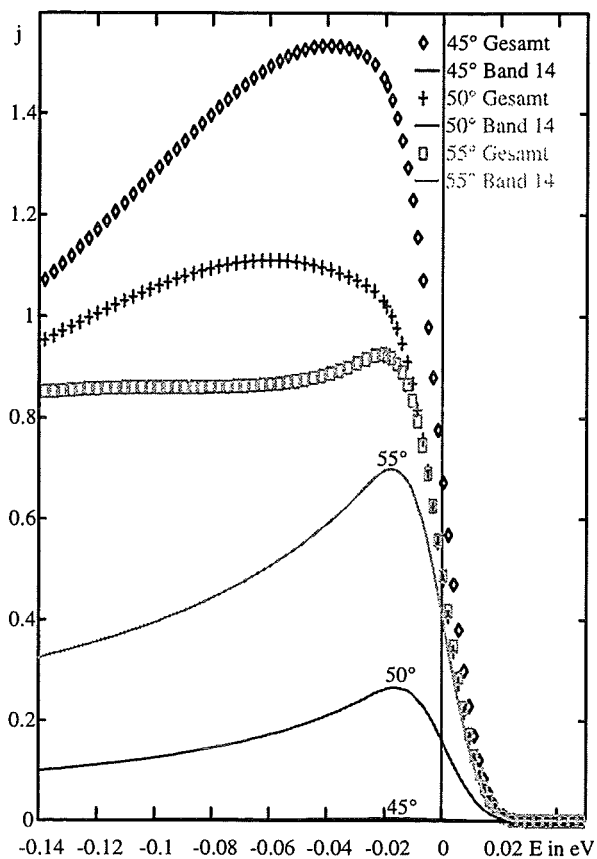


Abb. 6.4.40: 3 Wege durch die B-Zone (16,0°-Kurven)

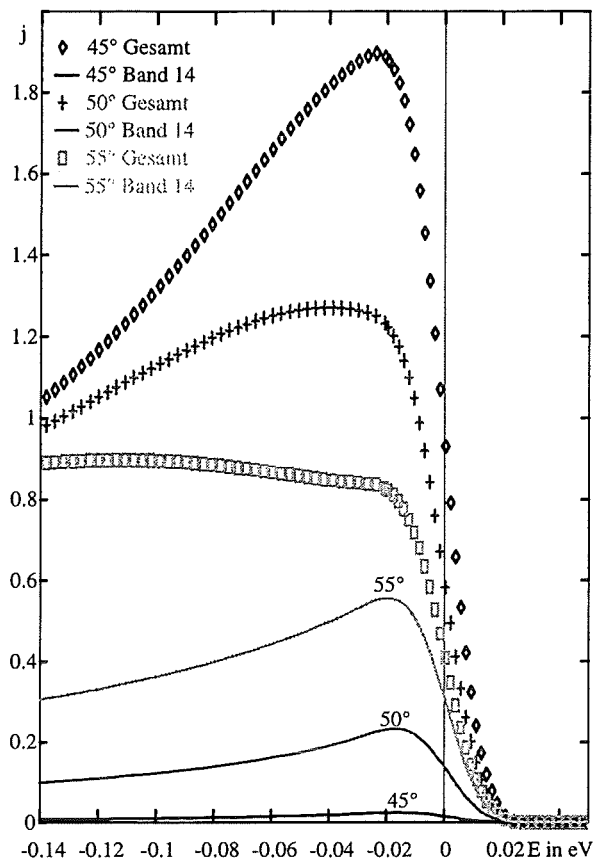


Abb. 6.4.41: 3 Wege durch die B-Zone (16,7°-Kurven)

In den Abbildungen 6.4.36 -6.4.41 haben wir für die 3 Wege (45°, 50°, 55°) durch die B-Zone jeweils die gesamte ARUPS-Kurve (Summe über alle Bänder) und den Anteil von Band 14 eingezeichnet. Nun vergleichen wir jeweils den Bandanteil 14 mit der Gesamtkurve:

- Weg 45°: Band 14 verschwindet in der Gegend um 15,4° durch destruktive Interferenz.
- Weg 50°: Die Amplitude von Band 14 wird in der Gegend um 15,4° auf ungefähr 30% der Gesamtkurve runtergedrückt, ist also deutlich höher als bei dem 45°-Weg.
- Weg 55°: Band 14 zeigt das normale Verhalten eines die Fermioberfläche kreuzenden Bandes, die destruktive Interferenz ist also verschwunden.

Die Rechnungen bestätigen also die groben Meßdaten aus Abb. 6.4.34 über den Verlauf der Amplitude von Band 14.

§7 Zusammenfassung der Ergebnisse

Allgemeines zu ARUPS-Messungen:

- Die Struktur von ARUPS-Messungen mit großem Energiebereich wird durch Interferenz von atomaren Beiträgen festgelegt.

$$\bar{j} \propto \left| \sum_{\text{Atome}} \text{Atombeiträge} \cdot \text{Phasenfaktor} \right|^2 = \left| \sum_{\kappa, j'} \alpha_{\kappa, j'} e^{-i(\bar{R}_j + \bar{\kappa}) \cdot \bar{k}_{el}} \right|^2 \quad (62)$$

κ = Atomindex innerhalb einer Schicht

j' = Schichtindex

\bar{R}_j = Ortsvektor der Schicht j'

$\bar{\kappa}$ = Ortsvektor der Atome κ innerhalb einer Schicht

$\hbar \bar{k}_{el}$ = Photoelektronenimpuls

Jedes Atom absorbiert Photonen und gibt dadurch Photoelektronen ab, die sich zum Photostrom überlagern. Unterschiedliche Photonenenergien erzeugen unterschiedlich große Photoelektronenimpulse $\hbar \bar{k}_{el}$, unterschiedliche Phasenfaktoren (Gleichung 62) und damit unterschiedliche Interferenzkurven.

- ARUPS liefert nur sehr geringe Informationen über die Zustandsdichte, auch nicht für lokale Bereiche in der B-Zone.

- Die besetzte Zustandsdichte legt den Energiebereich der ARUPS-Meßkurven fest.

- ARUPS-Kurven sind aufgrund der geringen freien Weglänge der Photoelektronen im Festkörper $\lambda \approx 5-15 \text{ \AA}$ stark oberflächenempfindlich.

- Eine Spaltung des Kristalls erzeugt zwei eventuell verschiedene Oberflächen und damit sind eventuell zwei verschiedene ARUPS-Meßkurven möglich.

- Der Untergrund im linken Teil der ARUPS-Kurven ist durch Elektronen-Loch-Paar-Erzeugung verursacht.

- Aus den ARUPS-Messungen im Energiebereich um die Fermienergie kann die Banddispersion $E(q_x, q_y, \lambda)$ und die Fermioberfläche im Schnitt der Brillouin-Zone mit der q_x, q_y -Ebene ermittelt werden. Bei der Fixierung der Fermioberfläche empfehlen wir die Anwendung folgender Kriterien:

A: Die Amplitude eines Bandes fällt stark ab, wenn es die Fermioberfläche überquert.

B: Der Quotient $\frac{\text{Wert bei } E = E_F}{\text{Bandamplitude}}$ nimmt bis zu Fermifläche zu, ist dort maximal

und fällt danach langsam ab.

C: Die Amplitude eines Bandes ist bereits **vor** dem Erreichen der Fermioberfläche maximal.

- Auch im Bereich der Fermienergie kann ein Band durch destruktive Interferenz eine so kleine Amplitude erhalten, so daß es in den Meßkurven nicht zu erkennen ist, bzw. verschwindet.
- Aus ARUPS-Normalmessungen (Variable Photonenenergie) mit breitem Energiebereich (einige eV) kann durch das Verfolgen von Peaks **keine** Banddispersion ermittelt werden, denn die Bandzusammensetzung der Peaks kann wechseln.
- ARUPS-Meßkurven sind außer in einem sehr kleinen Bereich um die Fermienergie (ca. 0,2eV) durch die komplexe Selbstenergie stark verschmiert und energetisch auf der x-Achse leicht verschoben.
- Die Meßkurven hängen von der Richtung des eingestrahnten Lichts nur sehr schwach ab.

Allgemeines zur selbstenergiekorrigierten ARUPS-Rechnung (SEKAR):

- Zum Berechnen von ARUPS-Kurven ist eine selbstenergiekorrigierte Vielschichtrechnung unbedingt notwendig. Gleichzeitig stimmen die Ergebnisse einer solchen Rechnung so gut mit den Messungen überein, daß alle Fragen bezüglich den ARUPS-Kurven beantwortet werden können. Aufwendigere Rechnungen, z. B. Rechnungen unter Berücksichtigung von oberflächennahen Zuständen, sind für das Verständnis der ARUPS-Kurven nicht notwendig.
- SEKAR benötigt folgende Eingabedaten:
 - A: Bandstrukturergebnisse des jeweiligen Materials
 - B: Freie Weglänge λ der Photoelektronen
 - C: Daten der Messung (Energieauflösung des Detektors, usw.)
 - D: Komplexe Selbstenergie $\Sigma_{\vec{q},\lambda}(\omega)$
- Die Rechnung basiert auf Keldysh-Diagrammen und ist eine einheitliche Rechnung für den Gesamtprozeß, also exakter als das 3-Stufen-Modell.
- SEKAR berücksichtigt folgende Punkte:
 - A: Die Verschmierung und Verschiebung der Kurven durch die komplexe Selbstenergie.
 - B: Die Oberfläche des Festkörpers (Lage der Oberfläche in der Elementarzelle, 2 mögliche Oberflächen bei einer Spaltung, Gewichtung der Photoströme aus den einzelnen Schichten und Atompositionen durch die freie Weglänge λ , Festkörperpotential bis zur Oberfläche).
- SEKAR hat noch folgende Näherungen:
 - A: Die Greensche Funktion in Oberflächennähe ist identisch mit der Greenschen Funktion im Bulk.
 - B: Die Oberfläche hat weder Verunreinigungen noch Versetzungslinien.
 - C: Die Näherung für die komplexen Selbstenergie (Eingabedaten) ist sehr grob und beinhaltet einen freien Multiplikationsfaktor. Dieser wird der Verschmierung einer einzigen Meßkurve angepaßt.
- Die selbstenergiekorrigierten ARUPS-Rechnungen (Gleichung 60+61) beschreiben die Messungen ausgezeichnet.

Speziell für $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$:

- In der Umgebung der Fermienergie hat die Zustandsdichte folgende Zusammensetzung: CuE d 42,7%, CuK d 18,8%, O p 30,0%, Rest 8,5%
- Die mit der LMTO+SIC-Methode berechneten Fermioberflächen stimmen mit den Messungen für die beiden Bänder 34 und 35 gut überein, während sich für Band 36 erhebliche Abweichungen ergeben.
- Die Bandstruktur hat fast keine Dispersion in z-Richtung.
- Die ARUPS-Rechnung mit LMTO+SIC-Eingabedaten stimmt besser mit den Messungen überein als die ARUPS-Rechnung mit den LMTO-Eingabedaten. Von ARUPS aus betrachtet beschreibt die LMTO+SIC-Methode das Material $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ besser als die LMTO-Methode.
- Messung von Sakisaka et al.:
 - Der Imaginärteil der Selbstenergie hat den Wert $\text{Im}\Sigma \approx -0,8\text{eV}$.
 - Die Strukturen bestehen aus mehreren Bändern, z.B. der Mittelpeak aus den Bändern $\lambda=22-28$.
 - Es wurde mit Probe B (Die Atome der Kupferebene bilden die Oberfläche) gemessen.
- Messung von Tobin et al.:
 - Der Imaginärteil der Selbstenergie hat den Wert $\text{Im}\Sigma = -0,7\text{eV}$.
 - Der Peak bei ca. $E = -1\text{eV}$ setzt sich aus Bulkbandern zusammen, es sind also keine speziellen Oberflächenzustände zur Beschreibung dieses Peaks notwendig. Achtung: Der Peak besteht in den 3 Kurven aus unterschiedlichen Bändern!
 - Es wurde mit Probe A (Barium und Apexsauerstoff bilden die Oberfläche) gemessen.
- Messung von Lui et al.:
 - 3 Bänder kreuzen die Fermioberfläche:
 - Band 36 bei $\theta = \varphi = 6^\circ$ mittlere Amplitude
 - Band 35 bei $\theta = \varphi = 8^\circ$ kleine Amplitude
 - Band 34 bei $\theta = \varphi = 9^\circ$ große Amplitude
 - Es wurde mit Probe B (Die Atome der Kupferebene bilden die Oberfläche) gemessen.

Speziell für Sr₂RuO₄:

- In der Umgebung der Fermienergie hat die Zustandsdichte folgende Zusammensetzung: Ru d 71,0%, OE p 17,7%, OA p 4,5%, Rest 6,8%.
- Die mit der LMTO2-Methode berechneten Fermioberflächen stimmen mit den Messungen bei den beiden Bänder 13 und 15 gut und bei Band 14 passabel überein.
- Messungen von Cummins et al.:
 - Der Imaginärteil der Selbstenergie hat den Wert $\text{Im}\Sigma = -0,3\text{eV}$.
 - Das resonanzartige Maximum des Mittelpeaks bei $E_\gamma = 40\text{eV}$ wird durch eine konstruktive Interferenz der Schichtbeiträge verursacht.
 - Die destruktive Interferenz der atomaren Beiträge innerhalb einer Schicht bedingt das Verschwinden des Mittelpeaks bei $E_\gamma = 55\text{eV}$.
 - Die Amplituden des linken und rechten Peaks sind ebenfalls durch Interferenz der Beiträge innerhalb einer Schicht bedingt.
 - Der Bandzusammensetzung des Mittelpeak verändert sich mit unterschiedlicher Photonenenergie.
- Messung von Lu et al.:
 - 3 Bänder kreuzen die Fermioberfläche:
 - Band 15 bei $\theta = \varphi = 14^\circ$ mittlere Amplitude
 - Band 14 bei $\theta = \varphi = 16^\circ$ sehr kleine Amplitude
 - Band 13 bei $\theta = \varphi = 18^\circ$ große Amplitude
 - Die Amplitude von Band 14 ist in der Umgebung von $\theta = \varphi = 16^\circ$ durch destruktive Interferenz der Beiträge innerhalb einer Schicht abgeschwächt. Folgt man Band 14 durch die Brillouin-Zone, so steigt die Bandamplitude von Punkt $\theta = \varphi = 16^\circ$ nach Punkt $(\theta = 13^\circ, \varphi = 20^\circ)$ kontinuierlich auf normales Niveau an.

8. Vergleich mit der Literatur

In der Literatur findet man zahlreiche Photoemissions-Messungen an $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ und fast ebenso häufig Berechnungen der Bandstruktur, Zustandsdichte und Fermifläche. Leider reichen Vergleiche der Messungen mit Zustandsdichten, wie sie z. B. von R. V. Kasowski et al.²³ durchgeführt wurden, nicht aus, um die gemessenen Kurven zu verstehen. Dazu sind komplette Photoemissionsrechnungen notwendig. M. Lindroos und A. Bansil²⁴ drückten es so aus: "It is clear that a satisfactory understanding of the ARPES experiments requires direct comparisons between the measured intensities and the corresponding theoretical predictions." Leider führen unserer Kenntnis nach nur M. Lindroos und A. Bansil ausreichend genaue Photoemissionsrechnungen durch. Dabei arbeiten sie eng mit den Physikern J. C. Campuzano, R. Lui, K. Gofron, H. Ding und B. W. Veal, die die Messungen durchführen, zusammen. Das Ergebnis dieser Zusammenarbeit ist eine Reihe von Veröffentlichungen²⁵⁻³², die nicht nur die gemessenen Kurven in ihrem Aussehen beschreiben, sondern auch eine ausführliche Analyse der Messungen enthalten. Im folgendem vergleichen wir ihre Arbeiten mit unserer Arbeit:

Formalismus:

M. Lindroos und A. Bansil verwenden einen Einstufenformalismus, welcher auf Arbeiten von Caroli et al.¹⁰ und Pendry³³ basiert.

$$j = -\frac{1}{\pi} \text{Im} \langle \bar{k}_{\parallel} | G_2^+(\omega) \Delta G_1^+(\omega - \Omega) \Delta^+ G_2^-(\omega) | \bar{k}_{\parallel} \rangle$$

j = Photostrom

\bar{k}_{\parallel} = Emissionsrichtung der Photoelektronen

ω = Energie der Photoelektronen

Ω = Photonenenergie

Δ = Photonenfeldoperator

G = Einteilchen-Greenfunktion

Diese Gleichung entspricht Gleichung 38 in unserer Arbeit.

Die innere Greenfunktion $G_1^+(\omega - \Omega)$ wird bei Lindroos und Bansil vollständig durch einen Streuformalismus³³ berechnet, wohingegen wir diese Greensche Funktion durch Blochwellenfunktionen ausdrücken. Als Eingabedaten verwenden die genannten Autoren muffin-tin-Potentiale, berechnet durch Anwendung der KKR-Bandstrukturmethode. Wir verwenden Blochkoeffizienten, Radialwellenfunktionen und Energiewerte aus LMTO-Bandstrukturrechnungen. Vielteilcheneffekte berücksichtigen sie, ebenso wie wir, durch das Einführen von Parametern. So wird die freie Weglänge der Photoelektronen und der Imaginärteil der Selbstenergie des inneren Propagators dadurch berücksichtigt, daß ihr Festkörperpotential komplexe Anteile erhält. Bei uns geht der

Imaginärteil der Selbstenergie direkt in die Formeln für die Greensche Funktionen ein und die freie Weglänge bewirkt komplexe Wellenzahlen der Photoelektronen.

Ergebnisse:

- Die von²⁸⁻³¹ errechneten Photoströme stimmen mit den Messungen ähnlich gut überein wie unsere Rechnungen.
- Die Verbreiterung ihrer Meßkurven ist durch den Imaginärteil der Selbstenergie der inneren Greenfunktion verursacht³¹. Im Σ variiert von 0,1eV an der Fermienergie bis zu ungefähr 1,0eV bei einer Energie von 3eV unter der Fermienergie. Dies ist mit unseren Resultaten konform.
- Die von²⁸⁻³¹ errechneten Kurven sind um +0,15eV auf der Energieachse verschoben, was einem Realteil der Selbstenergie von +0,15eV entspricht. Diese Verschiebung ist ähnlich klein wie die in der vorliegenden Arbeit für die Messung von Tobin et al. erforderliche.
- Die Rechnungen²⁹ zeigen, wie unsere Untersuchungen auch, daß sich die beste Übereinstimmung mit dem Experiment ergibt, wenn man als oberste Atomlage der YBa₂Cu₃O₇-Probe Ba- und Apexsauerstoff-Atome annimmt. Im Gegensatz zu unseren Rechnungen verbleiben bei ihnen aber noch 2 Möglichkeiten für die Atome der nächsten Lage, nämlich die Kupferebene oder die Kupferkette. Unsere Rechnung klärt diesen offenen Punkt zugunsten der Kupferkette.
- Die Rechnungen von Lindroos und Bansil sind, im Gegensatz zu unserer Theorie, nicht in der Lage aus den ARUPS-Kurven den Verlauf von Bändern zu erschließen, da sie mit dem T-Matrix Streufomalismus arbeiten.

Fazit:

Zur Auswertung von ARUPS-Messungen sind vollständige ARUPS-Rechnungen erforderlich. Diese Rechnungen sind zu aufwendig, um nebenbei von den Experimentatoren durchgeführt zu werden. Darum gehört zu jeder ARUPS-Gruppe eine Theoriegruppe, die in enger Zusammenarbeit mit ihr die Analyse der ARUPS-Kurven durchführt. Nur dadurch ist ein möglichst vollständiges Verständnis der Meßergebnisse gewährleistet.

Anhang1: Eigenschaften der zeitabhängigen Greenschen Funktionen

Im §4.2 benötigen wir zwei wichtige Eigenschaften der zeitabhängigen Greenschen Funktionen $G^{+-}(t)$ und $G^{-+}(t)$ für $T=0$:

- Im Festkörper gilt $E \leq E_F$ und $G^{+-}(t) = 0$
- Außerhalb des Festkörpers gilt $E \geq E_F$ und $G^{-+}(t) = 0$

Im folgenden leiten wir einige Beziehungen für diese Funktionen ab:

Ausgehend von den Greenschen Funktionen G^R , G^A , G^{+-} und G^{-+} (Gleichungen 25-28)

$$G^R = \Theta(t'-t)(G^{-+} - G^{+-}) = \Theta(t'-t)(i\langle \Psi_0^+(\vec{r}'t')\Psi_0(\vec{r}t) \rangle_0 + i\langle \Psi_0(\vec{r}t)\Psi_0^+(\vec{r}'t') \rangle_0)$$

$$G^A = -\Theta(t-t')(G^{-+} - G^{+-}) = -\Theta(t-t')(i\langle \Psi_0^+(\vec{r}'t')\Psi_0(\vec{r}t) \rangle_0 + i\langle \Psi_0(\vec{r}t)\Psi_0^+(\vec{r}'t') \rangle_0)$$

$$G^{-+} = i\langle \Psi_0^+(\vec{r}'t')\Psi_0(\vec{r}t) \rangle_0$$

$$G^{+-} = -i\langle \Psi_0(\vec{r}t)\Psi_0^+(\vec{r}'t') \rangle_0$$

verwenden wir die Lehmann-Darstellung (Spektraldarstellung) dieser Greenschen Funktionen G^R , G^A , G^{+-} und G^{-+}

$$G^R = i\Theta(\hat{t})\frac{1}{z}\sum_n e^{-\beta E_n} \left\{ \langle n|\Psi^+(t')\Psi(t)|n\rangle e^{iE_{nn}t} + \langle n|\Psi(t)\Psi^+(t')|n\rangle e^{iE_{nn}t} \right\}$$

$$G^A = -i\Theta(-\hat{t})\frac{1}{z}\sum_n e^{-\beta E_n} \left\{ \langle n|\Psi^+(t')\Psi(t)|n\rangle e^{iE_{nn}t} + \langle n|\Psi(t)\Psi^+(t')|n\rangle e^{iE_{nn}t} \right\}$$

$$G^{-+} = \frac{i}{z}\sum_n e^{-\beta E_n} \langle n|\langle \Psi^+(t')\Psi(t), \rangle|n\rangle e^{iE_{nn}t}$$

$$G^{+-} = \frac{-i}{z}\sum_n e^{-\beta E_n} \langle n|\langle \Psi(t), \Psi^+(t') \rangle|n\rangle e^{iE_{nn}t}$$

hierin sind

$\hat{t} = t' - t$
 $|n\rangle$ und E_n sind Eigenzustände und Eigenwerte des vollständigen Gleichgewichtshamiltonoperators

$$z = \sum_n e^{-\beta E_n}$$

Nun nutzen wir die Vollständigkeitsrelation $1 = \sum_m |m\rangle\langle m|$, fourierintegrieren über die

Zeit

$$G(\omega) = \int_{-\infty}^{\infty} e^{i(\omega-\eta)t} G(t) dt$$

und erhalten so die Greensche Funktionen in der Energiedarstellung:

$$G^R(\omega) = \frac{1}{z}\sum_{n,m} e^{-\beta E_n} \left\{ \frac{1}{\omega + i\eta + E_{nn}} \langle n|\Psi^+(t)|m\rangle\langle m|\Psi(t')|n\rangle + \frac{1}{\omega + i\eta + E_{mm}} \langle n|\Psi(t)|m\rangle\langle m|\Psi^+(t')|n\rangle \right\}$$

$$G^A(\omega) = \frac{1}{z} \sum_{n,m} e^{-\beta E_n} \left\{ \frac{1}{\omega - i\eta + E_{mn}} \langle n | \Psi^+(t) | m \rangle \langle m | \Psi(t') | n \rangle + \frac{1}{\omega - i\eta + E_{nm}} \langle n | \Psi(t) | m \rangle \langle m | \Psi^+(t') | n \rangle \right\}$$

$$G^{-+}(\omega) = \frac{2i\pi}{z} \sum_{n,m} e^{-\beta E_n} \langle n | \Psi^+(t) | m \rangle \langle m | \Psi(t') | n \rangle \delta(\omega + E_{mn})$$

$$G^{+-}(\omega) = \frac{-2i\pi}{z} \sum_{n,m} e^{-\beta E_n} \langle n | \Psi(t) | m \rangle \langle m | \Psi^+(t') | n \rangle \delta(\omega + E_{nm})$$

Nun versuchen wir G^{-+} und G^{+-} durch G^R und G^A auszudrücken. Dazu berechnen wir den Ausdruck $\frac{i}{2\pi} (G^R(\omega) - G^A(\omega))$:

$$\frac{i}{2\pi} (G^R(\omega) - G^A(\omega)) = \frac{i}{2\pi} \frac{1}{z} \sum_{n,m} e^{-\beta E_n} \left(\left(\frac{1}{\omega + i\eta + E_{mn}} - \frac{1}{\omega - i\eta + E_{mn}} \right) \langle n | \Psi^+(t) | m \rangle \langle m | \Psi(t') | n \rangle + \left(\frac{1}{\omega + i\eta + E_{nm}} - \frac{1}{\omega - i\eta + E_{nm}} \right) \langle n | \Psi(t) | m \rangle \langle m | \Psi^+(t') | n \rangle \right)$$

wobei $\frac{i}{2\pi} \left(\frac{1}{\omega + i\eta + E_{\alpha\beta}} - \frac{1}{\omega - i\eta + E_{\alpha\beta}} \right) = \delta(\omega + E_{\alpha\beta})$ den Ausdruck verkürzt:

$$\frac{i}{2\pi} (G^R(\omega) - G^A(\omega)) = \frac{1}{z} \sum_{n,m} e^{-\beta E_n} \left(\langle n | \Psi^+(t) | m \rangle \langle m | \Psi(t') | n \rangle \delta(\omega + E_{mn}) + \langle n | \Psi(t) | m \rangle \langle m | \Psi^+(t') | n \rangle \delta(\omega + E_{nm}) \right) \quad (\alpha)$$

Nun benennen im ersten Term $n \leftrightarrow m$ um und klammern $\langle n | \Psi | m \rangle \langle m | \Psi^+ | n \rangle$ aus:

$$\frac{i}{2\pi} (G^R(\omega) - G^A(\omega)) = \frac{1}{z} \sum_{n,m} \langle n | \Psi | m \rangle \langle m | \Psi^+ | n \rangle \delta(\omega + E_{nm}) (e^{-\beta E_n} + e^{-\beta E_m})$$

Wir erkennen die Greensche Funktion $G^{+-}(\omega)$ und schreiben kurz

$$\frac{i}{2\pi} (G^R(\omega) - G^A(\omega)) = -G^{+-}(\omega) \left(1 + \frac{e^{-\beta E_m}}{e^{-\beta E_n}} \right) \frac{1}{2i\pi}$$

Mit $\beta = 1/kT$ und $f(-\omega)$ als Fermifunktion folgt

$$G^{+-}(\omega) = f(-\omega) (G^R(\omega) - G^A(\omega))$$

und mit $G^R = G^{A*}$

$$\boxed{G^{+-}(\omega) = f(-\omega) 2i \operatorname{Im} G^R(\omega)} \quad (\beta)$$

Durch Umbenennen von $n \leftrightarrow m$ im zweiten Term von Gleichung α erhalten wir

$$\frac{i}{2\pi} (G^R(\omega) - G^A(\omega)) = \frac{1}{z} \sum_{n,m} \langle n | \Psi^+ | m \rangle \langle m | \Psi | n \rangle \delta(\omega + E_{mn}) (e^{-\beta E_n} + e^{-\beta E_m})$$

und erkennen die Greensche Funktion $G^{-+}(\omega)$

$$\frac{i}{2\pi} (G^R(\omega) - G^A(\omega)) = G^{-+}(\omega) \left(1 + \frac{e^{-\beta E_n}}{e^{-\beta E_m}} \right) \frac{1}{2i\pi}$$

Mit $\beta=1/kT$ und $f(\omega)$ als Fermifunktion folgt

$$G^{-+}(\omega) = -f(\omega) (G^R(\omega) - G^A(\omega))$$

$$\boxed{G^{-+}(\omega) = -f(\omega) 2i \operatorname{Im} G^R(\omega)} \quad (\chi)$$

Wir berechnen die zeitabhängige Greensche Funktionen $G^{+-}(t)$ und $G^{-+}(t)$

$$\boxed{G^{+-}(t) = \int_{E_{Photo}} e^{-i\omega t} f(-\omega) \frac{i}{\pi} \operatorname{Im} G^R(\omega) d\omega} \quad (\delta)$$

$$\boxed{G^{-+}(t) = \int_{E_{Photo}} e^{-i\omega t} f(\omega) \frac{-i}{\pi} G^R(\omega) d\omega} \quad (\epsilon)$$

Die Photoelektronenenergie ω erstreckt sich bei ARUPS nicht von $-\infty$ bis $+\infty$.

$$\boxed{\text{Im Festkörper gilt } E \leq E_F \text{ und } G^{+-}(t) = 0 \quad \text{für } T=0}$$

Um den Festkörper verlassen zu können brauchen die Photoelektronen eine Energie größer als E_F .

$$\boxed{\text{Außerhalb des Festkörpers gilt } E \geq E_F \text{ und } G^{-+}(t) = 0 \quad \text{für } T=0}$$

Anhang2: Umwandlung der zeitabhängigen Greenschen Funktionen in energieabhängige Greensche Funktionen

Ausgehend von Gleichung 36

$$\bar{j} = \frac{2e\hbar^2}{m} \lim_{x \rightarrow x' \rightarrow \infty} (\partial_{\bar{x}'} - \partial_{\bar{x}}) \iint d\bar{x}_1 d\bar{x}_2 \int_{-\infty}^{\infty} dt_1 \int_{-\infty}^{\infty} dt_2 G^R(\bar{x}, \bar{x}_1, t, t_1) \bar{A}(\bar{x}_1, t_1) \bar{\nabla}_1 G^{-+}(\bar{x}_1, \bar{x}_2, t_1, t_2) \bar{A}(\bar{x}_2, t_2) \bar{\nabla}_2 G^A(\bar{x}_2, \bar{x}', t_2, t) \quad (36)$$

und der Bedingung $G(t, t') = G(t-t')$ wandeln wir durch Fourierintegration die zeitabhängigen Greenschen Funktionen in energieabhängige Greensche Funktionen um:

$$\text{Fourierintegral} \quad \boxed{G(t) = \int \frac{d\omega}{2\pi} e^{-i\omega t} G(\omega)} \quad (37)$$

$$\bar{j} = \frac{2e\hbar^2}{m} \lim_{x \rightarrow x' \rightarrow \infty} (\partial_{\bar{x}'} - \partial_{\bar{x}}) \iint d\bar{x}_1 d\bar{x}_2 \int_{-\infty}^{\infty} dt_1 \int_{-\infty}^{\infty} dt_2 \int \frac{d\omega}{2\pi} e^{-i\omega(t-t_1)} G^R(\bar{x}, \bar{x}_1, \omega) a\bar{\epsilon} e^{i(\bar{k}_\gamma \bar{x}_1 - \omega_\gamma t_1)} \bar{\nabla}_1 \int \frac{d\tilde{\omega}}{2\pi} e^{-i\tilde{\omega}(t_1-t_2)} G^{-+}(\bar{x}_1, \bar{x}_2, \tilde{\omega}) a\bar{\epsilon} e^{-i(\bar{k}_\gamma \bar{x}_2 - \omega_\gamma t_2)} \bar{\nabla}_2 \int \frac{d\hat{\omega}}{2\pi} e^{-i\hat{\omega}(t_2-t)} G^A(\bar{x}_2, \bar{x}', \hat{\omega})$$

\bar{k}_γ , ω_γ und ϵ sind Wellenzahl, Energie und Polarisationsvektor des eingestrahlenen Photons.

Mit der Deltafunktion $\int \frac{dt}{2\pi} e^{-i(\omega-\tilde{\omega})t} = \delta(\omega-\tilde{\omega})$ fallen die Zeitintegrale weg

$$\bar{j} = \frac{2e\hbar^2}{m} \lim_{x \rightarrow x' \rightarrow \infty} (\partial_{\bar{x}'} - \partial_{\bar{x}}) \iint d\bar{x}_1 d\bar{x}_2 \int \frac{d\omega}{2\pi} G^R(\bar{x}, \bar{x}_1, \omega) a\bar{\epsilon} e^{i\bar{k}_\gamma \bar{x}_1} \bar{\nabla}_1 \int d\tilde{\omega} G^{-+}(\bar{x}_1, \bar{x}_2, \tilde{\omega}) a\bar{\epsilon} e^{-i\bar{k}_\gamma \bar{x}_2} \bar{\nabla}_2 \int d\hat{\omega} G^A(\bar{x}_2, \bar{x}', \hat{\omega}) \delta(\omega_\gamma + \tilde{\omega} - \omega) \delta(\hat{\omega} - \omega_\gamma - \omega)$$

Die beiden ω -Integrale ausrechnen liefert

$$\boxed{\bar{j} = \frac{2e\hbar^2}{m} \lim_{x \rightarrow x' \rightarrow \infty} (\partial_{\bar{x}'} - \partial_{\bar{x}}) \iint d\bar{x}_1 d\bar{x}_2 \int \frac{d\omega}{2\pi} G^R(\bar{x}, \bar{x}_1, \omega) a\bar{\epsilon} e^{i\bar{k}_\gamma \bar{x}_1} \bar{\nabla}_1 G^{-+}(\bar{x}_1, \bar{x}_2, \omega - \omega_\gamma) a\bar{\epsilon} e^{-i\bar{k}_\gamma \bar{x}_2} \bar{\nabla}_2 G^A(\bar{x}_2, \bar{x}', \omega)} \quad (38)$$

Anhang 3: Ausführliche Herleitung der BAR-Formel

Der Photostrom in Gleichung 38 ist eine reelle Größe, darum erscheint es sinnvoll diese Gleichung zum Symmetrischen hin umzuformen.

Betrachten wir zunächst die Ortsabhängigkeit von \bar{x}_2

$$\int d\bar{x}_2 G^{-+}(\bar{x}_1, \bar{x}_2, \omega - \omega_\gamma) a\bar{e}e^{-i\bar{k}_\gamma \bar{x}_2} \bar{\nabla}_2 G^A(\bar{x}_2, \bar{x}', \omega)$$

und schreiben mit der Produktableitungsregel $ab'=(ab)'-a'b$ um

$$= \int d\bar{x}_2 a\bar{e}e^{-i\bar{k}_\gamma \bar{x}_2} \bar{\nabla}_2 (G^{-+}(\bar{x}_1, \bar{x}_2, \omega - \omega_\gamma) G^A(\bar{x}_2, \bar{x}', \omega)) - \int d\bar{x}_2 a\bar{e}e^{-i\bar{k}_\gamma \bar{x}_2} (\bar{\nabla}_2 G^{-+}(\bar{x}_1, \bar{x}_2, \omega - \omega_\gamma)) G^A(\bar{x}_2, \bar{x}', \omega)$$

Der Satz von Gauß $\iiint dV \bar{\nabla} Y = \oint d\bar{A} Y$ auf den ersten Summanden angewendet ergibt ein Oberflächenintegral mit dem Wert im Unendlichen gleich Null.

Damit ergibt sich die symmetrische Formulierung

$$\bar{j} = \frac{2e\hbar^2}{m} \lim_{x \rightarrow x' \rightarrow \infty} (\partial_{\bar{x}'} - \partial_{\bar{x}}) \iint d\bar{x}_1 d\bar{x}_2 \int \frac{d\omega}{2\pi} G^R(\bar{x}, \bar{x}_1, \omega) a e^{i\bar{k}_\gamma \bar{x}_1} a e^{-i\bar{k}_\gamma \bar{x}_2} G^A(\bar{x}_2, \bar{x}', \omega) \bar{e} \bar{\nabla}_1 \bar{e} \bar{\nabla}_2 G^{-+}(\bar{x}_1, \bar{x}_2, \omega - \omega_\gamma) \quad (39)$$

Als nächstes wenden wir uns G^R und G^A zu. P. J. Feibelman und D. E. Eastman geben in ihrer Veröffentlichung¹¹ unter Berücksichtigung des Festkörperpotentials Ausdrücke für G^R und G^A an. Wir verwenden diese beiden Ausdrücke zunächst ohne Festkörperpotential:

$$G^R = -\frac{1}{4\pi} \frac{e^{ik|\bar{x}-\bar{x}_1|}}{|\bar{x}-\bar{x}_1|} \quad \text{und} \quad G^A = -\frac{1}{4\pi} \frac{e^{-ik|\bar{x}'-\bar{x}_2|}}{|\bar{x}'-\bar{x}_2|} \quad \text{mit } k^2=\omega \text{ Lösung für Potential=konst}$$

Näherung: Die Photoelektronen spüren kein Festkörperpotential.

Da nur diese beiden Terme von \bar{x} und \bar{x}' abhängen, können wir nun leicht $(\partial_{\bar{x}'} - \partial_{\bar{x}})$ berechnen

$$\partial_{\bar{x}} G^R(\bar{x}, \bar{x}_1, \omega) = -\frac{1}{4\pi} \frac{e^{ik|\bar{x}-\bar{x}_1|}}{|\bar{x}-\bar{x}_1|^2} (\bar{x} - \bar{x}_1) \left(ik - \frac{1}{|\bar{x}-\bar{x}_1|} \right) = G^R(\bar{x}, \bar{x}_1, \omega) (\bar{x} - \bar{x}_1)^0 \left(ik - \frac{1}{|\bar{x}-\bar{x}_1|} \right)$$

$$\partial_{\bar{x}'} G^A(\bar{x}_2, \bar{x}', \omega) = -\frac{1}{4\pi} \frac{e^{-ik|\bar{x}'-\bar{x}_2|}}{|\bar{x}'-\bar{x}_2|^2} (\bar{x}' - \bar{x}_2) \left(-ik - \frac{1}{|\bar{x}'-\bar{x}_2|} \right) = G^A(\bar{x}_2, \bar{x}', \omega) (\bar{x}' - \bar{x}_2)^0 \left(-ik - \frac{1}{|\bar{x}'-\bar{x}_2|} \right)$$

Schreibweise: \bar{V}^0 bedeutet $\frac{\bar{V}}{|\bar{V}|}$

und den Grenzübergang $\lim_{x \rightarrow x' \rightarrow \infty}$ ausführen:

$$\bar{j} = \frac{2e\hbar^2}{m} \lim_{x \rightarrow x' \rightarrow \infty} \iint d\bar{x}_1 d\bar{x}_2 \int \frac{d\omega}{2\pi} \\ (G^R(\bar{x}, \bar{x}_1, \omega) a e^{i\bar{k}_\gamma \bar{x}_1} a e^{-i\bar{k}_\gamma \bar{x}_2} G^A(\bar{x}_2, \bar{x}', \omega) (\bar{x}' - \bar{x}_2)^0 \left(-ik - \frac{1}{|\bar{x}' - \bar{x}_2|} \right) \bar{\epsilon} \bar{V}_1 \bar{\epsilon} \bar{V}_2 G^{-+}(\bar{x}_1, \bar{x}_2, \omega - \omega_\gamma) - \\ G^R(\bar{x}, \bar{x}_1, \omega) (\bar{x} - \bar{x}_1)^0 \left(ik - \frac{1}{|\bar{x} - \bar{x}_1|} \right) a e^{i\bar{k}_\gamma \bar{x}_1} a e^{-i\bar{k}_\gamma \bar{x}_2} G^A(\bar{x}_2, \bar{x}', \omega) \bar{\epsilon} \bar{V}_1 \bar{\epsilon} \bar{V}_2 G^{-+}(\bar{x}_1, \bar{x}_2, \omega - \omega_\gamma))$$

In GR und GA verwenden wir die Entwicklung $|\bar{x} - \bar{x}_1| \approx |\bar{x}| - \bar{x}^0 \bar{x}_1$ bzw. $|\bar{x}' - \bar{x}_2| \approx |\bar{x}'| - \bar{x}'^0 \bar{x}_2$:

$$\bar{j} = \frac{2e\hbar^2}{m} \iint d\bar{x}_1 d\bar{x}_2 \int \frac{d\omega}{2\pi} \\ \left(\frac{-1}{4\pi} \frac{e^{ik(|\bar{x}| - \bar{x}^0 \bar{x}_1)}}{|\bar{x}|} a e^{i\bar{k}_\gamma \bar{x}_1} a e^{-i\bar{k}_\gamma \bar{x}_2} \frac{-1}{4\pi} \frac{e^{-ik(|\bar{x}'| - \bar{x}'^0 \bar{x}_2)}}{|\bar{x}'|} (\bar{x})^0 (-) ik \bar{\epsilon} \bar{V}_1 \bar{\epsilon} \bar{V}_2 G^{-+}(\bar{x}_1, \bar{x}_2, \omega - \omega_\gamma) - \right. \\ \left. \frac{-1}{4\pi} \frac{e^{ik(|\bar{x}| - \bar{x}^0 \bar{x}_1)}}{|\bar{x}|} (\bar{x})^0 ik a e^{i\bar{k}_\gamma \bar{x}_1} a e^{-i\bar{k}_\gamma \bar{x}_2} \frac{-1}{4\pi} \frac{e^{-ik(|\bar{x}'| - \bar{x}'^0 \bar{x}_2)}}{|\bar{x}'|} \bar{\epsilon} \bar{V}_1 \bar{\epsilon} \bar{V}_2 G^{-+}(\bar{x}_1, \bar{x}_2, \omega - \omega_\gamma) \right)$$

und fassen zusammen:

$$\bar{j} = \frac{2e\hbar^2 a^2}{16m\pi^2} \frac{\bar{x}^0}{|\bar{x}|^2} \iint d\bar{x}_1 d\bar{x}_2 \int \frac{d\omega}{2\pi} (-) 2ike^{ik(\bar{x}^0 \bar{x}_2 - \bar{x}^0 \bar{x}_1)} e^{i\bar{k}_\gamma \bar{x}_1} e^{-i\bar{k}_\gamma \bar{x}_2} \bar{\epsilon} \bar{V}_1 \bar{\epsilon} \bar{V}_2 G^{-+}(\bar{x}_1, \bar{x}_2, \omega - \omega_\gamma)$$

$$\bar{j} \propto ik^0 \iint d\bar{x}_1 d\bar{x}_2 \int d\omega \sqrt{\omega} e^{i\bar{k}(\bar{x}_2 - \bar{x}_1)} e^{i\bar{k}_\gamma(\bar{x}_1 - \bar{x}_2)} \bar{\epsilon} \bar{V}_1 \bar{\epsilon} \bar{V}_2 G^{-+}(\bar{x}_1, \bar{x}_2, \omega - \omega_\gamma) \quad (40)$$

Die Greensche Funktion G^{-+} ist gegeben durch

$$G^{-+}(\bar{x}_1, \bar{x}_2, \omega - \omega_\gamma) = -2i \text{Im} G^R(\bar{x}_1, \bar{x}_2, \omega - \omega_\gamma) f(\omega - \omega_\gamma - E_F) \quad (41)$$

wobei $f(\omega - \omega_\gamma - E_F) = \frac{1}{1 + e^{\omega - \omega_\gamma - E_F}}$ die Fermifunktion ist.

In den Veröffentlichungen ist der Abstand Probe-Analysator ($|\bar{x}|$) nicht angegeben, darum verzichten wir darauf, den Photostrom in absoluten Einheiten anzugeben.

Wir führen lokale Ortskoordinaten ein:

$$\bar{x}_1 = \bar{R}_j + \bar{\kappa}_1 + \bar{\rho}_1 \text{ und } \bar{x}_2 = \bar{R}_{j_2} + \bar{\kappa}_2 + \bar{\rho}_2$$

\bar{R}_j zeigt auf die j-te Elementarzelle

$\bar{\kappa}$ zeigt innerhalb der Elementarzelle auf das Atom κ

$\bar{\rho}$ ist der lokale Ortsvektor innerhalb einer Atomkugel.

In diesen Koordinaten hat der Photostrom folgende Form:

$$\bar{j} \propto \bar{k}^0 \sum_{j_1, j_2, \kappa_1, \kappa_2} \iint d\bar{\rho}_1 d\bar{\rho}_2 \int d\omega \sqrt{\omega} e^{i(\bar{k} - \bar{k}_\gamma)(\bar{R}_{j_2} + \bar{\kappa}_2 + \bar{\rho}_2 - \bar{R}_{j_1} - \bar{\kappa}_1 - \bar{\rho}_1)} \bar{\epsilon} \bar{V}_1 \bar{\epsilon} \bar{V}_2 \text{Im} G^R(j_1, j_2, \kappa_1, \kappa_2, \bar{\rho}_1, \bar{\rho}_2, \omega - \omega_\gamma) f(\omega - \omega_\gamma - E_F) \quad (42)$$

Näherung: Wir setzen den Kristall als periodisch in allen drei Richtungen an, d. h. der Kristall ist unendlich ausgedehnt und hat keine Oberfläche.

Mit der Blochfouriertransformation

$$\text{Im} G_{Bulk}^R(j_1, j_2, \kappa_1, \kappa_2, \bar{\rho}_1, \bar{\rho}_2) = \int e^{-i\bar{q}(\bar{R}_{j_2} - \bar{R}_{j_1})} \text{Im} G_{Bulk, \bar{q}}^R(\kappa_1, \kappa_2, \bar{\rho}_1, \bar{\rho}_2) \frac{d\bar{q}}{Vol_{BZ}} \quad (43)$$

reduzieren wir das Volumenintegral auf eine Elementarzelle.

In dieser Form kann $\text{Im} G^R$ in Bandstrukturnäherung durch Blochwellenfunktionen ausgedrückt werden:

$$\text{Im} G_{Bulk, \bar{q}}^R(\kappa_1, \kappa_2, \bar{\rho}_1, \bar{\rho}_2, \omega - \omega_\gamma) = -\pi \sum_{\lambda} \Psi_{\bar{q}, \lambda}(\kappa_1, \bar{\rho}_1) \Psi_{\bar{q}, \lambda}^*(\kappa_2, \bar{\rho}_2) \delta(\omega - \omega_\gamma - E_{\bar{q}, \lambda}) \quad (44)$$

Die Deltafunktion drückt die Energieerhaltung $\omega = E_{\bar{q}, \lambda} + \omega_\gamma$ aus. Ein Festkörperelektron (Impuls $\hbar\bar{q}$, Energie $E_{\bar{q}, \lambda}$ aus dem Band λ) absorbiert ein Photon (Impuls $\hbar\bar{k}_\gamma$, Energie ω_γ) und erhält dadurch die Energie ω und den Impuls $\hbar\bar{k}$.

Einsetzen von (43) und (44) ergibt

$$\bar{j} \propto \bar{k}^0 \sum_{j_1, j_2, \kappa_1, \kappa_2} \iint d\bar{\rho}_1 d\bar{\rho}_2 \int d\omega \sqrt{\omega} e^{i(\bar{k} - \bar{k}_\gamma)(\bar{R}_{j_2} + \bar{\kappa}_2 + \bar{\rho}_2 - \bar{R}_{j_1} - \bar{\kappa}_1 - \bar{\rho}_1)} \bar{\varepsilon} \bar{\nabla}_1 \bar{\varepsilon} \bar{\nabla}_2 \int \frac{d\bar{q}}{Vol_{BZ}} e^{-i\bar{q}(\bar{R}_{j_2} - \bar{R}_{j_1})} \sum_{\lambda} \Psi_{\bar{q}, \lambda}(\kappa_1, \bar{\rho}_1) \Psi_{\bar{q}, \lambda}^*(\kappa_2, \bar{\rho}_2) \delta(\omega - \omega_\gamma - E_{\bar{q}, \lambda}) f(\omega - \omega_\gamma - E_F) \quad (44b)$$

Mit der Deltafunktion

$$\sum_{j_1, j_2} \frac{1}{Vol_{BZ}} e^{i(\bar{k}_\gamma + \bar{q} - \bar{k})(\bar{R}_{j_2} - \bar{R}_{j_1})} = \delta(\bar{k} - \bar{k}_\gamma - \bar{q} - \bar{G}) \quad (45)$$

erhalten wir den Impulserhaltungssatz

$$\hbar \bar{k} = \hbar \bar{q} + \hbar \bar{k}_\gamma + \hbar \bar{G}. \quad \bar{G} \text{ ist ein beliebiger reziproker Gittervektor.}$$

und den Photostrom

$$\bar{j} \propto \bar{k}^0 \sum_{\kappa_1, \kappa_2} \iint d\bar{\rho}_1 d\bar{\rho}_2 \int d\omega \sqrt{\omega} e^{i(\bar{k} - \bar{k}_\gamma)(\bar{\kappa}_2 + \bar{\rho}_2 - \bar{\kappa}_1 - \bar{\rho}_1)} \bar{\varepsilon} \bar{\nabla}_1 \bar{\varepsilon} \bar{\nabla}_2 \int d\bar{q} \sum_{\lambda} \Psi_{\bar{q}, \lambda}(\kappa_1, \bar{\rho}_1) \Psi_{\bar{q}, \lambda}^*(\kappa_2, \bar{\rho}_2) \delta(\omega - \omega_\gamma - E_{\bar{q}, \lambda}) f(\omega - \omega_\gamma - E_F) \delta(\bar{q} + \bar{G} + \bar{k}_\gamma - \bar{k})$$

Nun können wir symmetrisch zum Betragsquadrat zusammenfassen:

$$\bar{j} \propto \bar{k}^0 \int d\omega \sqrt{\omega} \sum_{\lambda} \int d\bar{q} \delta(\omega - \omega_\gamma - E_{\bar{q}, \lambda}) f(\omega - \omega_\gamma - E_F) \delta(\bar{q} + \bar{G} + \bar{k}_\gamma - \bar{k}) \left| \sum_{\kappa} \int d\bar{\rho} e^{-i(\bar{k} - \bar{k}_\gamma)(\bar{\kappa} + \bar{\rho})} \bar{\varepsilon} \bar{\nabla} \Psi_{\bar{q}, \lambda}(\kappa, \bar{\rho}) \right|^2$$

Damit ist die Realwertigkeit des Photostrom deutlich.

Der Elektronenanalysator hat eine endliche Winkelauflösung, es werden also immer Elektronen aus einem Raumwinkelbereich gemessen. Wir tragen diesem Sachverhalt Rechnung, indem wir über den Winkelbereich der Winkelauflösung integrieren $\int d\bar{\Omega}$.

Wir formen die Integrale weiter um.

$$\text{Aus } \omega = k^2 \text{ folgt } d\omega = 2kdk \text{ und } d\bar{k} = k^2 dk d\bar{\Omega} = \frac{1}{2} \sqrt{\omega} d\omega d\bar{\Omega}.$$

Damit ergibt sich der Photostrom zu

$$\bar{j} \propto \bar{k}^0 \int d\bar{k} \sum_{\lambda} \int d\bar{q} \delta(\omega - \omega_\gamma - E_{\bar{q}, \lambda}) f(\omega - \omega_\gamma - E_F) \delta(\bar{q} + \bar{G} + \bar{k}_\gamma - \bar{k}) \left| \sum_{\kappa} \int d\bar{\rho} e^{-i(\bar{k} - \bar{k}_\gamma)(\bar{\kappa} + \bar{\rho})} \bar{\varepsilon} \bar{\nabla} \Psi_{\bar{q}, \lambda}(\kappa, \bar{\rho}) \right|^2$$

Ausführen der \vec{k} -Integration vereinfacht den Term:

$$\bar{j} \propto \bar{k}^0 \sum_{\lambda} \int d\bar{q} \delta(\omega - \omega_{\gamma} - E_{\bar{q},\lambda}) f(\omega - \omega_{\gamma} - E_F) \left| \sum_{\kappa} \int d\bar{\rho} e^{-i(\bar{k}-\bar{k}_{\gamma})(\bar{\kappa}+\bar{\rho})} \bar{\epsilon} \bar{V} \Psi_{\bar{q},\lambda}(\kappa, \bar{\rho}) \right|^2 \text{ mit } \bar{k} = \bar{q} + \bar{k}_{\gamma} + \bar{G} \text{ als Abkürzung (46)}$$

Nun verwenden wir die folgende Darstellung der Blochwellenfunktionen $\Psi_{\mathbf{q},\lambda}$

$$\Psi_{\bar{q},\lambda} = \sum_{l=0}^{l_{\max}} \sum_{m=-l}^l \sum_{\nu=1}^2 c_{lm\kappa\nu}^{\bar{q}\lambda} R_{l\nu}(\rho, \kappa) Y_{lm}(\hat{\rho}) \quad (19)$$

und

$$\bar{V}(R_{l\nu} Y_{lm}) = \hat{\rho} Y_{lm}(\hat{\rho}) \frac{\partial}{\partial \rho} R_{l\nu}(\rho) - \frac{\hat{\rho}}{\rho} l Y_{lm}(\hat{\rho}) R_{l\nu}(\rho) + \sqrt{\frac{4\pi}{3}} \frac{2l+1}{\rho} R_{l\nu}(\rho) \sum_{m'=-l}^{l-1} Y_{l-1,m'}(\hat{\rho}) \begin{pmatrix} G(lm, l-1m', 11) \\ G(lm, l-1m', 1-1) \\ G(lm, l-1m', 10) \end{pmatrix} \quad (47)$$

$$\text{mit } \hat{\rho} = \frac{\bar{\rho}}{\rho} = \sqrt{\frac{4\pi}{3}} \begin{pmatrix} Y_{11} \\ Y_{1-1} \\ Y_{10} \end{pmatrix} \text{ und den Gauntzahlen } G(lm, l' m', l'' m'') = \int d\hat{\rho} Y_{lm} Y_{l' m'} Y_{l'' m''}$$

Außerdem brauchen wir noch die Entwicklung des Phasenfaktors

$$e^{-i\bar{\rho}(\bar{k}-\bar{k}_{\gamma})} = 4\pi \sum_{\bar{l}=0}^{\infty} \sum_{\bar{m}=-\bar{l}}^{\bar{l}} (-i)^{\bar{l}} j_{\bar{l}}(|\bar{k}-\bar{k}_{\gamma}|\rho) Y_{\bar{l}\bar{m}}(\hat{\rho}) Y_{\bar{l}\bar{m}}(|\bar{k}-\bar{k}_{\gamma}|) \quad (48)$$

$$\text{mit } j_{\bar{l}}(|\bar{k}-\bar{k}_{\gamma}|\rho) = \text{sphärische Besselfunktion}$$

$$\text{und die Orthogonalität } \int d\hat{\rho} Y_{lm} Y_{l' m'} = \delta_{ll'} \delta_{mm'} \quad (49)$$

Die Gleichungen (19), (47), (48) und (49) in Gleichung (46) eingesetzt ergeben das Resultat (Gleichung 50 in §4.3).

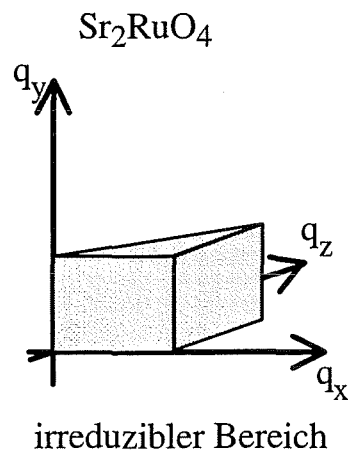
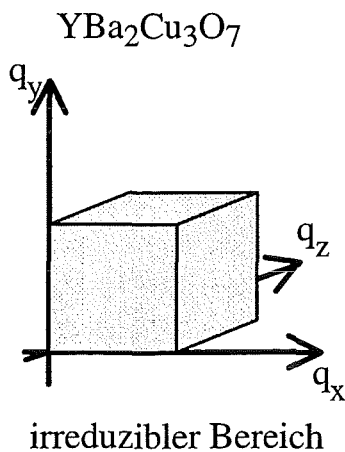
Anhang4: Symmetrioperationen

Die Bandstrukturprogramme liefern Eingabedaten (Blochkoeffizienten, Energiewerte) für die ARUPS-Programme nur im irreduziblen Bereich der Brillouin-Zone. Um die Eingabedaten für die komplette Brillouin-Zone zu erhalten, haben wir bei $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ 7 und bei Sr_2RuO_4 15 Symmetrioperationen verwendet. Im folgenden wollen wir die Eigenschaften der verwendeten Symmetrioperationen angeben.

Die Art und Anzahl der Symmetrioperationen hängt, ebenso wie Form der Brillouin-Zone, wesentlich von der Kristallstruktur des Material ab. Die Symmetrioperationen sind sowohl im Ortsraum, als auch im Impulsraum gültig.

Material	$\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$	Sr_2RuO_4
Kristallstruktur	orthorhombisch	body centered tetragonal
Form der B-Zone	Quader	Quader*
Form des irreduziblen Bereichs	Quader (Hauptquadrant)	Dreiecksprisma (halber Hauptquadrant)
Anzahl der Symmetrioperationen	8	16

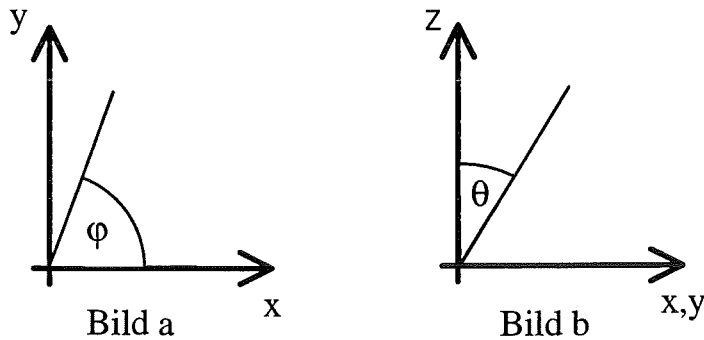
* Die ursprüngliche Form der Brillouin-Zone für Sr_2RuO_4 ist etwas komplizierter (Abb. 6.2.8), kann aber durch Anwendung von Symmetrioperationen auf ein Dreiecksprisma abgebildet werden.



Eine Symmetrieeoperation erklären wir exemplarisch für alle etwas genauer.
Wir verwenden Kugelkoordinaten (r, θ, φ) und die Funktionen

$$Y_l^{m_l} = \begin{cases} \cos(m_l \varphi) & \text{für } m_l \geq 0 \\ \sin(|m_l| \varphi) & \text{für } m_l < 0 \end{cases} \cdot P_l^{|m_l|}(\cos(\theta))$$

$Y_l^{m_l}$ = Reelle Kugelwellenfunktion
 $P_l^{|m_l|}$ = assoziiertes Legendrepolynom



Beispiel: Vertauschen von x mit y ($x, y \rightarrow y, x$):

Bei Sr_2RuO_4 wird das Dreiecksprisma auf die zweite Hälfte des Hauptquadranten abgebildet. Das gelingt durch Vertauschen der Ortskoordinaten x und y .

Folge:

- θ bleibt unverändert (Siehe Bild b)
- φ geht über in $90^\circ - \varphi$ (Siehe Bild a)
- In den Kugelwellenfunktionen erzeugt das veränderte φ einfach ein Minuszeichen vor m_l .
- Die Ebenensauerstoffatome 4 und 5 wechseln ihre Plätze (Siehe Abbildung der Sr_2RuO_4 -Struktur in §6.1)

Die Symmetrieeoperationen für $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$:

(Ohne Einheitsoperation)

Symmetrieeoperation1: Spiegelung an der x - z -Ebene ($y \rightarrow -y$).

Symmetrieeoperation2: Spiegelung an der y - z -Ebene ($x \rightarrow -x$).

Symmetrieeoperation3: Spiegelung an der x - y -Ebene ($z \rightarrow -z$).

Symmetrieeoperation4: Inversion ($x, y, z \rightarrow -x, -y, -z$)

Symmetrieeoperation5: Inversion und Spiegelung an der x - y -Ebene ($x, y \rightarrow -x, -y$)

Symmetrieeoperation6: Inversion und Spiegelung an der x - z -Ebene ($x, z \rightarrow -x, -z$)

Symmetrieeoperation7: Inversion und Spiegelung an der y - z -Ebene ($y, z \rightarrow -y, -z$)

Tabelle für YBa₂Cu₃O₇:

	Symmetrieoperation	$\theta \rightarrow \theta'$	$\varphi \rightarrow \varphi'$	Phasenfaktor	Atomindex $\kappa \rightarrow \kappa'$
1	$y \leftrightarrow -y$	$\theta = \theta'$	$\varphi' = -\varphi$	(-1) bei $m_l < 0$ und $e^{-iq_y R_y}$ bei $\kappa = 1, 2, 7, 9, 10, 11$	-
2	$x \leftrightarrow -x$	$\theta' = \theta$	$\varphi' = \pi - \varphi$	$(-1)^{\frac{2m_l^2 + m_l - m_l}{2 m_l }}$ und $e^{-iq_x R_x}$ bei $\kappa = 3, 4, 8, 9, 10, 11$	-
3	$z \leftrightarrow -z$	$\theta' = \pi - \theta$	$\varphi' = \varphi$	$(-1)^{l+m_l}$ und $e^{-iq_z R_z}$ bei $\kappa = 11$	$1 \leftrightarrow 2, 3 \leftrightarrow 4$ $5 \leftrightarrow 6, 9 \leftrightarrow 10$ $12 \leftrightarrow 13$
4	$x, y, z \leftrightarrow -x, -y, -z$	$\theta' = \pi - \theta$	$\varphi' = \pi + \varphi$	$(-1)^l$ und $e^{-iq_x R_x}$ bei $\kappa = 3, 4, 8, 9, 10, 11$ und $e^{-iq_y R_y}$ bei $\kappa = 1, 2, 7, 9, 10, 11$ und $e^{-iq_z R_z}$ bei $\kappa = 11$	$1 \leftrightarrow 2, 3 \leftrightarrow 4$ $5 \leftrightarrow 6, 9 \leftrightarrow 10$ $12 \leftrightarrow 13$
5	$x, y \leftrightarrow -x, -y$	$\theta' = \theta$	$\varphi' = \pi + \varphi$	$(-1)^{m_l}$ und $e^{-iq_x R_x}$ bei $\kappa = 3, 4, 8, 9, 10, 11$ und $e^{-iq_y R_y}$ bei $\kappa = 1, 2, 7, 9, 10, 11$	-
6	$x, z \leftrightarrow -x, -z$	$\theta' = \pi - \theta$	$\varphi' = \pi - \varphi$	$(-1)^l$ bei $m_l \geq 0$ und $(-1)^{l+1}$ bei $m_l < 0$ und $e^{-iq_x R_x}$ bei $\kappa = 3, 4, 8, 9, 10, 11$ und $e^{-iq_z R_z}$ bei $\kappa = 11$	$1 \leftrightarrow 2, 3 \leftrightarrow 4$ $5 \leftrightarrow 6, 9 \leftrightarrow 10$ $12 \leftrightarrow 13$
7	$y, z \leftrightarrow -y, -z$	$\theta' = \pi - \theta$	$\varphi' = -\varphi$	$(-1)^{l+m_l}$ bei $m_l \geq 0$ und $(-1)^{l+m_l+1}$ bei $m_l < 0$ und $e^{-iq_y R_y}$ bei $\kappa = 1, 2, 7, 9, 10, 11$ und $e^{-iq_z R_z}$ bei $\kappa = 11$	$1 \leftrightarrow 2, 3 \leftrightarrow 4$ $5 \leftrightarrow 6, 9 \leftrightarrow 10$ $12 \leftrightarrow 13$

Bemerkungen zur Tabelle:

Spalte 2: Art der Symmetrieoperation (z. B. $z \leftrightarrow -z$ Spiegelung an der x-y-Ebene)

Spalte 3: Änderung des Winkels θ durch die Symmetrieoperation

Spalte 4: Änderung des Winkels φ durch die Symmetrieoperation

Spalte 5: Die Änderung der Winkel θ und φ in den Kugelwellenfunktionen liefert bei einigen l - m_l -Kombinationen ein Minuszeichen vor dem Blochkoeffizient in den ARUPS-Formeln. Außerdem werden bei manchen Symmetrieoperationen Atome in benachbarte Elementarzellen transportiert, was zusätzliche Phasenfaktoren $e^{-i\vec{q}\vec{R}}$ vor den Blochkoeffizienten in den ARUPS-Formeln bedingt. Die R_x , R_y und R_z sind dabei Gittertranslationsvektoren im Ortsraum.

Spalte 6: Einige Symmetrieoperationen vertauschen Atome in der Elementarzelle

Tabelle für Sr₂RuO₄ :

	Symmetrieoperation	$\theta \rightarrow \theta'$	$\varphi \rightarrow \varphi'$	Phasenfaktor	Atomindex $\kappa \rightarrow \kappa'$
1	$x \leftrightarrow -x$	$\theta' = \theta$	$\varphi' = \pi - \varphi$	$(-1)^{\frac{2m_l^2 + m_l - m_l}{2 m_l }}$ und $e^{-iq_x R_x}$ bei $\kappa=4$	-
2	$y \leftrightarrow -y$	$\theta' = \theta$	$\varphi' = -\varphi$	(-1) bei $m_l < 0$ und $e^{-iq_y R_y}$ bei $\kappa=5$	-
3	$x, y \leftrightarrow -x, -y$	$\theta' = \theta$	$\varphi' = \pi + \varphi$	$(-1)^{m_l}$ und $e^{-iq_x R_x}$ bei $\kappa=4$ und $e^{-iq_y R_y}$ bei $\kappa=5$	-
4	$x \leftrightarrow y$	$\theta' = \theta$	$\varphi' = \pi/2 - \varphi$	$m_l' = -m_l$	$4 \leftrightarrow 5$
5	$x, y \leftrightarrow -y, x$	$\theta' = \theta$	$\varphi' = \varphi - \pi/2$	(-1) bei $m_l > 0$ und $e^{-iq_y R_y}$ bei $\kappa=5$	$4 \leftrightarrow 5$
6	$x, y \leftrightarrow y, -x$	$\theta' = \theta$	$\varphi' = \pi/2 + \varphi$	$(-1)^{\frac{2m_l^2 + m_l + m_l}{2 m_l }}$ und $e^{-iq_x R_x}$ bei $\kappa=4$	$4 \leftrightarrow 5$
7	$x, y \leftrightarrow -y, -x$	$\theta' = \theta$	$\varphi' = -\pi/2 - \varphi$	$(-1)^{-m_l}$ und $e^{-iq_x R_x}$ bei $\kappa=4$ und $e^{-iq_y R_y}$ bei $\kappa=5$	$4 \leftrightarrow 5$
8	$z \leftrightarrow -z$	$\theta' = \pi - \theta$	$\varphi' = \varphi$	$(-1)^{l+m_l}$	$1 \leftrightarrow 2, 6 \leftrightarrow 7$
9	$x, z \leftrightarrow -x, -z$	$\theta' = \pi - \theta$	$\varphi' = \pi - \varphi$	$(-1)^l$ bei $m_l \geq 0$ und $(-1)^{l+1}$ bei $m_l < 0$ und $e^{-iq_x R_x}$ bei $\kappa=4$	$1 \leftrightarrow 2, 6 \leftrightarrow 7$
10	$y, z \leftrightarrow -y, -z$	$\theta' = \pi - \theta$	$\varphi' = -\varphi$	$(-1)^{l+m_l}$ bei $m_l \geq 0$ und $(-1)^{l+m_l+1}$ bei $m_l < 0$ und $e^{-iq_y R_y}$ bei $\kappa=5$	$1 \leftrightarrow 2, 6 \leftrightarrow 7$
11	$x, y, z \leftrightarrow -x, -y, -z$	$\theta' = \pi - \theta$	$\varphi' = \pi + \varphi$	$(-1)^l$ und $e^{-iq_x R_x}$ bei $\kappa=4$ und $e^{-iq_y R_y}$ bei $\kappa=5$	$1 \leftrightarrow 2, 6 \leftrightarrow 7$
12	$x, y, z \leftrightarrow y, x, -z$	$\theta' = \pi - \theta$	$\varphi' = \pi/2 - \varphi$	$(-1)^{l-m_l}$	$1 \leftrightarrow 2, 4 \leftrightarrow 5,$ $6 \leftrightarrow 7$
13	$x, y, z \leftrightarrow -y, x, -z$	$\theta' = \pi - \theta$	$\varphi' = \varphi - \pi/2$	(-1) bei $m_l > 0$ und $(-1)^{l+m_l}$ und $e^{-iq_y R_y}$ bei $\kappa=5$	$1 \leftrightarrow 2, 4 \leftrightarrow 5,$ $6 \leftrightarrow 7$
14	$x, y, z \leftrightarrow y, -x, -z$	$\theta' = \pi - \theta$	$\varphi' = \pi/2 + \varphi$	$(-1)^{\frac{2m_l^2 + m_l + m_l}{2 m_l } + l + m_l}$ und $e^{-iq_x R_x}$ bei $\kappa=4$	$1 \leftrightarrow 2, 4 \leftrightarrow 5,$ $6 \leftrightarrow 7$
15	$x, y, z \leftrightarrow -y, -x, -z$	$\theta' = \pi - \theta$	$\varphi' = -\pi/2 - \varphi$	$(-1)^{+l}$ und $e^{-iq_x R_x}$ bei $\kappa=4$ und $e^{-iq_y R_y}$ bei $\kappa=5$	$1 \leftrightarrow 2, 4 \leftrightarrow 5,$ $6 \leftrightarrow 7$

Anhang5: Ausführliche Herleitung der VAR-Formel

Wir beginnen mit Gleichung 44b

$$\bar{j} \propto \bar{k}^0 \sum_{j_1, j_2, \kappa_1, \kappa_2} \iint d\bar{\rho}_1 d\bar{\rho}_2 \int d\omega \sqrt{\omega} e^{i(\bar{k} - \bar{k}_\gamma)(\bar{R}_{j_2} + \bar{\kappa}_2 + \bar{\rho}_2 - \bar{R}_{j_1} - \bar{\kappa}_1 - \bar{\rho}_1)} \bar{\epsilon} \bar{\nabla}_1 \bar{\epsilon} \bar{\nabla}_2 \int \frac{d\bar{q}}{Vol_{BZ}} e^{-i\bar{q}(\bar{R}_{j_2} - \bar{R}_{j_1})}$$

$$\sum_{\lambda} \Psi_{\bar{q}, \lambda}(\kappa_1, \bar{\rho}_1) \Psi_{\bar{q}, \lambda}^*(\kappa_2, \bar{\rho}_2) \delta(\omega - \omega_\gamma - E_{\bar{q}, \lambda}) f(\omega - \omega_\gamma - E_F)$$

Die Probe ist senkrecht zur Oberfläche nicht mehr periodisch. Darum zerlegen wir die Vektoren in eine Komponente parallel zur Oberfläche (gekennzeichnet mit dem Index ") und eine Komponente senkrecht zur Oberfläche (gekennzeichnet mit '). Damit können wir die folgende Deltafunktion für die Komponente parallel zur Oberfläche aufstellen. Den Index j zerlegen wir ebenfalls in zwei Indizes: j" zählt die Elementarzellen einer Schicht parallel zur Oberfläche durch und j' zählt die Schichten senkrecht zur Oberfläche durch.

$$\sum_{j_1'', j_2''} \frac{1}{F_{xy}} e^{i(\bar{k}_\gamma'' + \bar{q}'' - \bar{k}'')(\bar{R}_{j_2}'' - \bar{R}_{j_1}'')} = \delta(\bar{k}'' - \bar{k}_\gamma'' - \bar{q}'' - \bar{G}'')$$

F_{xy} ist die Fläche des Schnitts der Brillouin-Zone mit der q_x - q_y -Ebene.

Wir erhalten den 2-dimensionalen Impulserhaltungssatz

$$\hbar \bar{k}'' = \hbar \bar{q}'' + \hbar \bar{k}_\gamma'' + \hbar \bar{G}'' \quad (51)$$

und den Photostrom

$$\bar{j} \propto \bar{k}^0 \sum_{j_1', j_2', \kappa_1, \kappa_2} \iint d\bar{\rho}_1 d\bar{\rho}_2 \int d\omega \sqrt{\omega} e^{i(\bar{k} - \bar{k}_\gamma)(\bar{R}'_{j_2} + \bar{\kappa}_2 + \bar{\rho}_2 - \bar{R}'_{j_1} - \bar{\kappa}_1 - \bar{\rho}_1)} \bar{\epsilon} \bar{\nabla}_1 \bar{\epsilon} \bar{\nabla}_2 \int \frac{d\bar{q}}{B_z} e^{-i\bar{q}(\bar{R}'_{j_2} - \bar{R}'_{j_1})}$$

$$\sum_{\lambda} \Psi_{\bar{q}, \lambda}(\kappa_1, \bar{\rho}_1) \Psi_{\bar{q}, \lambda}^*(\kappa_2, \bar{\rho}_2) \delta(\omega - \omega_\gamma - E_{\bar{q}, \lambda}) f(\omega - \omega_\gamma - E_F) \delta(\bar{q}'' + \bar{G}'' + \bar{k}_\gamma'' - \bar{k}'')$$

Nun können wir symmetrisch zum Betragsquadrat zusammenfassen,

$$\bar{j} \propto \bar{k}^0 \int d\omega \sqrt{\omega} \sum_{\lambda} \int \frac{d\bar{q}}{B_z} \delta(\omega - \omega_{\gamma} - E_{\bar{q},\lambda}) f(\omega - \omega_{\gamma} - E_F) \delta(\bar{q}'' + \bar{G}'' + \bar{k}_{\gamma}'' - \bar{k}'')$$

$$\left| \sum_{j,\kappa} \int d\bar{\rho} e^{-i(\bar{k} - \bar{k}_{\gamma})(\bar{R}'_j + \bar{\kappa} + \bar{\rho})} e^{i\bar{q}\bar{R}'_j} \bar{\epsilon} \bar{\nabla} \Psi_{\bar{q},\lambda}(\kappa, \bar{\rho}) \right|^2$$

die Winkelauflösung des Elektronenanalysators $\int d\bar{\Omega}$ einführen und die Integrale $\int d\omega \int d\bar{\Omega}$ umformen

$$d\bar{k} = k^2 dk d\bar{\Omega} = \frac{1}{2} \sqrt{\omega} d\omega d\bar{\Omega}$$

$$\bar{j} \propto \bar{k}^0 \int d\bar{k} \sum_{\lambda} \int \frac{d\bar{q}}{B_z} \delta(\omega - \omega_{\gamma} - E_{\bar{q},\lambda}) f(\omega - \omega_{\gamma} - E_F) \delta(\bar{q}'' + \bar{G}'' + \bar{k}_{\gamma}'' - \bar{k}'')$$

$$\left| \sum_{j,\kappa} \int d\bar{\rho} e^{-i(\bar{k} - \bar{k}_{\gamma})(\bar{R}'_j + \bar{\kappa} + \bar{\rho})} e^{i\bar{q}\bar{R}'_j} \bar{\epsilon} \bar{\nabla} \Psi_{\bar{q},\lambda}(\kappa, \bar{\rho}) \right|^2$$

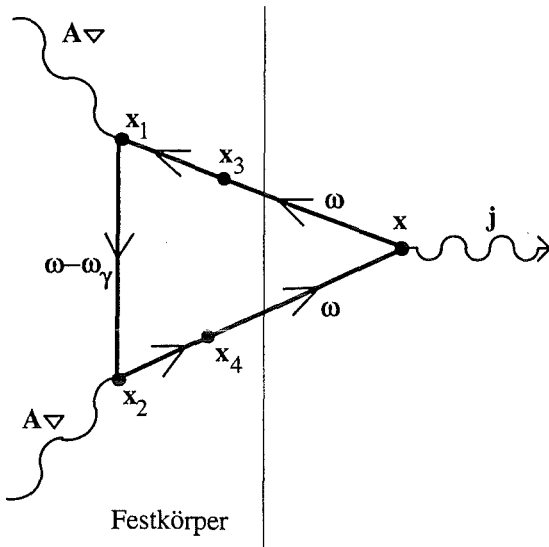
Ausführen der k_x - und k_y -Integration vereinfacht den Term

$$\bar{j} \propto \bar{k}^0 \int d\bar{k} \sum_{\lambda} \int \frac{dq_z}{B_z} \delta(\omega - \omega_{\gamma} - E_{\bar{q},\lambda}) f(\omega - \omega_{\gamma} - E_F)$$

$$\left| \sum_{j,\kappa} \int d\bar{\rho} e^{-i(\bar{k} - \bar{k}_{\gamma})(\bar{R}'_j + \bar{\kappa} + \bar{\rho})} e^{iq_z R'_{zj}} \bar{\epsilon} \bar{\nabla} \Psi_{\bar{q},\lambda}(\kappa, \bar{\rho}) \right|^2 \quad (52)$$

Die Gleichungen (19), (47), (48) und (49) in Gleichung (52) eingesetzt ergeben analog zu Anhang4 das Resultat (Gleichung 53).

Anhang6: Ausführliche Herleitung der VAR+FP-Formel



In diesem Abschnitt berücksichtigen wir einen weiteren Aspekt des Festkörpers. Innerhalb des Kristalls bewegt sich ein Photoelektron in einem durch seine Struktur festgelegten, periodischen Potential. Außerhalb des Festkörpers bleibt es weiterhin bei einem Potential $\equiv 0$. Das Festkörperpotential nähern wir selbstkonsistent.

Abb. 4.4.1 Keldysh-Graph der VAR+FP

Näherung: Wir setzen für den ganzen Festkörper ein Bulkpotential an, also keine veränderten Potentiale in Oberflächennähe. Außerdem hat unsere Oberfläche weder Versetzungslinien noch Unreinheiten.

Wir beginnen mit Gleichung 39

$$\bar{j} = \frac{2e\hbar^2}{m} \lim_{x \rightarrow x' \rightarrow \infty} (\partial_{\bar{x}'} - \partial_{\bar{x}}) \iint d\bar{x}_1 d\bar{x}_2 \int \frac{d\omega}{2\pi} G^R(\bar{x}, \bar{x}_1, \omega) a e^{i\bar{k}_\gamma \bar{x}_1} a e^{-i\bar{k}_\gamma \bar{x}_2} G^A(\bar{x}_2, \bar{x}', \omega) \bar{\epsilon} \bar{V}_1 \bar{\epsilon} \bar{V}_2 G^{--}(\bar{x}_1, \bar{x}_2, \omega - \omega_\gamma)$$

und berücksichtigen in den beiden Greenschen Funktionen G^R und G^A das Festkörperpotential¹¹:

$$G_{VAR+FP}^R = G_0^R(\bar{x}, \bar{x}_1, \omega) + \int_{FK} d\bar{x}_3 G_0^R(\bar{x}, \bar{x}_3, \omega) V(\bar{x}_3) G_{Bulk}^R(\bar{x}_3, \bar{x}_1, \omega) \quad (54)$$

$$G_{VAR+FP}^A = G_0^A(\bar{x}_2, \bar{x}', \omega) + \int_{FK} d\bar{x}_4 G_{Bulk}^A(\bar{x}_2, \bar{x}_4, \omega) V(\bar{x}_4) G_0^A(\bar{x}_4, \bar{x}', \omega) \quad (55)$$

$G_0^R(\bar{x}, \bar{x}_1, \omega)$ bzw. $G_0^A(\bar{x}_2, \bar{x}', \omega)$ sind die Lösungen für $V(\bar{x}) \equiv 0$:

$$G_0^R = -\frac{1}{4\pi} \frac{e^{ik|\bar{x}-\bar{x}_1|}}{|\bar{x}-\bar{x}_1|} \quad \text{und} \quad G_0^A = -\frac{1}{4\pi} \frac{e^{-ik|\bar{x}'-\bar{x}_2|}}{|\bar{x}'-\bar{x}_2|}$$

$V(\bar{x})$ ist das Festkörperpotential

$G_{Bulk}^R(\bar{x}_3, \bar{x}_1, \omega)$ bzw. $G_{Bulk}^A(\bar{x}_2, \bar{x}_4, \omega)$ sind die Lösungen im Festkörperpotential.

Die Raumintegrale erstrecken sich über den ganzen Festkörper.

Da nur G^A und G^R in Gleichung 39 von \bar{x} und \bar{x}' abhängen, berechnen wir $(\partial_{\bar{x}'} - \partial_{\bar{x}})$

$$\partial_{\bar{x}} G_{VAR+FP}^R(\bar{x}, \bar{x}_1, \omega) = G_{VAR+FP}^R(\bar{x}, \bar{x}_1, \omega) (\bar{x} - \bar{x}_1)^0 \left(ik - \frac{1}{|\bar{x} - \bar{x}_1|} \right)$$

$$\partial_{\bar{x}'} G_{VAR+FP}^A(\bar{x}_2, \bar{x}', \omega) = G_{VAR+FP}^A(\bar{x}_2, \bar{x}', \omega) (\bar{x}' - \bar{x}_2)^0 \left(-ik - \frac{1}{|\bar{x}' - \bar{x}_2|} \right)$$

und führen den Grenzübergang $\lim_{x \rightarrow x' \rightarrow \infty}$ aus:

$$\bar{j} = \frac{2e\hbar^2}{m} \lim_{x \rightarrow x' \rightarrow \infty} \iint d\bar{x}_1 d\bar{x}_2 \int \frac{d\omega}{2\pi}$$

$$\left(G_{VAR+FP}^R(\bar{x}, \bar{x}_1, \omega) a e^{i\bar{k}_\gamma \bar{x}_1} a e^{-i\bar{k}_\gamma \bar{x}_2} G_{VAR+FP}^A(\bar{x}_2, \bar{x}', \omega) (\bar{x}' - \bar{x}_2)^0 \left(-ik - \frac{1}{|\bar{x}' - \bar{x}_2|} \right) \bar{\epsilon} \bar{\nabla}_1 \bar{\epsilon} \bar{\nabla}_2 G^{-+}(\bar{x}_1, \bar{x}_2, \omega - \omega_\gamma) - \right.$$

$$\left. G_{VAR+FP}^R(\bar{x}, \bar{x}_1, \omega) (\bar{x} - \bar{x}_1)^0 \left(ik - \frac{1}{|\bar{x} - \bar{x}_1|} \right) a e^{i\bar{k}_\gamma \bar{x}_1} a e^{-i\bar{k}_\gamma \bar{x}_2} G_{VAR+FP}^A(\bar{x}_2, \bar{x}', \omega) \bar{\epsilon} \bar{\nabla}_1 \bar{\epsilon} \bar{\nabla}_2 G^{-+}(\bar{x}_1, \bar{x}_2, \omega - \omega_\gamma) \right)$$

In G_0^R und G_0^A verwenden wir die Entwicklung $|\bar{x} - \bar{x}_\alpha| \approx |\bar{x}| - \bar{x}^0 \bar{x}_\alpha$ bzw. $|\bar{x}' - \bar{x}_\beta| \approx |\bar{x}'| - \bar{x}'^0 \bar{x}_\beta$.

$$\bar{j} = \frac{2e\hbar^2}{m} \iint d\bar{x}_1 d\bar{x}_2 \int \frac{d\omega}{2\pi} \left[\left(\frac{-1}{4\pi} \frac{e^{ik(|\bar{x}| - \bar{x}^0 \bar{x}_1)}}{|\bar{x}|} + \int_{FK} d\bar{x}_3 \frac{-1}{4\pi} \frac{e^{ik(|\bar{x}| - \bar{x}^0 \bar{x}_3)}}{|\bar{x}|} V(\bar{x}_3) G_{Bulk}^R(\bar{x}_3, \bar{x}_1, \omega) \right) a e^{i\bar{k}_\gamma \bar{x}_1} \right.$$

$$\left. a e^{-i\bar{k}_\gamma \bar{x}_2} \left(\frac{-1}{4\pi} \frac{e^{-ik(|\bar{x}| - \bar{x}^0 \bar{x}_2)}}{|\bar{x}|} + \int_{FK} d\bar{x}_4 \frac{-1}{4\pi} \frac{e^{-ik(|\bar{x}| - \bar{x}^0 \bar{x}_4)}}{|\bar{x}|} V(\bar{x}_4) G_{Bulk}^A(\bar{x}_2, \bar{x}_4, \omega) \right) (\bar{x})^0 (-) ik \bar{\epsilon} \bar{\nabla}_1 \bar{\epsilon} \bar{\nabla}_2 G^{-+}(\bar{x}_1, \bar{x}_2, \omega - \omega_\gamma) - \right.$$

$$\left(\frac{-1}{4\pi} \frac{e^{ik(|\bar{x}| - \bar{x}^0 \bar{x}_1)}}{|\bar{x}|} + \int_{FK} d\bar{x}_3 \frac{-1}{4\pi} \frac{e^{ik(|\bar{x}| - \bar{x}^0 \bar{x}_3)}}{|\bar{x}|} V(\bar{x}_3) G_{Bulk}^A(\bar{x}_3, \bar{x}_1, \omega) \right) (\bar{x})^0 ik a e^{i\bar{k}_\gamma \bar{x}_1} a e^{-i\bar{k}_\gamma \bar{x}_2}$$

$$\left. \left(\frac{-1}{4\pi} \frac{e^{-ik(|\bar{x}| - \bar{x}^0 \bar{x}_2)}}{|\bar{x}|} + \int_{FK} d\bar{x}_4 \frac{-1}{4\pi} \frac{e^{-ik(|\bar{x}| - \bar{x}^0 \bar{x}_4)}}{|\bar{x}|} V(\bar{x}_4) G_{Bulk}^A(\bar{x}_2, \bar{x}_4, \omega) \right) \bar{\epsilon} \bar{\nabla}_1 \bar{\epsilon} \bar{\nabla}_2 G^{-+}(\bar{x}_1, \bar{x}_2, \omega - \omega_\gamma) \right]$$

Wir fassen zusammen

$$\bar{j} = \frac{2e\hbar^2 a^2}{16m\pi^2} \frac{\bar{x}^0}{|\bar{x}|^2} \iint d\bar{x}_1 d\bar{x}_2 \int \frac{d\omega}{2\pi} (-) 2i k e^{i\bar{k}_\gamma(\bar{x}_1 - \bar{x}_2)} \bar{\varepsilon} \bar{\nabla}_1 \bar{\varepsilon} \bar{\nabla}_2 G^{-+}(\bar{x}_1, \bar{x}_2, \omega - \omega_\gamma) \left(e^{-ik\bar{x}^0 \bar{x}_1} + \int_{FK} d\bar{x}_3 e^{-ik\bar{x}^0 \bar{x}_3} V(\bar{x}_3) G_{Bulk}^R(\bar{x}_3, \bar{x}_1, \omega) \right) \left(e^{ik\bar{x}^0 \bar{x}_2} + \int_{FK} d\bar{x}_4 e^{ik\bar{x}^0 \bar{x}_4} V(\bar{x}_4) G_{Bulk}^A(\bar{x}_2, \bar{x}_4, \omega) \right)$$

In den Veröffentlichungen ist der Abstand Probe-Analysator ($|\bar{x}|$) nicht angegeben, darum verzichten wir darauf, den Photostrom in absoluten Einheiten anzugeben.

$$\bar{j} \propto \bar{k}^0 \iint d\bar{x}_1 d\bar{x}_2 \int d\omega \sqrt{\omega} e^{i\bar{k}_\gamma(\bar{x}_1 - \bar{x}_2)} \bar{\varepsilon} \bar{\nabla}_1 \bar{\varepsilon} \bar{\nabla}_2 G^{-+}(\bar{x}_1, \bar{x}_2, \omega - \omega_\gamma) \left(e^{-ik\bar{x}^0 \bar{x}_1} + \int_{FK} d\bar{x}_3 e^{-ik\bar{x}^0 \bar{x}_3} V(\bar{x}_3) G_{Bulk}^R(\bar{x}_3, \bar{x}_1, \omega) \right) \left(e^{ik\bar{x}^0 \bar{x}_2} + \int_{FK} d\bar{x}_4 e^{ik\bar{x}^0 \bar{x}_4} V(\bar{x}_4) G_{Bulk}^A(\bar{x}_2, \bar{x}_4, \omega) \right) \quad (56)$$

Die Greensche Funktion G^{-+} ist gegeben durch

$$\boxed{G^{-+}(\bar{x}_1, \bar{x}_2, \omega - \omega_\gamma) = -2i \text{Im} G^R(\bar{x}_1, \bar{x}_2, \omega - \omega_\gamma) f(\omega - \omega_\gamma - E_F)} \quad (41)$$

wobei $f(\omega - \omega_\gamma - E_F) = \frac{1}{1 + e^{\omega - \omega_\gamma - E_F}}$ die Fermifunktion ist

Wir führen lokale Ortskoordinaten ein:

$$\bar{x}_1 = \bar{R}_j + \bar{\kappa}_1 + \bar{\rho}_1, \quad \bar{x}_2 = \bar{R}_j + \bar{\kappa}_2 + \bar{\rho}_2, \quad \bar{x}_3 = \bar{R}_j + \bar{\kappa}_3 + \bar{\rho}_3 \quad \text{und} \quad \bar{x}_4 = \bar{R}_j + \bar{\kappa}_4 + \bar{\rho}_4$$

\bar{R}_j zeigt auf die j -te Elementarzelle

$\bar{\kappa}$ zeigt innerhalb der Elementarzelle auf das Atom κ

$\bar{\rho}$ ist der lokale Ortsvektor innerhalb einer Atomkugel.

In diesen Koordinaten hat der Photostrom folgende Form:

$$\bar{j} \propto \bar{k}^0 \sum_{j_1, j_2, \kappa_1, \kappa_2} \iint d\bar{\rho}_1 d\bar{\rho}_2 \int d\omega \sqrt{\omega} e^{-i(\bar{k}_\gamma)(\bar{R}_{j_2} + \bar{\kappa}_2 + \bar{\rho}_2 - \bar{R}_{j_1} - \bar{\kappa}_1 - \bar{\rho}_1)} \bar{\varepsilon} \bar{\nabla}_1 \bar{\varepsilon} \bar{\nabla}_2 \left(e^{-ik\bar{x}^0(\bar{R}_{j_1} + \bar{\kappa}_1 + \bar{\rho}_1)} + \sum_{j_3, \kappa_3} \int d\bar{\rho}_3 e^{-ik\bar{x}^0(\bar{R}_{j_3} + \bar{\kappa}_3 + \bar{\rho}_3)} V(\kappa_3, \bar{\rho}_3) G_{Bulk}^R(j_3, \kappa_3, \bar{\rho}_3, j_1, \kappa_1, \bar{\rho}_1, \omega) \right) \left(e^{ik\bar{x}^0(\bar{R}_{j_2} + \bar{\kappa}_2 + \bar{\rho}_2)} + \sum_{j_4, \kappa_4} \int d\bar{\rho}_4 e^{ik\bar{x}^0(\bar{R}_{j_4} + \bar{\kappa}_4 + \bar{\rho}_4)} V(\kappa_4, \bar{\rho}_4) G_{Bulk}^A(j_2, \kappa_2, \bar{\rho}_2, j_4, \kappa_4, \bar{\rho}_4, \omega) \right) \text{Im} G^R(j_1, j_2, \kappa_1, \kappa_2, \bar{\rho}_1, \bar{\rho}_2, \omega - \omega_\gamma) f(\omega - \omega_\gamma - E_F) \quad (57)$$

Wir nähern $\text{Im}G^R$ durch $\text{Im}G_{Bulk}^R$ und führen die Blochfouriertransformationen (43) von G_{Bulk}^R , G_{Bulk}^A und $\text{Im}G_{Bulk}^R$ durch:

$$\begin{aligned} \bar{j} \propto \bar{k}^0 \sum_{j_1, j_2, \kappa_1, \kappa_2} \iint d\bar{\rho}_1 d\bar{\rho}_2 \int d\omega \sqrt{\omega} e^{-i\bar{k}_\gamma (\bar{R}_{j_2} + \bar{\kappa}_2 + \bar{\rho}_2 - \bar{R}_{j_1} - \bar{\kappa}_1 - \bar{\rho}_1)} \bar{\epsilon} \bar{\nabla}_1 \bar{\epsilon} \bar{\nabla}_2 \int \frac{d\bar{q}}{\text{Vol}_{BZ}} e^{-i\bar{q}(\bar{R}_{j_2} - \bar{R}_{j_1})} \\ \left(e^{-ik\bar{x}^0(\bar{R}_{j_1} + \bar{\kappa}_1 + \bar{\rho}_1)} + \sum_{j_3, \kappa_3} \int d\bar{\rho}_3 e^{-ik\bar{x}^0(\bar{R}_{j_3} + \bar{\kappa}_3 + \bar{\rho}_3)} V(\kappa_3, \bar{\rho}_3) \int \frac{d\tilde{q}}{\text{Vol}_{BZ}} e^{-i\tilde{q}(\bar{R}_{j_1} - \bar{R}_{j_3})} G_{Bulk, \tilde{q}}^R(\kappa_3, \bar{\rho}_3, \kappa_1, \bar{\rho}_1, \omega) \right) \\ \left(e^{ik\bar{x}^0(\bar{R}_{j_2} + \bar{\kappa}_2 + \bar{\rho}_2)} + \sum_{j_4, \kappa_4} \int d\bar{\rho}_4 e^{ik\bar{x}^0(\bar{R}_{j_4} + \bar{\kappa}_4 + \bar{\rho}_4)} V(\kappa_4, \bar{\rho}_4) \int \frac{d\hat{q}}{\text{Vol}_{BZ}} e^{i\hat{q}(\bar{R}_{j_2} - \bar{R}_{j_4})} G_{Bulk, \hat{q}}^A(\kappa_2, \bar{\rho}_2, \kappa_4, \bar{\rho}_4, \omega) \right) \\ \text{Im}G_{Bulk, \bar{q}}^R(\kappa_1, \kappa_2, \bar{\rho}_1, \bar{\rho}_2, \omega - \omega_\gamma) f(\omega - \omega_\gamma - E_F) \end{aligned}$$

Mit dem Imaginärteil der Greenschen Funktion in Bandstrukturnäherung

$$\text{Im}G_{Bulk, \bar{q}}^R(\kappa_1, \kappa_2, \bar{\rho}_1, \bar{\rho}_2, \omega - \omega_\gamma) = -\pi \sum_{\lambda} \Psi_{\bar{q}, \lambda}(\kappa_1, \bar{\rho}_1) \Psi_{\bar{q}, \lambda}^*(\kappa_2, \bar{\rho}_2) \delta(\omega - \omega_\gamma - E_{\bar{q}, \lambda}) \quad (44)$$

ergibt sich

$$\begin{aligned} \bar{j} \propto \bar{k}^0 \sum_{\lambda, j_1, j_2, \kappa_1, \kappa_2} \iint d\bar{\rho}_1 d\bar{\rho}_2 \int d\omega \sqrt{\omega} e^{-i\bar{k}_\gamma (\bar{R}_{j_2} + \bar{\kappa}_2 + \bar{\rho}_2 - \bar{R}_{j_1} - \bar{\kappa}_1 - \bar{\rho}_1)} \bar{\epsilon} \bar{\nabla}_1 \bar{\epsilon} \bar{\nabla}_2 \int \frac{d\bar{q}}{\text{Vol}_{BZ}} e^{-i\bar{q}(\bar{R}_{j_2} - \bar{R}_{j_1})} \\ \left(e^{-ik\bar{x}^0(\bar{R}_{j_1} + \bar{\kappa}_1 + \bar{\rho}_1)} + \sum_{j_3, \kappa_3} \int d\bar{\rho}_3 e^{-ik\bar{x}^0(\bar{R}_{j_3} + \bar{\kappa}_3 + \bar{\rho}_3)} V(\kappa_3, \bar{\rho}_3) \int \frac{d\tilde{q}}{\text{Vol}_{BZ}} e^{-i\tilde{q}(\bar{R}_{j_1} - \bar{R}_{j_3})} G_{Bulk, \tilde{q}}^R(\kappa_3, \bar{\rho}_3, \kappa_1, \bar{\rho}_1, \omega) \right) \\ \left(e^{ik\bar{x}^0(\bar{R}_{j_2} + \bar{\kappa}_2 + \bar{\rho}_2)} + \sum_{j_4, \kappa_4} \int d\bar{\rho}_4 e^{ik\bar{x}^0(\bar{R}_{j_4} + \bar{\kappa}_4 + \bar{\rho}_4)} V(\kappa_4, \bar{\rho}_4) \int \frac{d\hat{q}}{\text{Vol}_{BZ}} e^{i\hat{q}(\bar{R}_{j_2} - \bar{R}_{j_4})} G_{Bulk, \hat{q}}^A(\kappa_2, \bar{\rho}_2, \kappa_4, \bar{\rho}_4, \omega) \right) \\ \Psi_{\bar{q}, \lambda}(\kappa_1, \bar{\rho}_1) \Psi_{\bar{q}, \lambda}^*(\kappa_2, \bar{\rho}_2) \delta(\omega - \omega_\gamma - E_{\bar{q}, \lambda}) f(\omega - \omega_\gamma - E_F) \end{aligned}$$

Die Probe ist senkrecht zur Oberfläche nicht periodisch. Darum zerlegen wir die Vektoren in eine Komponente parallel zur Oberfläche (gekennzeichnet mit dem Index ") und eine Komponente senkrecht zur Oberfläche (gekennzeichnet mit '). Damit können wir die folgende Deltafunktion für die Komponente parallel zur Oberfläche aufstellen. Den Index j zerlegen wir ebenfalls in zwei Indizes: j" zählt die Elementarzellen einer Schicht parallel zur Oberfläche durch und j' zählt die Schichten senkrecht zur Oberfläche durch.

$$\sum_{j_1'', j_2''} \frac{1}{F_{xy}} e^{i(\bar{k}_\gamma'' + \bar{q}'' - \bar{k}'')(\bar{R}_{j_2}'' - \bar{R}_{j_1}'')} = \delta(\bar{k}'' - \bar{k}_\gamma'' - \bar{q}'' - \bar{G}'')$$

F_{xy} ist die Schnittfläche der Brillouin-Zone mit der qx, qy -Ebene.
Auf jeden der 4 Summanden angewandt liefert

$$\begin{aligned} & \bar{j} \propto \bar{k}^0 \sum_{\lambda, j_1', j_2', \kappa_1, \kappa_2} \iint d\bar{\rho}_1 d\bar{\rho}_2 \int d\omega \sqrt{\omega} e^{-i\bar{k}_\gamma(\bar{R}_{j_2}' + \bar{\kappa}_2 + \bar{\rho}_2 - \bar{R}_{j_1}' - \bar{\kappa}_1 - \bar{\rho}_1)} \bar{\epsilon} \bar{\nabla}_1 \bar{\epsilon} \bar{\nabla}_2 \int \frac{d\bar{q}}{B_z} e^{-i\bar{q}(\bar{R}_{j_2}' - \bar{R}_{j_1}')} \delta(\bar{k}'' - \bar{k}_\gamma'' - \bar{q}'' - \bar{G}'') \\ & \Psi_{\bar{q}, \lambda}(\kappa_1, \bar{\rho}_1) \Psi_{\bar{q}, \lambda}^*(\kappa_2, \bar{\rho}_2) \delta(\omega - \omega_\gamma - E_{\bar{q}, \lambda}) f(\omega - \omega_\gamma - E_F) \\ & \left\{ e^{-ik\bar{x}^0(\bar{R}_{j_1}' + \bar{\kappa}_1 + \bar{\rho}_1)} e^{ik\bar{x}^0(\bar{R}_{j_2}' + \bar{\kappa}_2 + \bar{\rho}_2)} + \right. \\ & e^{-ik\bar{x}^0(\bar{R}_{j_1}' + \bar{\kappa}_1 + \bar{\rho}_1)} \sum_{j_4', \kappa_4} d\bar{\rho}_4 e^{ik\bar{x}^0(\bar{R}_{j_4}' + \bar{\kappa}_4 + \bar{\rho}_4)} V(\kappa_4, \bar{\rho}_4) \int \frac{d\hat{q}}{B_z} e^{i\hat{q}(\bar{R}_{j_2}' - \bar{R}_{j_4}')} G_{Bulk, \hat{q}}^A(\kappa_2, \bar{\rho}_2, \kappa_4, \bar{\rho}_4, \omega) \delta(\hat{q}'' - \bar{k}'') + \\ & e^{ik\bar{x}^0(\bar{R}_{j_2}' + \bar{\kappa}_2 + \bar{\rho}_2)} \sum_{j_3', \kappa_3} \int d\bar{\rho}_3 e^{-ik\bar{x}^0(\bar{R}_{j_3}' + \bar{\kappa}_3 + \bar{\rho}_3)} V(\kappa_3, \bar{\rho}_3) \int \frac{d\tilde{q}}{B_z} e^{-i\tilde{q}(\bar{R}_{j_1}' - \bar{R}_{j_3}')} G_{Bulk, \tilde{q}}^R(\kappa_3, \bar{\rho}_3, \kappa_1, \bar{\rho}_1, \omega) \delta(\tilde{q}'' - \bar{k}'') + \\ & \sum_{j_3', \kappa_3} \int d\bar{\rho}_3 e^{-ik\bar{x}^0(\bar{R}_{j_3}' + \bar{\kappa}_3 + \bar{\rho}_3)} V(\kappa_3, \bar{\rho}_3) \int \frac{d\tilde{q}}{B_z} e^{-i\tilde{q}(\bar{R}_{j_1}' - \bar{R}_{j_3}')} G_{Bulk, \tilde{q}}^R(\kappa_3, \bar{\rho}_3, \kappa_1, \bar{\rho}_1, \omega) \delta(\tilde{q}'' - \bar{k}'') \\ & \left. \sum_{j_4', \kappa_4} d\bar{\rho}_4 e^{ik\bar{x}^0(\bar{R}_{j_4}' + \bar{\kappa}_4 + \bar{\rho}_4)} V(\kappa_4, \bar{\rho}_4) \int \frac{d\hat{q}}{B_z} e^{i\hat{q}(\bar{R}_{j_2}' - \bar{R}_{j_4}')} G_{Bulk, \hat{q}}^A(\kappa_2, \bar{\rho}_2, \kappa_4, \bar{\rho}_4, \omega) \delta(\hat{q}'' - \bar{k}'') \right\} \end{aligned}$$

und den Impulszusammenhang

$$\boxed{\hbar \bar{k}'' = \hbar \bar{q}'' + \hbar \bar{k}_\gamma'' + \hbar \bar{G}''} \quad (51)$$

In der z -Richtung läßt sich kein solcher Zusammenhang formulieren, denn wegen der endlichen freien Weglänge λ der Photoelektronen tragen nur wenige Schichten zur den ARUPS-Kurven bei. Eine Summation über unendlich viele Schichten liefert eine Deltafunktion $\delta(k_z - k_{\gamma, z} - q_z - G_z)$ und damit einen festen Zusammenhang zwischen den z -Komponenten der Impulse von Photon, Photoelektron und Bandelektron. Endlich vielen Schichten dagegen liefern eine breitere Verteilung. Je geringer die Anzahl der zu summierenden Schichten ist, desto breiter wird die Verteilung. Es gibt zwar kein zwingender Zusammenhang mehr zwischen den z -Komponenten der Impulse, diese sind aber auch nicht voneinander unabhängig, sondern es besteht eine erhöhte Wahrscheinlichkeit, daß ein Photoelektron den z -Impuls $k_z = k_{\gamma, z} + q_z + G_z$ hat. Eine wichtige Folge davon ist, daß die Photoelektronen nicht von dem ganzen z -Bereich der Brillouin-Zone gleichmäßig emittiert werden, sondern daß die Emission im

z-Bereich der Brillouin-Zone um $q_z = k_z - G_z - k_{\gamma,z}$ mit größerer Wahrscheinlichkeit erfolgt als im restlichen Bereich der Brillouin-Zone.

Nun rechnen wir die Impulsintegrale in x- und y-Richtung aus:

$$\begin{aligned}
\bar{j} \propto \bar{k}^0 & \sum_{\lambda, j'_1, j'_2, \kappa_1, \kappa_2} \iint d\bar{\rho}_1 d\bar{\rho}_2 \int d\omega \sqrt{\omega} e^{-i\bar{k}_\gamma (\bar{R}'_{j_2} + \bar{\kappa}_2 + \bar{\rho}_2 - \bar{R}'_{j_1} - \bar{\kappa}_1 - \bar{\rho}_1)} \bar{\epsilon} \bar{\nabla}_1 \bar{\epsilon} \bar{\nabla}_2 \int \frac{dq_z}{B_z} e^{-iq_z (\bar{R}'_{j_2} - \bar{R}'_{j_1})_z} \\
& \Psi_{\bar{q}, \lambda}(\kappa_1, \bar{\rho}_1) \Psi_{\bar{q}, \lambda}^*(\kappa_2, \bar{\rho}_2) \delta(\omega - \omega_\gamma - E_{\bar{q}, \lambda}) f(\omega - \omega_\gamma - E_F) \\
& \left\{ e^{-i\bar{k}(\bar{R}'_{j_1} + \bar{\kappa}_1 + \bar{\rho}_1)} e^{i\bar{k}(\bar{R}'_{j_2} + \bar{\kappa}_2 + \bar{\rho}_2)} + \right. \\
& e^{-i\bar{k}(\bar{R}'_{j_1} + \bar{\kappa}_1 + \bar{\rho}_1)} \sum_{j'_4, \kappa_4} d\bar{\rho}_4 e^{i\bar{k}(\bar{R}'_{j_4} + \bar{\kappa}_4 + \bar{\rho}_4)} V(\kappa_4, \bar{\rho}_4) \int \frac{d\hat{q}_z}{B_z} e^{i\hat{q}_z (\bar{R}'_{j_2} - \bar{R}'_{j_4})_z} G_{Bulk, \hat{q}}^A(\kappa_2, \bar{\rho}_2, \kappa_4, \bar{\rho}_4, \omega) + \\
& e^{i\bar{k}(\bar{R}'_{j_2} + \bar{\kappa}_2 + \bar{\rho}_2)} \sum_{j'_3, \kappa_3} \int d\bar{\rho}_3 e^{-i\bar{k}(\bar{R}'_{j_3} + \bar{\kappa}_3 + \bar{\rho}_3)} V(\kappa_3, \bar{\rho}_3) \int \frac{d\tilde{q}_z}{B_z} e^{-i\tilde{q}_z (\bar{R}'_{j_1} - \bar{R}'_{j_3})_z} G_{Bulk, \tilde{q}}^R(\kappa_3, \bar{\rho}_3, \kappa_1, \bar{\rho}_1, \omega) + \\
& \sum_{j'_3, \kappa_3} \int d\bar{\rho}_3 e^{-i\bar{k}(\bar{R}'_{j_3} + \bar{\kappa}_3 + \bar{\rho}_3)} V(\kappa_3, \bar{\rho}_3) \int \frac{d\tilde{q}_z}{B_z} e^{-i\tilde{q}_z (\bar{R}'_{j_1} - \bar{R}'_{j_3})_z} G_{Bulk, \tilde{q}}^R(\kappa_3, \bar{\rho}_3, \kappa_1, \bar{\rho}_1, \omega) \\
& \left. \sum_{j'_4, \kappa_4} d\bar{\rho}_4 e^{i\bar{k}(\bar{R}'_{j_4} + \bar{\kappa}_4 + \bar{\rho}_4)} V(\kappa_4, \bar{\rho}_4) \int \frac{d\hat{q}_z}{B_z} e^{i\hat{q}_z (\bar{R}'_{j_2} - \bar{R}'_{j_4})_z} G_{Bulk, \hat{q}}^A(\kappa_2, \bar{\rho}_2, \kappa_4, \bar{\rho}_4, \omega) \right\}
\end{aligned}$$

Aufgrund der endlichen Winkelauflösung des Elektronenanalysators kommt noch ein Raumintegral $\int d\bar{\Omega}$ hinzu.

Mit der Identität $d\bar{k} = k^2 dk d\bar{\Omega} = \frac{1}{2} \sqrt{\omega} d\omega d\bar{\Omega}$ formen wir die Integrale um und fassen zum Betragsquadrat zusammen:

$$\begin{aligned}
\bar{j} \propto \bar{k}^0 & \sum_{\lambda} \int d\bar{k} \int \frac{dq_z}{B_z} \delta(\omega - \omega_\gamma - E_{\bar{q}, \lambda}) f(\omega - \omega_\gamma - E_F) |A|^2 \\
A = & \sum_{j', \kappa} \int d\bar{\rho} e^{i\bar{k}_\gamma (\bar{R}'_{j'} + \bar{\kappa} + \bar{\rho})} e^{iq_z R'_{z,j}} \bar{\epsilon} \bar{\nabla} \Psi_{\bar{q}, \lambda}(\kappa, \bar{\rho}) \\
& \left(e^{-i\bar{k}(\bar{R}'_{j'} + \bar{\kappa} + \bar{\rho})} + \sum_{j'_2, \kappa_2} \int d\bar{\rho}_2 e^{-i\bar{k}(\bar{R}'_{j'_2} + \bar{\kappa}_2 + \bar{\rho}_2)} V(\kappa_2, \bar{\rho}_2) \int \frac{dq_{2,z}}{B_z} e^{-iq_{2,z} (\bar{R}'_{j'} - \bar{R}'_{j'_2})_z} G_{Bulk, \bar{q}_2}^R(\kappa_2, \bar{\rho}_2, \kappa, \bar{\rho}, \omega) \right)
\end{aligned} \tag{58}$$

Damit kann die VAR+FP mit der VAR verglichen werden. Die einzige Änderung ist im Betragsquadrat, also in A:

$$A_{VAR+FP} = A_{VAR} + A_{Zusatz}$$

$$A_{VAR} = \sum_{j', \kappa} \int d\bar{\rho} e^{i\bar{k}_\gamma (\bar{R}'_{j'} + \bar{\kappa} + \bar{\rho})} e^{-i\bar{k} (\bar{R}'_{j'} + \bar{\kappa} + \bar{\rho})} e^{iq_z R'_{zj'}} \bar{\epsilon} \bar{\nabla} \Psi_{\bar{q}, \lambda}(\kappa, \bar{\rho})$$

$$A_{Zusatz} = \sum_{j', \kappa} \int d\bar{\rho} e^{i\bar{k}_\gamma (\bar{R}'_{j'} + \bar{\kappa} + \bar{\rho})} e^{iq_z R'_{zj'}} \bar{\epsilon} \bar{\nabla} \Psi_{\bar{q}, \lambda}(\kappa, \bar{\rho})$$

$$\sum_{j_2, \kappa_2} \int d\bar{\rho}_2 e^{-i\bar{k} (\bar{R}'_{j_2} + \bar{\kappa}_2 + \bar{\rho}_2)} V(\kappa_2, \bar{\rho}_2) \int \frac{dq_{2,z}}{B_z} e^{-iq_{2,z} (\bar{R}'_{j_2} - \bar{R}'_{j_2})} {}_z G_{Bulk, \bar{q}_2}^R(\kappa_2, \bar{\rho}_2, \kappa, \bar{\rho}, \omega)$$

Als nächstes formen wir A_{Zusatz} weiter um:

G_{Bulk, \bar{q}_2}^R kann in Bandstrukturnäherung durch Blochwellenfunktionen ausgedrückt werden:

$$G_{Bulk, \bar{q}_2}^R(\kappa_2, \bar{\rho}_2, \kappa, \bar{\rho}, \omega) = \sum_{\hat{\lambda}} \frac{\Psi_{\bar{q}_2, \hat{\lambda}}(\kappa_2, \bar{\rho}_2) \Psi_{\bar{q}_2, \hat{\lambda}}^*(\kappa, \bar{\rho})}{\omega - E_{\bar{q}_2, \hat{\lambda}} + i\eta} \quad (59)$$

Nun entwickeln wir $e^{-i\bar{k}\bar{\rho}_2}$:

$$e^{-i\bar{\rho}_2 \bar{k}} = 4\pi \sum_{\tilde{l}=0}^{\infty} \sum_{\tilde{m}=-\tilde{l}}^{\tilde{l}} (-i)^{\tilde{l}} j_{\tilde{l}}(|\bar{k}| \rho_2) Y_{\tilde{l}\tilde{m}}(\hat{\rho}_2) Y_{\tilde{l}\tilde{m}}(\bar{k}^0)$$

Mit der LMTO-Darstellung der Blochwellenfunktion

$$\Psi_{\bar{q}_2, \lambda} = \sum_{l=0}^{l_{\max}} \sum_{m=-l}^l \sum_{v=1}^2 c_{lm\kappa_2 v}^{\bar{q}_2 \lambda} R_{lv}(\rho_2, \kappa_2) Y_{lm}(\hat{\rho}_2)$$

erhalten wir

$$A_{Zusatz} = \sum_{j', \kappa} \int d\bar{\rho} e^{i\bar{k}_\gamma (\bar{R}'_{j'} + \bar{\kappa} + \bar{\rho})} e^{iq_z R'_{zj'}} \bar{\epsilon} \bar{\nabla} \Psi_{\bar{q}, \lambda}(\kappa, \bar{\rho}) \sum_{j_2, \kappa_2} \int d\bar{\rho}_2 e^{-i\bar{k} (\bar{R}'_{j_2} + \bar{\kappa}_2)} \\ 4\pi \sum_{\tilde{l}=0}^{\infty} \sum_{\tilde{m}=-\tilde{l}}^{\tilde{l}} (-i)^{\tilde{l}} j_{\tilde{l}}(|\bar{k}| \rho_2) Y_{\tilde{l}\tilde{m}}(\hat{\rho}_2) Y_{\tilde{l}\tilde{m}}(\bar{k}^0) V(\kappa_2, \bar{\rho}_2) \int \frac{dq_{2,z}}{B_z} e^{-iq_{2,z} (\bar{R}'_{j_2} - \bar{R}'_{j_2})} \sum_{\hat{\lambda}} \frac{1}{\omega - E_{\bar{q}_2, \hat{\lambda}} + i\eta} \\ \sum_{l_1=0}^{l_{1,\max}} \sum_{m_1=-l_1}^{l_1} \sum_{v_1=1}^2 c_{l_1 m_1 \kappa_2 v_1}^{\bar{q}_2 \hat{\lambda}} R_{l_1 v_1}(\rho_2, \kappa_2) Y_{l_1 m_1}(\hat{\rho}_2) \sum_{l_2=0}^{l_{2,\max}} \sum_{m_2=-l_2}^{l_2} \sum_{v_2=1}^2 c_{l_2 m_2 \kappa v_2}^{*\bar{q}_2 \hat{\lambda}} R_{l_2 v_2}(\rho, \kappa) Y_{l_2 m_2}(\hat{\rho})$$

Wir zerlegen das Integral über $\bar{\rho}_2$ $\int \bar{\rho}_2 = \int \rho_2^2 d\rho_2 \int d\hat{\rho}_2$ in den Radialanteil und den Winkelanteil.

Anwenden der Orthogonalität $\int d\hat{\rho}_2 Y_{\tilde{l}\tilde{m}} Y_{l_1 m_1} = \delta_{\tilde{l} l_1} \delta_{\tilde{m} m_1}$ reduziert die Summe:

$$A_{Zusatz} = \sum_{j', \kappa} \int d\bar{\rho} e^{i\bar{k}_\gamma (\bar{R}'_j + \bar{\kappa} + \bar{\rho})} e^{iq_z R'_{z,j}} \bar{\epsilon} \bar{\nabla} \Psi_{\bar{q}, \lambda}(\kappa, \bar{\rho}) \sum_{j_2, \kappa_2} \int \rho_2^2 d\rho_2 e^{-i\bar{k} (\bar{R}'_{j_2} + \bar{\kappa}_2)}$$

$$4\pi \sum_{\tilde{l}=0}^{\infty} \sum_{\tilde{m}=-\tilde{l}}^{\tilde{l}} (-i)^{\tilde{l}} j_{\tilde{l}}(|\bar{k}|\rho_2) Y_{\tilde{l}\tilde{m}}(\bar{k}^0) V(\kappa_2, \bar{\rho}_2) \int \frac{dq_{2,z}}{B_z} e^{-iq_{2,z} (\bar{R}'_j - \bar{R}'_{j_2})_z} \sum_{\hat{\lambda}} \frac{1}{\omega - E_{\bar{q}_2, \hat{\lambda}} + i\eta}$$

$$\sum_{v_1=1}^2 c_{\tilde{l}\tilde{m}\kappa_2 v_1}^{\bar{q}_2, \hat{\lambda}} R_{\tilde{l} v_1}(\rho_2, \kappa_2) \sum_{l_2=0}^{l_2, \max} \sum_{m_2=-l_2}^{l_2} \sum_{v_2=1}^2 c_{l_2 m_2 \kappa v_2}^{* \bar{q}_2, \hat{\lambda}} R_{l_2 v_2}(\rho, \kappa) Y_{l_2 m_2}(\hat{\rho})$$

Wir betrachten den Term $\bar{\epsilon} \bar{\nabla} \Psi_{\bar{q}, \lambda}(\kappa, \bar{\rho})$ genauer, wobei Gleichung 47 Verwendung findet

$$\bar{\nabla}(R_{lv} Y_{lm}) = \hat{\rho} Y_{lm}(\hat{\rho}) \frac{\partial}{\partial \rho} R_{lv}(\rho) - \frac{\hat{\rho}}{\rho} l Y_{lm}(\hat{\rho}) R_{lv}(\rho) + \sqrt{\frac{4\pi}{3}} \frac{2l+1}{\rho} R_{lv}(\rho) \sum_{m'=-l}^{l-1} Y_{l-1, m'}(\hat{\rho}) \begin{pmatrix} G(lm, l-1m', 11) \\ G(lm, l-1m', 1-1) \\ G(lm, l-1m', 10) \end{pmatrix} \quad (47)$$

mit $\hat{\rho} = \frac{\bar{\rho}}{\rho} = \sqrt{\frac{4\pi}{3}} \begin{pmatrix} Y_{11} \\ Y_{1-1} \\ Y_{10} \end{pmatrix}$ und den Gauntzahlen $G(lm, l' m', l'' m'') = \int d\hat{\rho} Y_{lm} Y_{l' m'} Y_{l'' m''}$

Es verbleibt

$$A_{Zusatz} = \sum_{j', \kappa} \int \rho^2 d\rho \int d\hat{\rho} e^{i\bar{k}_\gamma (\bar{R}'_j + \bar{\kappa})} e^{iq_z R'_{z,j}} \sum_{l=0}^{l_{\max}} \sum_{m=-l}^l \sum_{v=1}^2 c_{lm\kappa v}^{\bar{q}, \lambda}$$

$$\left\{ \hat{\rho} Y_{lm}(\hat{\rho}) \frac{\partial}{\partial \rho} R_{lv}(\rho) - \frac{\hat{\rho}}{\rho} l Y_{lm}(\hat{\rho}) R_{lv}(\rho) + \sqrt{\frac{4\pi}{3}} \frac{2l+1}{\rho} R_{lv}(\rho) \sum_{m'=-l}^{l-1} Y_{l-1, m'}(\hat{\rho}) \bar{\epsilon} \begin{pmatrix} G(lm, l-1m', 11) \\ G(lm, l-1m', 1-1) \\ G(lm, l-1m', 10) \end{pmatrix} \right\}$$

$$\sum_{j_2', \kappa_2} \int \rho_2^2 d\rho_2 e^{-i\bar{k} (\bar{R}'_{j_2} + \bar{\kappa}_2)} 4\pi \sum_{\tilde{l}=0}^{\infty} \sum_{\tilde{m}=-\tilde{l}}^{\tilde{l}} (-i)^{\tilde{l}} j_{\tilde{l}}(|\bar{k}|\rho_2) Y_{\tilde{l}\tilde{m}}(\bar{k}^0) V(\kappa_2, \bar{\rho}_2) \int \frac{dq_{2,z}}{B_z} e^{-iq_{2,z} (\bar{R}'_j - \bar{R}'_{j_2})_z}$$

$$\sum_{\hat{\lambda}} \frac{1}{\omega - E_{\bar{q}_2, \hat{\lambda}} + i\eta} \sum_{v_1=1}^2 c_{\tilde{l}\tilde{m}\kappa_2 v_1}^{\bar{q}_2, \hat{\lambda}} R_{\tilde{l} v_1}(\rho_2, \kappa_2) \sum_{l_2=0}^{l_2, \max} \sum_{m_2=-l_2}^{l_2} \sum_{v_2=1}^2 c_{l_2 m_2 \kappa v_2}^{* \bar{q}_2, \hat{\lambda}} R_{l_2 v_2}(\rho, \kappa) Y_{l_2 m_2}(\hat{\rho})$$

mit dem Phasenfaktor $e^{i\bar{k}_\gamma \bar{\rho}} = 1$ in guter Näherung.

Mit den Gauntzahlen $G(lm, l_2 m_2, l' m')$ $= \int d\hat{\rho} Y_{lm} Y_{l_2 m_2} Y_{l' m'}$
 und der Orthogonalität $\int d\hat{\rho}_2 Y_{l-1, m'} Y_{l_2 m_2} = \delta_{l-1, l_2} \delta_{m', m_2}$
 berechnen wir das Winkelintegral $\int d\hat{\rho}$ und erhalten

$$A_{\text{Zusatz}} = \sum_{j', \kappa} \int \rho^2 d\rho e^{i\bar{k}_j (\bar{R}'_j + \bar{\kappa})} e^{iq_z R'_{z,j}} \sum_{l=0}^{l_{\max}} \sum_{m=-l}^l \sum_{\nu=1}^2 c_{lm\kappa\nu}^{\bar{q}\hat{\lambda}}$$

$$\left\{ \sqrt{\frac{4\pi}{3}} \begin{pmatrix} G(lm, l_2 m_2, 11) \\ G(lm, l_2 m_2, 1-1) \\ G(lm, l_2 m_2, 10) \end{pmatrix} \left(\frac{\partial}{\partial \rho} R_{l\nu}(\rho) - \frac{l}{\rho} R_{l\nu}(\rho) \right) + \sqrt{\frac{4\pi}{3}} \frac{2l+1}{\rho} R_{l\nu}(\rho) \delta_{l-1, l_2} \bar{e} \begin{pmatrix} G(lm, l-1 m_2, 11) \\ G(lm, l-1 m_2, 1-1) \\ G(lm, l-1 m_2, 10) \end{pmatrix} \right\}$$

$$\sum_{j_2', \kappa_2} \int \rho_2^2 d\rho_2 e^{-i\bar{k} (\bar{R}'_{j_2} + \bar{\kappa}_2)} 4\pi \sum_{\tilde{l}=0}^{\tilde{l}} \sum_{\tilde{m}=-\tilde{l}}^{\tilde{l}} (-i)^{\tilde{l}} j_{\tilde{l}}(|\bar{k}| \rho_2) Y_{\tilde{l}\tilde{m}}(\bar{k}^0) V(\kappa_2, \bar{\rho}_2) \int \frac{dq_{2,z}}{B_z} e^{-iq_{2,z} (\bar{R}'_j - \bar{R}'_{j_2})_z}$$

$$\sum_{\hat{\lambda}} \frac{1}{\omega - E_{\bar{q}_2, \hat{\lambda}} + i\eta} \sum_{\nu_1=1}^2 c_{\tilde{l}\tilde{m}\kappa_2\nu_1}^{\bar{q}_2 \hat{\lambda}} R_{\tilde{l}\nu_1}(\rho_2, \kappa_2) \sum_{l_2=0}^{l_{2,\max}} \sum_{m_2=-l_2}^{l_2} \sum_{\nu_2=1}^2 c_{l_2 m_2 \kappa \nu_2}^{*\bar{q}_2 \hat{\lambda}} R_{l_2 \nu_2}(\rho, \kappa)$$

Alles in allem ergibt sich die VAR+FP-Formel (Gleichung 60).

Anhang7: Selbstenergiematrix Σ_{ij}

Ausgehend von der Dysongleichung

$$G_{\bar{q}}(\bar{x}, \bar{x}', \omega) = G_{\bar{q}}^{BS}(\bar{x}, \bar{x}', \omega) + \iint d\bar{x}_1 d\bar{x}_2 G_{\bar{q}}^{BS}(\bar{x}, \bar{x}_1, \omega) \Sigma_{\bar{q}}(\bar{x}_1, \bar{x}_2, \omega) G_{\bar{q}}(\bar{x}_2, \bar{x}', \omega)$$

(wobei $G_{\bar{q}}^{BS}(\bar{x}_1, \bar{x}_2, \omega)$ die Greensche Funktion in Bandstrukturnäherung ist)

erhalten wir durch einsetzen von

$$G_{\bar{q}}(\bar{x}, \bar{x}', \omega) = \sum_i \sum_j \Psi_{\bar{q},i}(\bar{x}, \omega) \Psi_{\bar{q},j}^*(\bar{x}', \omega) G_{\bar{q},i,j}(\omega)$$

die Gleichung

$$G_{\bar{q},i,j}(\omega) = \delta_{ij} G_{\bar{q},i}^{BS}(\omega) + G_{\bar{q},i}^{BS}(\omega) \iint d\bar{x}_1 d\bar{x}_2 \Psi_{\bar{q},\lambda}^*(\bar{x}_1) \Sigma_{\bar{q}}(\bar{x}_1, \bar{x}_2, \omega) \Psi_{\bar{q},\lambda'}(\bar{x}_2) G_{\bar{q},\lambda',j}(\omega)$$

und damit

$$\Sigma_{\bar{q},\lambda,\lambda'}(\omega) = \iint d\bar{x}_1 d\bar{x}_2 \Psi_{\bar{q},\lambda}^*(\bar{x}_1) \Sigma_{\bar{q}}(\bar{x}_1, \bar{x}_2, \omega) \Psi_{\bar{q},\lambda'}(\bar{x}_2) \quad (\text{A7.1})$$

Nun wollen wir näherungsweise $\Sigma_{\bar{q},\lambda,\lambda'}(\omega)$ berechnen:

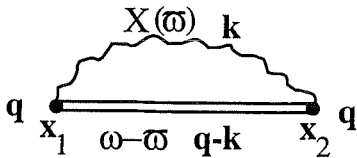


Abb. Anhang7.1: $\Sigma_{\mathbf{q}}(x_1, x_2, \omega)$

Die Näherung durch ein Diagramm dieser Art hat sich bei Wechselwirkungen von Elektronen mit Phononen, Spinfluktuationen und Plasmonen bewährt. Zusätzlich nähern wir die Vertices durch Kontaktpotentiale $K(\bar{x})$ und den Propagator $G(\omega)$ durch $G^{BS}(\omega)$ an.

$$\Sigma(\bar{x}_1, \bar{x}_2, \omega) = \int \frac{d\omega'}{2\pi} K(\bar{x}_1) G^{BS}(\bar{x}_1, \bar{x}_2, \omega - \omega') X(\bar{x}_1, \bar{x}_2, \omega') K(\bar{x}_2)$$

Wir führen eine Bloch-Fourier-Transformation durch und fügen folgende Darstellung ein:

$$G_{\bar{q}_1}^{BS}(\bar{k}_1 + \bar{p}_1, \bar{k}_2 + \bar{p}_2, \omega) = \sum_{\lambda_2} \Psi_{\bar{q}_1, \lambda_2}(\bar{k}_1 + \bar{p}_1) \Psi_{\bar{q}_1, \lambda_2}^*(\bar{k}_2 + \bar{p}_2) G_{\bar{q}_1, \lambda_2}^{BS}(\omega)$$

Im Bereich kleiner Anregungsenergien ist folgende Beziehung in guter Näherung erfüllt:

$$X_{\bar{k}}(\bar{\kappa}_1 + \bar{\rho}_1, \bar{\kappa}_2 + \bar{\rho}_2, \omega) = F(\bar{\kappa}_1 + \bar{\rho}_1) A_{\bar{k}}(\omega) F^*(\bar{\kappa}_2 + \bar{\rho}_2)$$

Wir erhalten

$$\int \frac{d\bar{q}}{Vol_{BZ}} e^{-i\bar{q}(\bar{R}_{j_2} - \bar{R}_{j_1})} \Sigma_{\bar{q}}(\bar{\kappa}_1 + \bar{\rho}_1, \bar{\kappa}_2 + \bar{\rho}_2, \omega) = \int \frac{d\omega}{2\pi} K(\bar{\kappa}_1 + \bar{\rho}_1) \int \frac{d\bar{q}_1}{Vol_{BZ}} e^{-i\bar{q}_1(\bar{R}_{j_2} - \bar{R}_{j_1})} \cdot \sum_{\lambda_1} \Psi_{\bar{q}_1, \lambda_1}(\bar{\kappa}_1 + \bar{\rho}_1) \Psi_{\bar{q}_1, \lambda_1}^*(\bar{\kappa}_2 + \bar{\rho}_2) G_{\bar{q}_1, \lambda_1}^{BS}(\omega) \int \frac{d\bar{k}}{Vol_{BZ}} e^{-i\bar{k}(\bar{R}_{j_2} - \bar{R}_{j_1})} F(\bar{\kappa}_1 + \bar{\rho}_1) A_{\bar{k}}(\omega) F^*(\bar{\kappa}_2 + \bar{\rho}_2) K(\bar{\kappa}_2 + \bar{\rho}_2)$$

Vergleich der linken Seite mit der rechten Seite liefert $\bar{q} = \bar{q}_1 + \bar{k}$ und

$$\Sigma_{\bar{q}}(\bar{\kappa}_1 + \bar{\rho}_1, \bar{\kappa}_2 + \bar{\rho}_2, \omega) = \int \frac{d\omega}{2\pi} K(\bar{\kappa}_1 + \bar{\rho}_1) \cdot \sum_{\lambda_1} \Psi_{\bar{q}-\bar{k}, \lambda_1}(\bar{\kappa}_1 + \bar{\rho}_1) \Psi_{\bar{q}-\bar{k}, \lambda_1}^*(\bar{\kappa}_2 + \bar{\rho}_2) G_{\bar{q}-\bar{k}, \lambda_1}^{BS}(\omega) \int \frac{d\bar{k}}{Vol_{BZ}} F(\bar{\kappa}_1 + \bar{\rho}_1) A_{\bar{k}}(\omega) F^*(\bar{\kappa}_2 + \bar{\rho}_2) K(\bar{\kappa}_2 + \bar{\rho}_2)$$

Nun können wir in Gleichung A7.1 einsetzen und erhalten

$$\Sigma_{\bar{q}, \lambda, \lambda'}(\omega) = \sum_{\lambda_1} \int \frac{d\bar{k}}{Vol_{BZ}} \left\{ \int \frac{d\omega}{2\pi} G_{\bar{q}-\bar{k}, \lambda_1}^{BS}(\omega - \omega) A_{\bar{k}}(\omega) \right\} \left\{ \sum_{\kappa_1} \int d\bar{\rho}_1 \Psi_{\bar{q}, \lambda}^*(\bar{\kappa}_1 + \bar{\rho}_1) K(\bar{\kappa}_1 + \bar{\rho}_1) F(\bar{\kappa}_1 + \bar{\rho}_1) \Psi_{\bar{q}-\bar{k}, \lambda_1}(\bar{\kappa}_1 + \bar{\rho}_1) \right\} \left\{ \sum_{\kappa_2} \int d\bar{\rho}_2 \Psi_{\bar{q}-\bar{k}, \lambda_1}^*(\bar{\kappa}_2 + \bar{\rho}_2) K(\bar{\kappa}_2 + \bar{\rho}_2) F^*(\bar{\kappa}_2 + \bar{\rho}_2) \Psi_{\bar{q}, \lambda'}(\bar{\kappa}_2 + \bar{\rho}_2) \right\}$$

Nun wollen wir abschätzen, wie groß die Außerdiagonalelemente ($\lambda \neq \lambda'$) im Vergleich zu den Diagonalelementen ($\lambda = \lambda'$) sind. Dazu genügt es das folgende Überlappintegral I zu betrachten¹⁴:

$$I = \sum_{\lambda_2} \int \frac{d\bar{k}}{Vol_{BZ}} \left\{ \sum_{\kappa_1} \int d\bar{\rho}_1 \Psi_{\bar{q},\lambda}^* (\bar{\kappa}_1 + \bar{\rho}_1) \Psi_{\bar{q}-\bar{k},\lambda_2} (\bar{\kappa}_1 + \bar{\rho}_1) \right\} \left\{ \sum_{\kappa_2} \int d\bar{\rho}_2 \Psi_{\bar{q}-\bar{k},\lambda_2}^* (\bar{\kappa}_2 + \bar{\rho}_2) \Psi_{\bar{q},\lambda'} (\bar{\kappa}_2 + \bar{\rho}_2) \right\}$$

Mit der LMTO-Darstellung der Blochwellenfunktion

$$\Psi_{\bar{q},\lambda} = \sum_{l=0}^{l_{\max}} \sum_{m=-l}^l \sum_{v=1}^2 c_{lm\kappa v}^{\bar{q}\lambda} R_{lv}(\rho, \kappa) Y_{lm}(\hat{\rho})$$

zerlegen wir die Ortsintegrale in Radial- und Winkelanteile

$$I = \sum_{\lambda_2} \int \frac{d\bar{k}}{Vol_{BZ}} \left\{ \sum_{\kappa_1} \int d\rho_1 \int d\hat{\rho}_1 \sum_{l,m,v} c_{lm\kappa_1 v}^{*\bar{q}\lambda} R_{lv}(\rho_1, \kappa_1) Y_{lm}(\hat{\rho}_1) \sum_{l',m',v'} c_{l'm'\kappa_1 v'}^{\bar{q}-\bar{k}\lambda_2} R_{l'v'}(\rho_1, \kappa_1) Y_{l'm'}(\hat{\rho}_1) \right\} \left\{ \sum_{\kappa_2} \int d\rho_2 \int d\hat{\rho}_2 \sum_{l'',m'',v''} c_{l''m''\kappa_2 v''}^{*\bar{q}-\bar{k}\lambda_2} R_{l''v''}(\rho_2, \kappa_2) Y_{l''m''}(\hat{\rho}_2) \sum_{l''',m''',v'''} c_{l'''m'''\kappa_2 v'''}^{\bar{q}\lambda'} R_{l'''v'''}(\rho_2, \kappa_2) Y_{l'''m'''}(\hat{\rho}_2) \right\}$$

und vereinfachen den Ausdruck unter Anwendung der Orthogonalität

$$I = \sum_{\lambda_2} \int \frac{d\bar{k}}{Vol_{BZ}} \left\{ \sum_{\kappa_1} \int d\rho_1 \sum_{l,m,v} c_{lm\kappa_1 v}^{*\bar{q}\lambda} R_{lv}(\rho_1, \kappa_1) \sum_{l',m',v'} c_{l'm'\kappa_1 v'}^{\bar{q}-\bar{k}\lambda_2} R_{l'v'}(\rho_1, \kappa_1) \delta_{ll'} \delta_{mm'} \right\} \left\{ \sum_{\kappa_2} \int d\rho_2 \sum_{l'',m'',v''} c_{l''m''\kappa_2 v''}^{*\bar{q}-\bar{k}\lambda_2} R_{l''v''}(\rho_2, \kappa_2) \sum_{l''',m''',v'''} c_{l'''m'''\kappa_2 v'''}^{\bar{q}\lambda'} R_{l'''v'''}(\rho_2, \kappa_2) \delta_{l''l'''} \delta_{m''m'''} \right\}$$

Wir vereinfachen weiter

$$I = \sum_{\lambda_2} \int \frac{d\bar{k}}{Vol_{BZ}} \left\{ \sum_{\kappa_1, l, m, v, v'} c_{lm\kappa_1 v}^{*\bar{q}\lambda} c_{lm\kappa_1 v'}^{\bar{q}-\bar{k}\lambda_2} \int d\rho_1 R_{lv}(\rho_1, \kappa_1) R_{l'v'}(\rho_1, \kappa_1) \right\}$$

$$\left\{ \sum_{\kappa_2, l'', m'', v'', v'''} \sum_{l'' m'' \kappa_2 v''}^{* \bar{q} - \bar{k} \lambda_2} c_{l'' m'' \kappa_2 v''}^{* \bar{q} \lambda'} \int d\rho_2 R_{l'' v''}(\rho_2, \kappa_2) R_{l'' v''}(\rho_2, \kappa_2) \right\}$$

und erhalten durch die Normierung der Radialwellenfunktionen

$$I \approx \sum_{\lambda_2} \int \frac{d\bar{k}}{Vol_{BZ}} \left\{ \sum_{\kappa_1, l, m} c_{lm\kappa_1 v}^{* \bar{q} \lambda} c_{lm\kappa_1 v}^{\bar{q} - \bar{k} \lambda_2} \right\} \left\{ \sum_{\kappa_2, l'', m''} c_{l'' m'' \kappa_2 v''}^{* \bar{q} - \bar{k} \lambda_2} c_{l'' m'' \kappa_2 v''}^{\bar{q} \lambda'} \right\}$$

$\bar{q} \in$ Impulsauflösung des Analysators

Dieser Ausdruck läßt sich nun für die Materialien $YBa_2Cu_3O_7$ und Sr_2RuO_4 aus den Bandstrukturdaten berechnen. Natürlich hängt das Ergebnis noch von der Lage des Bereiches in der Brillouin-Zone ab.

Ergebnis: Die Außerdiagonalelemente $\lambda \neq \lambda'$ sind ungefähr um den Faktor 100 kleiner als die Diagonalelemente $\lambda = \lambda'$.

Damit ergibt sich die einfachere Formel

$$\Sigma_{\bar{q}, \lambda}(\omega) = \sum_{\lambda_2} \int \frac{d\bar{k}}{Vol_{BZ}} \left\{ \int \frac{d\omega}{2\pi} G_{\bar{q} - \bar{k}, \lambda_2}^{BS}(\omega - \omega) A_{\bar{k}}(\omega) \right\} \left| \sum_{\kappa} \int d\bar{\rho} \Psi_{\bar{q}, \lambda}^*(\bar{\kappa} + \bar{\rho}) K(\bar{\kappa} + \bar{\rho}) F(\bar{\kappa} + \bar{\rho}) \Psi_{\bar{q} - \bar{k}, \lambda_2}(\bar{\kappa} + \bar{\rho}) \right|^2$$

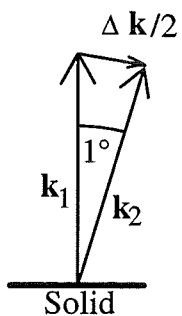
K ist reell

Anhang8: Photonenenergieabhängigkeit der Vielschichtrechnung ohne Matrixelemente

In Gleichung 53 wird über ein kleines Volumen in der Brillouin-Zone V_{BZ} und über den schmalen Δk_z -Bereich integriert. Mit einem konstanten Matrixelement ($A=1$) wird die Höhe des Photostroms durch die Größe der Integrationsbereiche I bestimmt.

$$I = V_{BZ} \Delta k_z$$

Wir berechnen zuerst $V_{BZ} = B_z \Delta q_x \Delta q_y$:



B_z ist die z -Ausdehnung der ganzen Brillouin-Zone, also unabhängig von E_γ . Δq_x , Δq_y , Δk_x und Δk_y sind gleich groß, wobei $\hbar \vec{k}$ der Photoelektronenimpuls und $\hbar \vec{q}$ der Bandelektronenimpuls ist.

$\sin(1^\circ) \approx \frac{\Delta k}{2k}$ lesen wir aus der Skizze ab.

$$V_{BZ} = B_z 4k^2 \sin(1^\circ)^2 = B_z 4\omega \sin(1^\circ)^2 \propto \omega$$

Nun berechnen wir Δk_z :

$$\Delta k_z = \sqrt{\omega_2} - \sqrt{\omega_1} = \sqrt{\omega + \Delta\omega} - \sqrt{\omega}$$

wobei ω die Photoelektronenenergie und $\Delta\omega$ die Energieauflösung des Elektronenanalysators ist.

Wir formen weiter um:

$$\Delta k_z = \sqrt{\omega} \left(\sqrt{1 + \frac{\Delta\omega}{\omega}} - 1 \right) \approx \sqrt{\omega} \left(1 + \frac{\Delta\omega}{\omega} - 1 \right) \propto \frac{1}{\sqrt{\omega}}$$

Damit ergibt sich für den gesamten Integrationsbereich

$$\boxed{I \propto \sqrt{\omega}}$$

Über den Energieerhaltungssatz ist die Photoelektronenenergie ω mit der Photonenergie E_γ verknüpft $E_\gamma + E_{\vec{q},\lambda} = \omega$. Damit ist I und der Photostrom ohne Matrixelemente ungefähr proportional zur Wurzel aus der Photonenenergie.

Anhang9: Näherung der komplexen Selbstenergie

In Anhang7 haben wir für die komplexe Selbstenergie die folgende Gleichung hergeleitet:

$$\Sigma_{\vec{q},\lambda}(\omega) = \sum_{\lambda_2} \int \frac{d\vec{k}}{Vol_{BZ}} \left\{ \int \frac{d\omega}{2\pi} G_{\vec{q}-\vec{k},\lambda_2}^{BS}(\omega - \omega) A_{\vec{k}}(\omega) \right\} |M|^2$$

mit $M = \sum_{\kappa} \int d\vec{p} \Psi_{\vec{q},\lambda}^*(\vec{k} + \vec{p}) K(\vec{k} + \vec{p}) F(\vec{k} + \vec{p}) \Psi_{\vec{q}-\vec{k},\lambda_2}(\vec{k} + \vec{p})$

K ist reell

Der Gleichung zerfällt in einen energieabhängigen Teil (das Energieintegral) und in ein von ω unabhängiges Matrixelement. Wir suchen einen sinnvollen Näherungsausdruck für die Selbstenergie. Dieser Ausdruck soll von der Elektronenenergie ω abhängen.

1. Näherung: $M = 1$

Nun betrachten wir die komplexe Funktion $A_{\vec{k}}(\omega)$ näher:

- $A_{\vec{k}}(\omega)$ erfüllt die Kramers-Kronig-Relation

$$\text{Re } A_{\vec{k}}(\omega) = \frac{2}{\pi} \int_0^{\infty} d\omega' \frac{\omega' \text{Im } A_{\vec{k}}(\omega')}{\omega'^2 - \omega^2}$$

- $\text{Im } A_{\vec{k}}(\omega)$ hat bei Spinfluktuationen in $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ besonders große Beiträge im Bereich um $\omega \approx 10-100\text{meV}$ und für $\vec{k} \approx (110)$.

2. Näherung: $A_{\vec{k}}(\omega)$ ist in diesem Bereich konstant

Wir erhalten den einfacheren Ausdruck

$$\Sigma_{\vec{q}}(\omega) \propto \sum_{\lambda_2} \int \frac{d\vec{k}}{Vol_{BZ}} G_{\vec{q}-\vec{k},\lambda_2}^{BS}(\omega - \omega_0) \quad \begin{matrix} \vec{k} = (110) \\ \omega_0 \approx 10-100\text{meV} \end{matrix}$$

Wir transformieren das Impulsintegral über \vec{k} in ein Integral über $\vec{p} = \vec{q} - \vec{k}$.

$$\Sigma(\omega) \propto \sum_{\lambda_2} \int \frac{d\vec{p}}{Vol_{BZ}} G_{\vec{p},\lambda_2}^{BS}(\omega - \omega_0)$$

Der Energiewert ω_0 verschiebt die Greensche Funktion nur um 10-100meV.

Nun haben wir für $\text{Im}\Sigma$ den Ausdruck

$$\text{Im}\Sigma(\omega) \propto \sum_{\lambda_2} \int \frac{d\vec{p}}{\text{Vol}_{BZ}} \text{Im} G_{\vec{p},\lambda_2}^{BS}(\omega - \omega_0)$$

Einsetzen der Gleichung

$$\text{Im} G_{\vec{p},\lambda_2}^{BS}(\omega) = -\pi\delta(\omega - E_{\vec{p},\lambda_2})$$

liefert

$$\text{Im}\Sigma(\omega) \propto \sum_{\lambda_2} \int \frac{d\vec{p}}{\text{Vol}_{BZ}} \delta(\omega - E_{\vec{p},\lambda_2} - \omega_0)$$

Nun können wir mit Hilfe der Formel für die Zustandsdichte (Gleichung 20) den Imaginärteil der Selbstenergie näherungsweise berechnen:

$$\boxed{\text{Im}\Sigma(\omega) \propto Z(\omega - \omega_0)}$$

Der Imaginärteil der Selbstenergie ist also in grober Näherung proportional zur Zustandsdichte.

Den Realteil der Selbstenergie berechnen wir aus dem Imaginärteil durch Anwendung der Dispersionsrelation:

$$\boxed{\text{Re}\Sigma(\omega) = \frac{1}{\pi} \int d\omega' \frac{\text{Im}\Sigma(\omega')}{\omega' - \omega}}$$

Literaturverzeichnis

- 1 J. G. Bednorz und K. A. Müller, Z. Phys. B **64**, 189 (1986)
- 2 M. K. Wu, J. R. Ashburn, C. J. Torng, P. H. Hor, R. L. Meng, L. Goa, Z. J. Huang, Y. Q. Wang, K. Forster, J. Vassiliou und C. W. Chu, Phys. Rev. Lett. **58**, 908+911 (1987)
- 3 W. Kohn und L. J. Sham, Phys. Rev. **140**, A1133 (1965)
- 4 K. Kohn und N. Rostoker, Phys. Rev. **94**, 1111 (1954)
- 5 J. Koringa, Physika, **13**, 392 (1947)
- 7 O. K. Andersen, 1973 Solid State Commun. **13**, 133
O. K. Andersen, 1975 Phys. Rev. B. **12**, 3084
- 8 Z. Szotek, W. M. Temmerman, H. Winter, Phys. Rev. B **47**, 1184 (1993)
Phys. Rev. B **47**, 4029 (1993)
Phy. Rev. Lett. **72**, 1244 (1994)
- 9 L. V. Keldysh, Soviet Physics JETP, Volume 20, Number 4, (1965), Seite 1018
- 10 C. Caroli, Physical Review B, Volume **8**, Number 10, (1973), Seite 4552
- 11 P. J. Feibelman, D. E. Eastman, Physical Review B, Vol. **10**, Num. 12, Seite 4932
- 12 H. Romberg, Dissertation Karlsruhe, KfK 4926 (1991)
- 13 B. Seibel, Dissertation Karlsruhe, FZKA 5892 (1997)
- 14 R. Schütz, Dissertation Karlsruhe, FZKA 5807 (1996)
- 15 Y. Sakisaka, T. Komeda, T. Maruyama, M. Onchi, Phys. Rev. B, Vol **39**, Number 4, (1989), Seite 2304
- 16 J. Tobin, C. Olson, C. Gu, J. Liu, F. Solal, M. Fluss, R. Howell, J. O'Brien, H. Radosky, P. Sterne, Phys. Rev. B, Vol **45** (1992), Seite 5563
- 17 R. Lui, B. Veal, A. Paulikas, J. Downey, H. Shi, C. Olson, C. Gu, A. Arko, J. Joyse, Phys. Rev. B, Vol **45** (1992), Seite 5614
- 18 D. Lu, M. Schmidt, T. Cummins, S. Schuppler, F. Lichtenberg, J. Bednorz, Phys. Rev. Letters, Band **76**, Seite 4845 (1996)
- 19 L. Ley, M. Cardona, "Photoemission in Solids", Springer Heidelberg (1979)
- 20 N. Schröder, S. Weiß, R. Böttner, S. Marquardt, S. Ratz, E. Dietz, U. Gerhardt, G. Ecke, H. Rößler, Th. Wolf, Physica C, 218 (1993) 220-228
- 21 J. Jorgensen, B. Veal, A. Paulikas, L. Nowicki, G. Grabtree, H. Claus, W. Kwok, Physical Review B, Vol. **41**, Number 4 (1990), Seite 1863
- 22 T. Vogt, D. Buttrey, Physical Review B, Vol. **52**, Number 14 (1995), Seite 52
- 23 R. V. Kasowski, P. Soukiassian, G. Collin, Solid State Communications Vol. **77**, No. 2, Seite 135-139 (1991)
- 24 M. Lindroos, A. Bansil, J. Phys. Chem. Solids, Vol. **52**, No. 11/12, Seite 1447-1455 (1991)

- 25 B. W. Veal, Chun Gu J. of Electron Spectroscopy and Related Phenomena 66, Seite 321-357 (1994)
- 26 J. C. Campuzano, G. Jennings, M. Faiz, I. Beaulaigue, B. W. Veal, J. Z. Liu, A. P. Paulikas, K. Vandervoort und H. Claus, Phys. Rev. Lett. Vol. 64, Number 19, Seite 2308 (1990)
- 27 J. C. Campuzano, G. Jennings, A. J. Arko, B. W. Veal und R. Benedek, J. Phys. Chem. Solids, Vol. 52, No. 11/12, Seite 1411-1417 (1991)
- 28 M. Lindroos und A. Bansil, J. Phys. Chem. Solids, Vol. 52, No. 11/12, Seite 1447-1455 (1991)
- 29 M. Lindroos, A. Bansil, K. Gofron, J. C. Campuzano, H. Ding, R. Liu und W. Veal, J. Phys. Chem. Solids, Vol. 53, No. 12, Seite 1541-1548 (1992)
- 30 M. Lindroos, A. Bansil, K. Gofron, J. C. Campuzano, H. Ding, R. Liu und W. Veal, Physica C 212, Seite 347-351 (1993)
- 31 M. Lindroos, A. Bansil, K. Gofron und J. C. Campuzano, J. Phys. Chem. Solids, Vol. 54, No. 10, Seite 1185-1192 (1993)
- 32 A. Bansil, Materials Science Forum Vols. 175-178, Seite 819-830 (1995)
- 33 J. B. Pendry, Surface Science 57, Seite 679-705 (1976)