

## 5 Elektronendynamik in Magnesiumdiborid

In konventionellen Supraleitern führt die Kopplung von Elektronen und Gitter zu einer attraktiven Wechselwirkung zwischen zwei Elektronen und, bei der Abkühlung unter die Supraleitungs-Sprungtemperatur  $T_C$ , zur Entstehung von Cooper-Paaren. In der supraleitenden Phase verschwindet der elektrische Gleichstrom-Widerstand, und durch die Energie-Absenkung der Cooper-Paare entsteht eine Energielücke am Fermi-Niveau.

Im März 2001 veröffentlichten Nagamatsu *et al.*, dass Magnesiumdiborid unterhalb einer Temperatur von 39 K supraleitend wird [Nag01]. Erste Isotopen-Austausch-Experimente [Bud01] weisen darauf hin, dass sich  $\text{MgB}_2$  entsprechend einem klassischen Supraleiter verhält und die Sprungtemperatur, wie durch die Bardeen-Cooper-Schrieffer-Theorie [Bar57] beschrieben, einen Isotopeneffekt zeigt. Die höchste in metallischen Systemen gefundene Sprungtemperatur ( $\text{Nb}_3\text{Ge}$ ,  $\text{YPd}_5\text{B}_3\text{C}_{0,3}$ ) betrug bis zu dieser Zeit 23 K. In sog. Hochtemperatur-Supraleitern werden inzwischen Sprungtemperaturen von 135 K erreicht, jedoch ist der Supraleitungsmechanismus in den keramischen Materialien noch weitgehend unverstanden.

An die Entdeckung der Supraleitung in Magnesiumdiborid knüpfen sich seither zahlreiche Hoffnungen.  $\text{MgB}_2$  ist ein Typ-2-Supraleiter mit sehr hohen Werten für das obere kritische Magnetfeld [Mul01]. Solche Werte lassen  $\text{MgB}_2$  als interessantes Material für supraleitende Drähte erscheinen. Auch die Drahtherstellung aus dem binären Material wird vermutlich einfacher sein als aus supraleitenden Kupraten. Weiterhin werden noch höhere Sprungtemperaturen ähnlicher Verbindungen (z. B. Lithiumborocarbide,  $T_C \sim 100$  K, [Ros02]) erwartet. Neben diesen Anwendungsaspekten entstand in den letzten 20 Monaten ein umfassenderes Verständnis der außergewöhnlichen Supraleitungseigenschaften in  $\text{MgB}_2$  (z. B. [Cho02b, Tsu01, Pic02]). Kernpunkte sind dabei die Art des Supraleitungsmechanismus und folglich die Stärke der Elektron-Phonon-Wechselwirkung in dem Supraleiter.

Die hohe Sprungtemperatur stimulierte nicht zuletzt auch unsere zeitaufgelösten Messungen. Zum einen sollte die Stärke der Elektron-Phonon-Kopplung untersucht werden. Zum anderen wurde  $\text{MgB}_2$  als Modellsystem ausgesucht, weil erwartet wurde, dass die Relaxationsdynamik maßgeblich durch Elektron-Phonon-Streuung beeinflusst ist. Weiterhin sollte untersucht werden, wie die Elektronendynamik in der supraleitenden Phase im Vergleich zur normalleitenden Phase abläuft.

### 5.1 Struktur und elektronische Eigenschaften

Magnesiumdiborid bildet eine Schichtstruktur, in der die Bor-Atome wie die Kohlenstoffe in Graphit in einer hexagonalen Lagenstruktur angeordnet sind. Zwischen den Ebenen,

über dem Zentrum der Hexagone, liegen die Magnesium-Atome. Die Struktur ist also analog zu der von perfekt interkaliertem Graphit. Wegen der geringen Massenzahlen v. a. von Bor erstrecken sich die Phononenfrequenzen bis etwa  $800 \text{ cm}^{-1}$  [Kon01]. Folgt man dem Ausdruck für die Sprungtemperatur aus der BCS-Theorie,  $T_C = 1,14 \hbar \omega_{ph} / k_B \cdot \exp(-1/\lambda)$ , kann eine hohe typische Phononenfrequenz  $\omega_{ph}$  auch bei moderaten Werten  $\lambda$  für die Elektron-Phonon-Kopplung zu hohen Sprungtemperaturen führen.

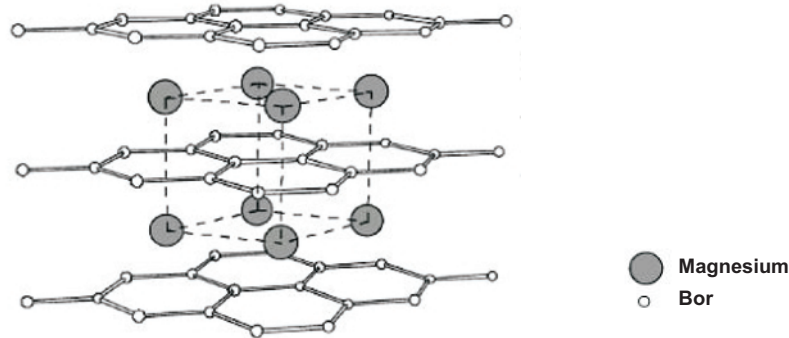


Abbildung 5.1: Gitterstruktur von  $\text{MgB}_2$ , nach [oWaM02].

Die elektronische Struktur ist stärker dreidimensional ausgeprägt als in einem Graphitkristall. Die planaren  $sp^2$ -Hybridorbitale des Bor bilden die wichtigsten bindenden Zustände und ein quasi-zweidimensionales Band. Das  $\pi$ -Band aus den Bor- $p_z$ -Orbitalen dispergiert in drei Dimensionen und ist durch den Einfluss des Magnesiums energetisch abgesenkt. Dadurch schneidet die Fermi-Energie, anders als bei Graphit, die  $\sigma$ -Bänder, und es entstehen dort zwei lochartige zylindrische Fermi-Flächen [Web01]. Die Magnesium-Atome liegen ionisiert vor [Kor01]. In Abbildung 5.2 ist eine Bandstruktur von  $\text{MgB}_2$  gezeigt.

Nach den Rechnungen von Kong *et al.* koppeln die Elektronen in den teilgefüllten  $\sigma$ -Bändern sehr stark an die hochfrequente Bor-Streckschwingung. Der Grund hierfür ist die asymmetrische Ladungsverteilung der teilgefüllten bindenden  $\sigma$ -Bänder in Bezug auf die Bor-Atomorte. Die optische Streckschwingungsmode wirkt so entweder attraktiv oder repulsiv auf die einzelnen  $\sigma$ -Zustände und bewirkt demnach eine starke Wechselwirkung zwischen Kernschwingungen und Elektronen. Weiterhin gibt es eine moderate Kopplung zwischen den Phononen und den  $\pi$ -Elektronen sowie den  $\sigma$ -Elektronen über das gesamte Phononenspektrum, die jedoch um einen Faktor 3–4 kleiner ist [Kon01].

Detailliertere Arbeiten zur elektronischen Struktur [Cho02a] zeigen, dass die unterschiedlich starken Kopplungs-Mechanismen zu zwei Energielücken führen. Bei verschwindender Temperatur ist die größere Bandlücke von der Kopplung an die optischen Bor-Streckschwingungen im Mittel  $\Delta = 6,8 \text{ meV}$  breit und die kleinere der  $\pi$ -Elektronen im Mittel  $\Delta = 1,8 \text{ meV}$  breit. Die Struktur einer doppelten Supraleitungs-Bandlücke ist u. a. konsistent mit Photoemissions-Messungen [Tsu01], Messungen der spezifischen Wärme [Wan01, Bou01] und der Beobachtung der Mg- und B-Isotopen-Effekte auf  $T_C$  [Bud01, Hin01]. Die Autoren [Cho02a] geben eine berechnete mittlere Sprungtemperatur von 39 K an.

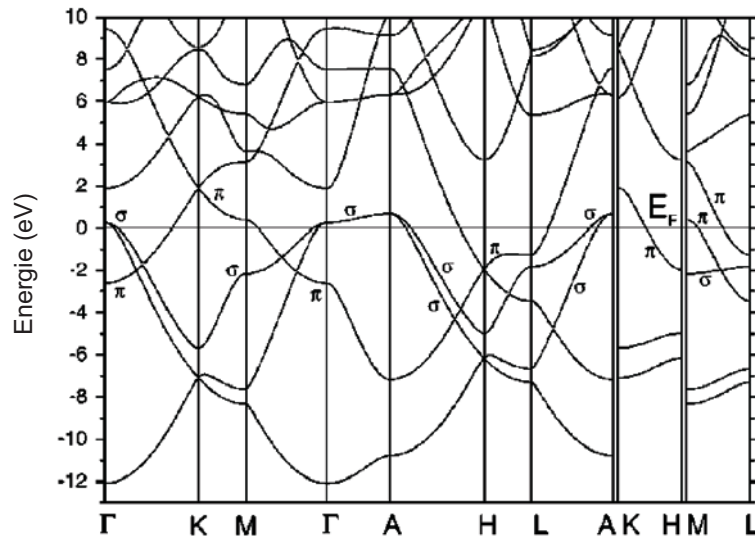


Abbildung 5.2: Schnitte durch die Bandstruktur von  $\text{MgB}_2$  aus *ab-initio*-Rechnungen [Zhu01].

## 5.2 Von der Zwei-Photonen-Photoemission zur Elektron-Phonon-Kopplung

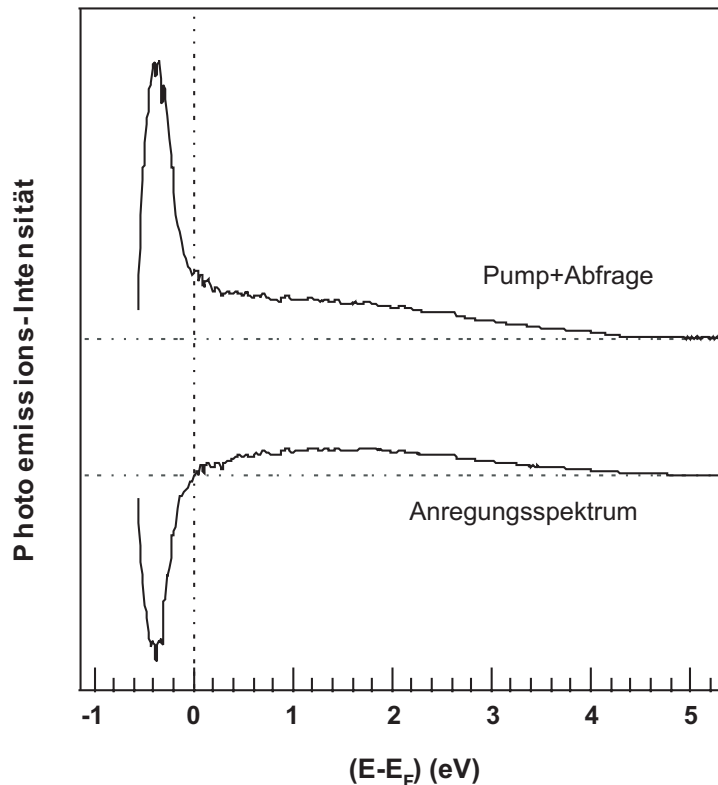
Der experimentelle Ansatz zur Untersuchung der Kopplungsstärke mittels 2PPE besteht hier darin, das Elektronengas optisch zu heizen und die Abkühlung auf die Gittertemperatur zu verfolgen. Dazu nimmt man Photoemissionsspektren zu bestimmten Verzögerungszeiten nach der optischen Anregung auf. Für Informationen zum experimentellen Aufbau und die Probenpräparation, bzw. Halterung des polykristallinen Materials sei auf die entsprechenden Kapitel verwiesen (3, 3.1.1, 3.2.5).

### 5.2.1 Spektroskopie

Ein Photoemissionsspektrum von der  $\text{MgB}_2$ -Oberfläche für simultane Anregung und Abfrage zeigt der obere Teil von Abbildung 5.3. Darunter ist das Anregungsspektrum, also die Differenz von Spektren des gepumpten und ungepumpten Systems, dargestellt. Die Kalibrierung der Energieachse beruht auf der Annahme, dass der Übergang vom Elektronen- zum Lochsignal bei  $(E - E_F) = 0$  liegt.<sup>1</sup> Die Austrittsarbeit der Probe beträgt demnach  $3,5_{-0,2}^{+0,4}$  eV. Im Vergleich zu dem Ergebnis einer *ab-initio*-Bandstrukturrechnung [Sil01] liegt der experimentelle Wert niedrig. Die theoretischen Ergebnisse von 4,2 eV für eine Magnesium-terminierte Oberfläche und 6,1 eV für eine Bor-terminierte Oberfläche legen jedoch nahe, dass die Oberflächen in der untersuchten Probe mit einer Mg-Lage abschließen.<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Zur grundsätzlichen Diskussion dieser Annahme siehe 7.2.

<sup>2</sup>In unseren Experimenten wurde die Austrittsarbeit einer polykristallinen Probe gemessen, die von den berechneten Werten für Einkristalloberflächen abweichen kann. Beispielsweise sind die Austritts-



**Abbildung 5.3:** Photoemissionsspektren von polykristallinem Magnesiumdiborid. (Pump:  $h\nu = 2,01$  eV; Abfrage:  $2h\nu = 4,02$  eV,  $T_l = 25$  K).

In den Photoemissionsspektren gibt es, vermutlich auf Grund der hier zu geringen Energieauflösung, keinen deutlichen Hinweis auf Energielücken, wie sie in Arbeiten mit hochauflösender Photoelektronen-Spektroskopie gefunden wurden [Tsu01]. Bei 25 K ist die Breite der größeren Energielücke 5,8 meV. Eine Energielücke dieser Breite ist im Spektrum jedoch durch die endliche Energieauflösung des Flugzeitspektrometers (hier 15 meV) und besonders die spektrale Breite der Abfrage-Laserpulse von typischerweise 35 meV verbreitert und in unserem Experiment nicht mehr zu erkennen.

Die Anregungsspektren sind asymmetrisch, die Lochverteilung hat eine deutlich höhere Intensität als die Elektronenverteilung oberhalb des Fermi-Niveaus. Entsprechend ist die Verteilung nicht durch eine Gleichgewichts-Beschreibung – die Differenz zweier Fermi-Dirac-Verteilungen – anpassbar. Ein Beispiel für den nicht-thermischen Charakter der Spektren ist die endliche Intensität bei hohen Energien ( $(E - E_F) \gtrsim 2$  eV), die sich durch Fermi-Dirac-Funktionen mit physikalisch sinnvollen Temperaturen nicht beschreiben lässt.

In einigen Messungen von  $\text{MgB}_2$ , die nicht in die Auswertung eingingen, detektiert man starke Multi-Photonen-Emission durch den Pumpimpuls. Ähnliche Beobachtungen wurden an rauen [Aes95] und stufenreichen [Gah02a] Kupferkristallen gemacht. Möglicherweise

---

arbeiten der niederindizierten Oberflächen von Platin und Natrium um 0,2 eV bis 0,5 eV niedriger als die Austrittsarbeit der polykristallinen Proben [LB94].

koppelt das Licht in der Nähe von Stufen und Defekten sehr stark an die Kristallelektronen und heizt das Elektronengas lokal zu hohen Temperaturen. Nimmt man an, dass die Probe bei allen Messungen an MgB<sub>2</sub> außerordentlich inhomogen durch den Pumpuls angeregt würde, können auch die beobachteten nicht-thermischen Elektronenverteilungen entstehen. Um resultierende Unsicherheiten bei der Auswertung auszuschließen, wurde nicht die genaue Form der Spektren ausgewertet und durch Temperaturen beschrieben, sondern die Anregungsdichte im Detektionsvolumen aus dem PE-Spektrum bestimmt und ausgewertet.

### 5.2.2 Dynamik

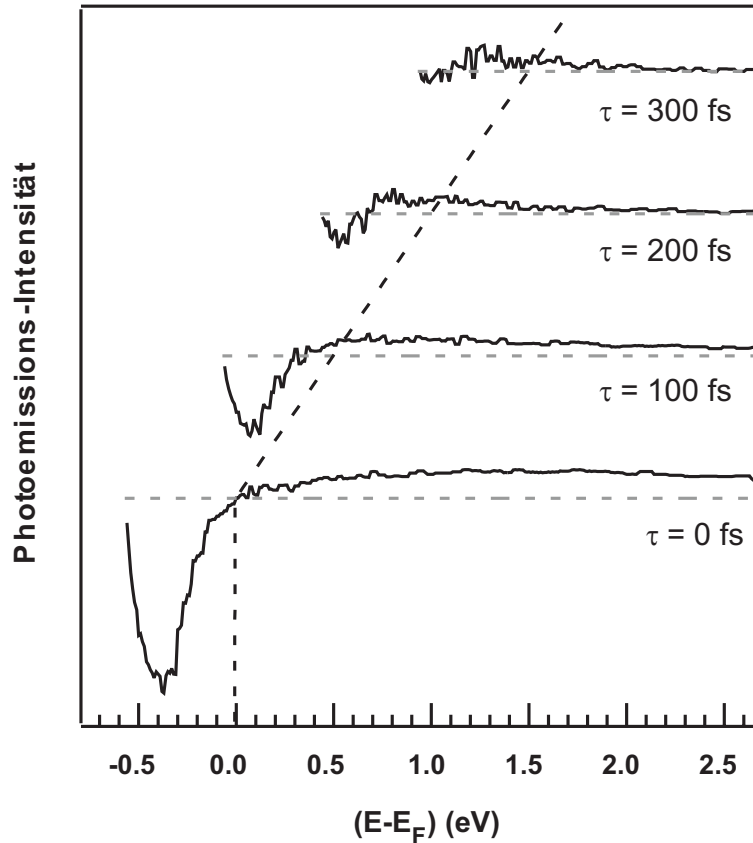
Eine angeregte Elektronenverteilung ist in den Messungen bis etwa 600 fs nach der 50 fs dauernden Anregung (FWHM) zu erkennen. Bei größeren Zeiten ist das Anregungsspektrum unter die Detektionsgrenze abgeklungen. Zu keiner nach der Anregung noch messbaren Zeit weist das Elektronenspektrum auf ein Gleichgewicht innerhalb des Elektronengases hin, d.h., eine Beschreibung durch eine Fermi-Dirac-Funktion ist nicht zufriedenstellend. Man beobachtet jedoch eine Umverteilung der Elektronen zu niedrigeren Energien und eine Veränderung der Spektrenform, ein möglicher Hinweis auf Elektron-Elektron-Streuung. Außerdem nimmt die Gesamt-Intensität der Anregungsspektren mit der Zeit ab, was bei Vernachlässigung von diffusivem Transport auf *e-ph*-Kopplung schließen läßt. Allerdings kann man im Gegensatz zu den Messungen an Kohlenstoff-Systemen weder in den Spektren noch in den Kreuzkorrelationen eine klare Trennung zwischen verschiedenen Phasen der Relaxationsdynamik festmachen; die *e-e*- und *e-ph*-Prozesse konkurrieren also auf einer ähnlichen Zeitskala miteinander. Der Transport von angeregten Elektronen von der Oberfläche in den Volumenkristall wird wegen der polykristallinen Struktur der Probe als vernachlässigbar angenommen, weil ähnlich wie bei Graphit Stapelfehler den Transport bzw. die Diffusion behindern. Defektstreuung ist vornehmlich elastisch und trägt nicht zur Energierelaxation bei.

Die Elektron-Elektron-Streuung bewirkt nur eine Änderung der Energieverteilung, aber keine Energieabnahme im Elektronengas. Deshalb ist die Energieabnahme unter Ausschluss von Transportprozessen nur eine Auswirkung der Kopplung des Elektronengases an das Gitter. Zur Messung der Elektron-Phonon-Kopplungsstärke wird daher die Energieabnahme im elektronischen System als Funktion der Zeit nach der Anregung ausgewertet. Die Energiedichte der Anregung  $n$  (im Folgenden nur „Energiedichte“) im Elektronengas wurde durch Integration des energiegewichteten Spektrums:

$$n \propto 2 \cdot \int_{E=E_F}^{\infty} I(E) \cdot E dE \quad (5.1)$$

erhalten. Die Proportionalitätskonstante wurde mit Hilfe der aus dem Pumpuls absorbierten Energie ermittelt. Die Energiedichte-Berechnung beruhte auf folgenden Parametern: optische Eindringtiefe bei  $\lambda = 615$  nm,  $d = 10$  nm; absorbierte Pulsenergie  $E_{Puls} = 5$  nJ, Radius des Laserprofils auf der Probe  $r_L = 125$   $\mu$ m.

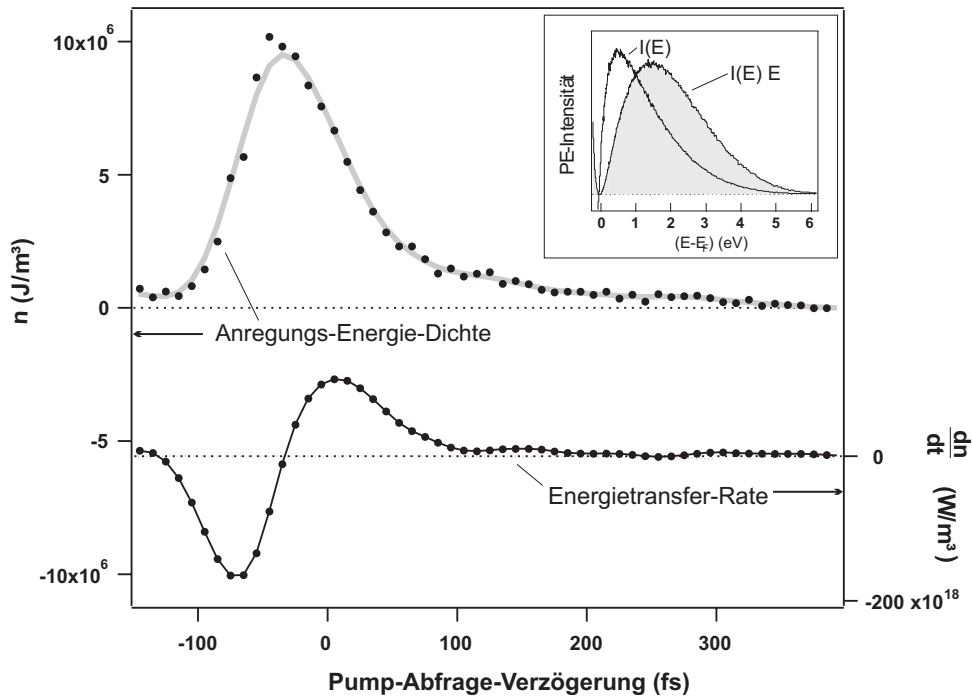
Die Energietransfer-Rate ergibt sich durch zeitliches Ableiten der Energiedichte nach der optischen Anregung, wie in Abbildung 5.5 dargestellt. Vor dem Ableiten wurde der



**Abbildung 5.4:** Zeitentwicklung der Anregungsspektren von  $\text{MgB}_2$ , ( $h\nu_{Pump} = 2,01 \text{ eV}$ ,  $h\nu_{Probe} = 4,02 \text{ eV}$ , Gittertemperatur  $T_l = 25 \text{ K}$ ).

zeitliche Verlauf der Energiedichte geglättet („smoothing spline“), um Unstetigkeiten der Ableitung auf Grund experimenteller Schwankungen zu vermeiden (breite, hellgraue Kurve).

Der nächste Schritt von der Energietransfer-Rate zu einem Ausdruck für die Elektron-Phonon-Kopplungsstärke  $\lambda$  bedarf eines Modells für die Elektron-Gitter-Wechselwirkung. Häufig wird die Formulierung von Allen (Gl. (2.18)) verwendet, bei deren Formulierung mit Temperaturen jedoch ein internes Gleichgewicht des elektronischen sowie des phononischen Systems zu Grunde gelegt wird. Um unser Messergebnis im Rahmen dieses Modells zu diskutieren, wurde die Energiedichte  $n$  in eine Temperaturerhöhung  $\Delta T = (T_e - T_l) = \sqrt{2(n + n_0)/\gamma}$  mit der in  $T$  linearen spezifischen Wärmekapazität  $\gamma = 2,62 \text{ mJ/mol}\cdot\text{K}^2$  [Cho02b] und der Dichte von  $\text{MgB}_2$   $\rho = 2,63 \text{ g/cm}^3$  [Wan01] umgerechnet.  $n_0$  gibt die Energiedichte bei der Gittertemperatur  $T_l$  an. Die Darstellung der Energietransfer-Rate  $\frac{dn}{dt}$  als Funktion der entsprechenden Temperatur ist als Teilabbildung in Grafik 5.6 enthalten. Daran kann noch einmal der Verlauf des Experimentes veranschaulicht werden. Zunächst absorbiert das Elektrogas Energie aus dem Pump-Laserpuls (entsprechend einer negativen Rate) und die elektronische Temperatur steigt. Haben Temperatur und Energiedichte ein Maximum erreicht, kehrt sich die Rate um und der Energietransfer an das Gitter (hier positiv)

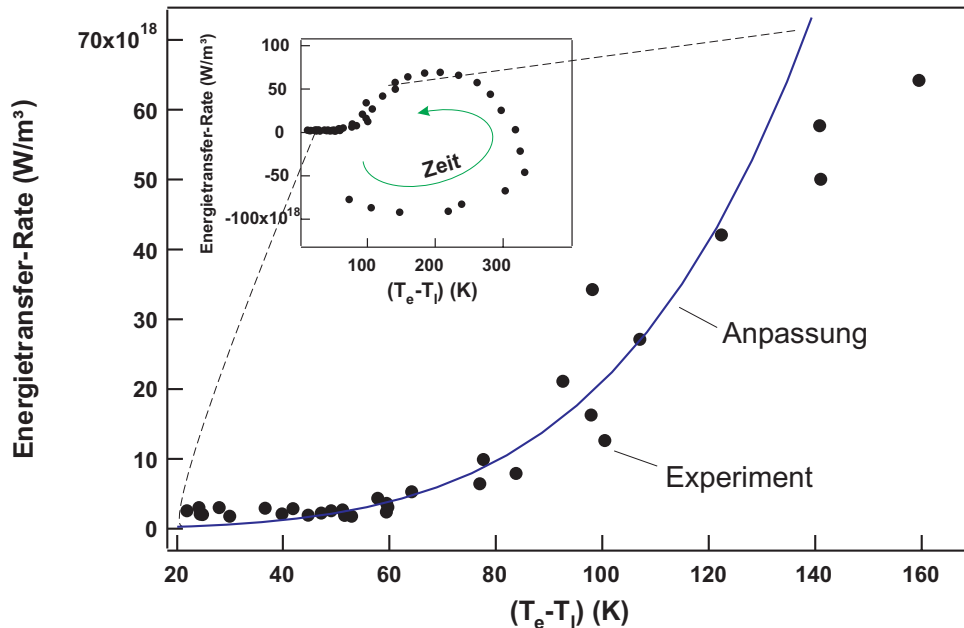


**Abbildung 5.5:** Energiedichte im Elektronengas nach der optischen Anregung. Der absolute Wert gibt die Differenz zum Gleichgewichtszustand an. Die zeitliche Ableitung der Energiedichte ist die Energietransfer-Rate  $\frac{dn}{dt}$ . Die Teilabbildung oben rechts zeigt ein PE-Spektrum und ein Energie-gewichtetes PE-Anregungsspektrum.

wird deutlich. Die Kühlung setzt sich so lange fort, bis sich die Temperaturen beider Subsysteme angeglichen haben. Der Hauptteil der Abbildung stellt einen Ausschnitt dieser Kurve dar. Um der Modellvorstellung einer thermischen Elektronenverteilung möglichst nahe zu kommen und den Näherungsbedingungen  $T_e, T_l \ll \Theta_D$  zu genügen, wurde nur der vergrößert gezeigte Teil der Daten bei großen Verzögerungszeiten quantitativ ausgewertet. Bei Temperaturen  $T_e, T_l \ll \Theta_D$  ist folgende Tieftemperatur-Näherung nach Allen gültig:

$$H(T_e, T_l) = \gamma \frac{144 \zeta(5) k_B}{\pi \hbar} \frac{\lambda}{\Theta_D^2} (T_e^5 - T_l^5). \quad (5.2)$$

Passt man die experimentellen Daten mit dieser Funktion an, erhält man direkt einen Wert für die Kopplungsstärke  $\lambda$ . Mit den Werten  $\zeta(5) = 1,0369\dots$ ,  $\Theta_D = 900$  K (Mittelwert aus [Wei01, Ich02b, Abd02, Bha02, Bou01]), einer absorbierten Laser-Energiedichte von  $1 \cdot 10^7$  J/m<sup>3</sup>, erhält man einen Wert von  $\lambda = (0,73 \pm 0,45)$ . Der angegebene Fehler resultiert als Standardabweichung aus der Schwankung zwischen verschiedenen Messungen. Die Gittertemperatur wurde bei der Auswertung als konstant gesetzt, weil die Erwärmung des Gitters aus den PE-Spektren auf  $\ll 15$  K abgeschätzt werden konnte. Die Messungen der Energietransfer-Raten bei unterschiedlichen Probertemperaturen im Bereich von 25 K bis 90 K zeigen innerhalb der Fehlergrenzen keine klare Abhängigkeit von  $\lambda/\Theta_D^2$  von der Gittertemperatur.



**Abbildung 5.6:** Energietransfer-Rate vom Elektronengas an das Gitter als Funktion der aus  $(T_e - T_l) = \sqrt{2(n + n_0)/\gamma}$  ermittelten Temperatur. Positive Werte entsprechen einem Energiefluss vom elektronischen System zum Gitter hin. Negative Werte treten auf Grund der Energiezunahme durch die Laseranregung auf. Die durchgezogene Linie gibt eine Anpassung von Gl. (5.2) an.

Der Wert für die Kopplungsstärke  $\lambda$  steht für eine starke Elektron-Phonon-Kopplung im Vergleich mit Kupfer ( $\lambda = 0,08$ ) oder Graphit ( $\lambda = 3 \cdot 10^{-4}$ ) (siehe 6.1). Die Kopplungskonstante würde eine Elektron-Phonon-medierte Paarbildung als Supraleitungsmechanismus erlauben, wie durch theoretische Arbeiten vorgeschlagen wurde [Kon01]. Die Kopplungskonstante ist konsistent mit jüngeren *ab-initio*-Rechnungen für  $\lambda = 0,61$  von Choi *et al.* [Cho02b] und früheren theoretischen Werten im Bereich von  $\lambda = 0,7$  [Kor01],  $\lambda = 0,87$  [Kon01] bis  $\lambda = 0,95$  [An 01]. Die bisherigen experimentellen Werte wurden meist aus indirekteren Messungen – über die Wärmekapazität des Elektronengases – erhalten:  $\lambda = 0,58$ , [Wan01] oder  $\lambda = 0,61$  [Bou01].<sup>3</sup>

Die Messung der Elektron-Phonon-Kopplung durch zeitaufgelöste Photoemission ist

<sup>3</sup>Eine Kopplungskonstante  $\lambda$  gibt nur den Mittelwert der Kopplungsstärke über die Fermi-Fläche wieder. Choi *et al.* [Cho02b] errechnen, dass die Anisotropie der Kopplung in  $\text{MgB}_2$  erst für die hohe mittlere Kopplung verantwortlich ist. Einen deutlichen Beleg für die Anisotropie gibt z. B. das Auftreten von zwei unterschiedlich großen Energielücken in Photoemissionsmessungen [Tsu01]. Aus diesem Grund liefert auch die einfache Beziehung zwischen Kopplungsstärke  $\lambda$ , der abgeschirmten Elektronenwechselwirkung  $\mu^*$  und der Sprungtemperatur nach McMillan [McM68]

$$T_C = \frac{\hbar\omega}{1,2k_B} \exp \left[ \frac{-1,04(1 + \lambda)}{\lambda - \mu^* - 0,62\lambda\mu^*} \right]$$

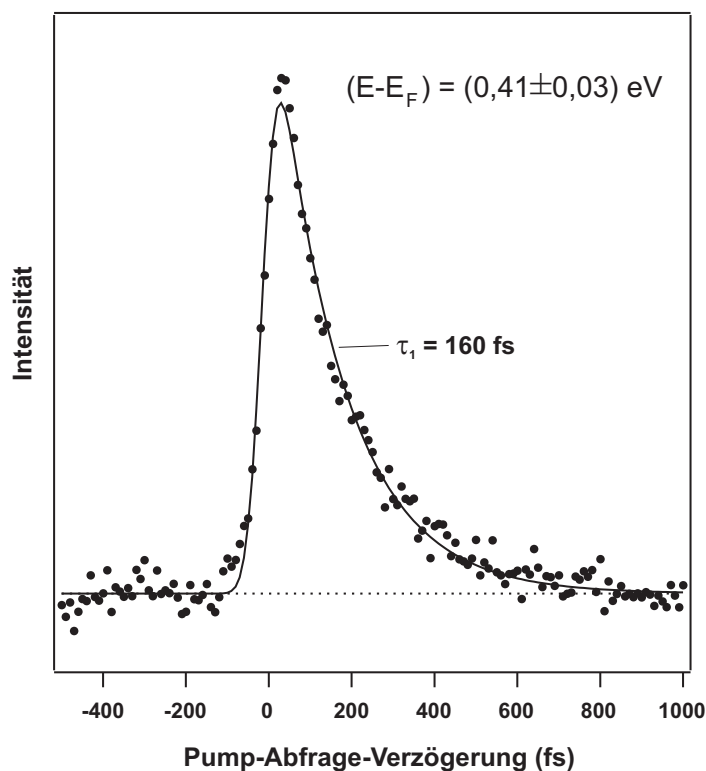
keine zufriedenstellenden Ergebnisse. Beispielsweise wäre  $T_C = 29$  K mit  $\mu^* = 0,12$  [Cho02a],  $\Theta_D = 900$  K und  $\lambda = 0,73$ , niedriger als der experimentell gefundene Wert von 39 K.



unabhängig von Annahmen über die Form der Elektronenverteilung, weil der Energietransfer zwischen Elektronengas und Gitter nicht durch eine Temperatur bestimmt wird, sondern aus der Form der PE-Spektren. Die Methode ist daher auch auf Materialien anwendbar, in denen die Elektron-Phonon-Kopplung ähnlich schnell verläuft wie die Thermalisierung des Elektronengases. Zur Bestimmung des Elektron-Phonon-Kopplungsparameters  $\lambda$  ist jedoch ein Modell nötig, das diesen mit dem Energietransfer zwischen Elektronen und Gitter in Verbindung setzt wie die Theorie von Allen [All87]. Eine Erweiterung der Theorie auf Nicht-Gleichgewichts-Elektronenverteilungen wäre wünschenswert.

## 5.3 Elektronische Relaxationszeiten

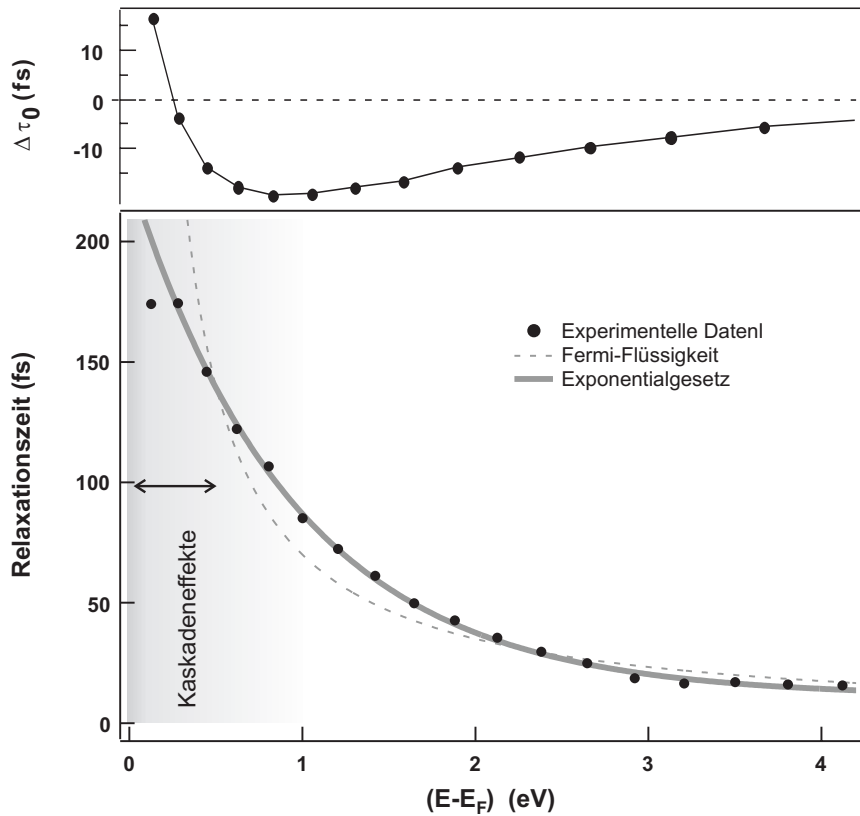
Weitere Informationen über die Relaxationsdynamik und die einzelnen Elementarprozesse erhält man aus der Auswertung der Energie-Relaxationszeiten in engen Energieintervallen. Eine solche Kreuzkorrelation zeigt Abbildung 5.7.



**Abbildung 5.7:** Kreuzkorrelation auf Magnesiumdiborid (Punkte) mit der Anpassung eines exponentiellen Zerfalls (Linie). (Pump:  $h\nu = 2,01$  eV, Abfrage:  $2h\nu = 4,02$  eV,  $T_l = 36$  K,  $\tau_{Puls}(\text{FWHM}) = 47$  fs).

Die Kreuzkorrelationen folgen weitgehend der Faltung aus Anregungs- und Abfragepuls mit einem einfachen exponentiellen Zerfall (Gl. (4.6)). Die Abhängigkeit der Relaxationszeiten von der Zwischenzustandsenergie ist in Grafik 5.8 aufgetragen. Im oberen Teil der Abbildung sieht man den relativen Zeit-Nullpunkt zwischen Pump- und Abfragepuls aus der Anpassung. Folgt man der Diskussion in Kapitel 4.3, so ist die Verschiebung des in der Anpassung freien Zeit-Nullpunktes  $\Delta\tau_0$  zu positiven Zeiten hin ein Hinweis auf Sekundärelektronen-Kaskaden. Da hier der Anstieg erst unterhalb von 0,7 eV einsetzt,

werden die gemessenen Zeiten bei höheren Energien als Relaxationszeit  $\tau$  aufgefasst, die durch die  $e$ - $e$ -Lebensdauern und  $e$ - $ph$ -Lebensdauern begrenzt ist:  $1/\tau = 1/\tau_{e-e} + 1/\tau_{e-ph}$ .



**Abbildung 5.8:** Energierelaxationszeiten auf  $\text{MgB}_2$  (Punkte) im Vergleich mit einem quadratischen Verlauf (dünne Linie) und einem exponentiellen Verlauf (dicke Linie). Im oberen Teil sind die relativen Zeit-Nullpunkte  $\Delta\tau_0$  der Anwendungsfunktion aufgetragen.

Die Relaxationszeiten steigen mit abnehmender Energie von 16 fs bei  $(E - E_F) = 4,1$  eV monoton auf 176 fs bei  $(E - E_F) = 0,1$  eV an. Der Verlauf kann nicht durch eine  $\tau \propto (E - E_F)^{-2}$ -Abhängigkeit (gestrichelte Linie), wie sie durch die Theorie der Fermi-Flüssigkeiten vorhergesagt wird, angepasst werden. Die Energieabhängigkeit folgt aber einem exponentiellen Abfall entsprechend  $\tau = (217 \cdot \exp(-1,05 \cdot (E - E_F)) + 11)$  fs. Die minimale Relaxationszeit von 11 fs entspricht der Nachweisgrenze in der Auswertung der Kreuzkorrelationen und ist somit eine Obergrenze für die tatsächlichen Relaxationszeiten. Im Temperaturbereich von 25 K bis 90 K gibt es keine signifikante Temperaturabhängigkeit der Relaxationsraten und Lebensdauern.

Vermutlich sind die gemessenen Zeiten eine untere Grenze für die elektronischen Relaxationszeiten im reinen Kristall. Geringe Einflüsse durch Transport oder Defekte würden die gemessenen Zeiten gegenüber der intrinsischen Lebensdauer verkürzen. Längere Relaxationszeiten als in einer defektlosen Probe könnten entstehen, wenn angeregte Elektronen z. B. an Defekten gebunden wären und dort sehr lange Lebensdauern hätten; jedoch gibt es hierfür aus unserem Experiment keine Hinweise.

Wie oben diskutiert, tragen Elektron-Elektron- und Elektron-Phonon-Streuung zu den Relaxationszeiten bei. Welcher Prozess welchen Anteil hat, kann auf der Basis der experimentellen Daten nicht geklärt werden. Allgemeine Argumente (Energieabhängigkeit der  $e$ - $e$ -Streurrate, siehe 2.1.1) lassen lediglich erwarten, dass die Elektron-Elektron-Streuung bei hohen Energien und die Elektron-Phonon-Streuung bei niedrigen Energien nahe dem Fermi-Niveau dominant sein werden.

## 5.4 Zusammenfassung und Ausblick

Die Relaxationsdynamik einer durch Laserpulse mit  $\approx 2$  eV Photonenenergie angeregten Elektronenverteilung in dem Supraleiter Magnesiumdiborid ( $T_C = 39$  K) wurde untersucht. Dazu wurde das Elektronengas und folglich das Elektronengas-Gitter-Gleichgewicht durch einen kurzen Laserpuls gestört und der Energietransfer zurück an das Gitter als Funktion der Zeit gemessen. Aus der Energietransfer-Rate an das Gitter erhält man im Rahmen der Theorie von Allen [All87] eine Elektron-Phonon-Kopplungsstärke von  $\lambda = 0,73 \pm 0,45$ . Der Wert ist konsistent mit theoretischen Studien, z.B. [Cho02b]. Die moderat starke Kopplung wäre demnach geeignet, die Supraleitung mit einer Sprungtemperatur von 39 K zu vermitteln. Die Experimente sind, meines Wissens nach, die erste direkte Messung des Energietransfers zwischen dem Elektronengas und dem Gitter in  $\text{MgB}_2$ .

Die elektronischen Quasiteilchen-Relaxationszeiten an der  $\text{MgB}_2$ -Oberfläche steigen mit der Energie ( $E - F_F$ ) exponentiell an. Die Experimente lassen keine Abhängigkeit der Relaxationsdynamik von der Gittertemperatur zwischen 25 K und 90 K erkennen. Für ein detailliertes Verständnis dieses Verhaltens wären theoretische Arbeiten unter Berücksichtigung von Elektron-Elektron- und Elektron-Phonon-Wechselwirkungen wünschenswert.

Die Untersuchung von möglichen Anisotropien der Lebensdauern, aber auch der Elektron-Phonon-Kopplung, stellt eine experimentelle Herausforderung dar. Jüngste Erfolge bei der Präparation von dünnen Magnesiumdiborid-Filmen [Zen02] und kleinen Einkristallen [Ren02] lassen erhoffen, dass bald Proben mit der Qualität und Größe von Edelmetall-Einkristallen zur Verfügung stehen und weitere zeit- und winkelaufgelöste [Uch02] Experimente ermöglichen.

