

Kurzfassung

Die vorliegende Arbeit soll einen Beitrag zum Verständnis der Dynamik photoangeregter Elektronen an Metall- und Halbmetall-Oberflächen leisten. Die Elementarprozesse der Relaxationsdynamik, Elektron-Elektron-Streuung, Elektron-Phonon-Streuung und Streuung an Defekten, werden an geeigneten Modellsystemen untersucht. Dazu wurden Experimente mit zeitaufgelöster Photoemission aufgebaut und durchgeführt, um die Prozesse, die auf einer Zeitskala von 10^{-14} s bis 10^{-11} s stattfinden, analysieren zu können.

Die durch Elektron-Elektron-Streuung bestimmten Quasiteilchen-Lebensdauern an einer Graphit (HOPG)-Oberfläche werden im Energiebereich von $-0,11$ eV bis $2,3$ eV bezüglich des Fermi-Niveaus untersucht. Die Energieabhängigkeit der Quasiteilchen-Lebensdauer zeigt eine Anomalie zwischen $1,1$ eV und $1,5$ eV bezüglich des Fermi-Niveaus, also im Energiebereich eines Sattelpunktes in der elektronischen Bandstruktur. Die Messungen geben einen klaren Hinweis auf Anisotropien der Quasiteilchen-Lebensdauer. Die beobachtete Anomalie kann schon anhand eines einfachen Modells einer einzelnen Graphitschicht, nämlich durch das für Elektronen mit unterschiedlichem Impuls bei einem Elektron-Elektron-Streuprozess zur Verfügung stehende Phasenraumvolumen, verstanden werden. Die Interpretation wird durch *ab-initio*-Selbstenergie-Rechnungen [Spa01b] und einen Vergleich mit Experimenten an defektreichen HOPG-Oberflächen unterstützt. Letztere zeigen einen Anstieg der Relaxationsraten durch Fehlordnung des Gitters.

Im Weiteren wurde die Zwei-Photonen-Photoemission methodisch so weiterentwickelt, dass mit ihr nicht nur die Elektron-Elektron-, sondern auch die Elektron-Phonon-Kopplung an Oberflächen quantifiziert werden kann. Auch hier wird das Gleichgewicht zwischen Elektronengas und Gitter durch einen ultrakurzen Laserpuls gestört, und anschließend wird der Energietransfer zwischen Elektronen und Phononen über Photoemissionsspektren als Funktion der Zeit gemessen. Der Elektron-Phonon-Kopplungsparameter λ kann mit der Theorie von Allen [All87] anhand der gemessenen Energietransfer-Rate bestimmt werden. Die Kopplungsparameter werden sowohl für Systeme sehr schwacher Kopplung, wie Kohlenstoff-Nanoröhren ($\lambda = (4 \pm 1) \cdot 10^{-4}$) und Graphit ($\lambda = (3 \pm 1) \cdot 10^{-4}$), als auch für das 2001 als Supraleiter mit außergewöhnlich hoher Sprungtemperatur ($T_C = 39$ K) identifizierte [Nag01] Magnesiumdiborid ($\lambda = 0,73 \pm 0,45$) bestimmt. Die Messung der Energietransfer-Rate beruht hier nicht auf der Annahme thermalisierter Elektronenverteilungen und kann somit auch zur Analyse von Systemen eingesetzt werden, in denen die Relaxation über Elektron-Elektron-Streuung und über Elektron-Phonon-Streuung auf ähnlichen Zeitskalen abläuft. Die Elektronen-Energie-Relaxationszeiten in dem Supraleiter MgB_2 wurden weiterhin über

zeitaufgelöste Photoemission bestimmt. Sie steigen mit abnehmender Energie von 16 fs bei 4,1 eV bezüglich des Fermi-Niveaus exponentiell auf 176 fs bei 0,1 eV an.

Die genaue Form der Photoemissionsspektren von optisch angeregtem Graphit wird mit Referenzmessungen an einer Cu(111)-Oberfläche verglichen. Die Intensitätsverteilungen der nach der Anregung entstandenen Elektronen- und Lochverteilungen können anhand eines einfachen thermischen Modells weitgehend erklärt werden, das auf einer dynamischen Verschiebung des chemischen Potentials $\mu(T)$ durch die optische Anregung aufbaut. Die angeregten Ladungsträger in Kupfer relaxieren über die direkt konkurrierenden Prozesse Elektron-Elektron-Streuung und Elektron-Phonon-Streuung.

Neben dem Studium der Elektronendynamik wurden Messungen der Adsorptionseigenschaften von Inertgasen auf Kohlenstoff-Nanoröhren durchgeführt, welche einen ersten Schritt zur gezielten Modifikation der elektronischen Eigenschaften von Nanoröhren darstellen könnten.

Publikationen

Im Rahmen dieser Arbeit wurden bisher folgende Artikel publiziert bzw. eingereicht:

G. Moos, R. Fasel, T. Hertel. Temperature Dependence of Electron to Lattice Energy-Transfer in Single-Wall Carbon Nanotube Bundles. *Journal of Nanoscience and Nanotechnology*, im Druck.

H. Ulbricht, G. Moos, T. Hertel. Interaction of C_{60} with Carbon Nanotubes and Graphite. eingereicht bei *Physical Review Letters*, (08/2002).

H. Ulbricht, G. Moos, T. Hertel. Interaction of molecular oxygen with single-wall carbon nanotube bundles and graphite. *Surface Science*, im Druck.

H. Ulbricht, G. Moos, T. Hertel. Physisorption of molecular oxygen on single-wall carbon nanotube bundles and graphite. *Physical Review B* **66**, (2002) 075404.

T. Hertel, R. Fasel, G. Moos. Charge-carrier dynamics in single wall carbon nanotube bundles: a time domain study. *Applied Physics A* **75**, (2002) 449.

H. Ulbricht, G. Moos, T. Hertel. Interaction of O_2 and C_{60} with Single-Wall Carbon Nanotube Bundles from Thermal Desorption Spectroscopy. In: *Structural and Electronic Properties of Molecular Nanostructures*, IWEPNM Kirchberg, Austria, AIP Conference Proceedings **633**, (2002) 332.

H. Ulbricht, J. Kriebel, G. Moos, T. Hertel. Desorption kinetics and interaction of Xe with single-wall carbon nanotube bundles. *Chemical Physics Letters* **363**, (2002) 252.

G. Moos, C. Gahl, R. Fasel, M. Wolf, T. Hertel. Anisotropy of Quasiparticle Lifetimes and the Role of Disorder in Graphite from Ultrafast Time-Resolved Photoemission Spectroscopy. *Physical Review Letters* **87**, (2001) 267402.

T. Hertel, J. Kriebel, G. Moos, R. Fasel. Adsorption and Desorption of Weakly Bonded Adsorbates from Single-Wall Carbon Nanotube Bundles. In: *Nanonetwork Materials, Fullerenes, Nanotubes and Related Systems*, Kamakura, Japan, AIP Conference Proceedings **590**, (2001) 181.

T. Hertel, G. Moos. Influence of excited electron lifetimes on the electronic structure of carbon nanotubes. *Chemical Physics Letters* **320**, (2000) 359.

T. Hertel, G. Moos. Electron-Phonon Interaction in Single-Wall Carbon Nanotubes: A Time-Domain-Study, *Physical Review Letters* **84**, (2000) 215002.

Danksagung

Mein erster Dank gilt Herrn Prof. Dr. Gerhard Ertl, in dessen Abteilung ich die vorliegende Arbeit anfertigen durfte. Ich danke ihm für die freundliche Aufnahme in diese Abteilung, die außerordentlich angenehme Arbeitsumgebung und die Betreuung. Ich habe sehr gerne hier gearbeitet.

Herrn Prof. Dr. Martin Wolf danke ich für seine Betreuung seit Beginn meiner Zeit am FHI. Er hat diese Arbeit als Kooperationspartner und Zweitgutachter sehr konstruktiv begleitet und mich in zahlreichen Diskussionen immer wieder auf schöne Ideen gebracht.

Sehr herzlich möchte ich mich bei meinem direkten Betreuer, Herrn Dr. Tobias Hertel, bedanken. Seine ständige Diskussionsbereitschaft, physikalische Intuition und nicht zuletzt die Schaffung eines sehr freundlichen Arbeitsklimas schätze ich sehr. Er hat diese Arbeit selbst so kurz vor Weihnachten kritisch und sorgfältig gelesen und korrigiert.

Es hat mir viel Spass gemacht, einige Experimente und unzählige Diskussionen mit Hendrik Ulbricht und Dr. Roman Fasel zu teilen. Dafür möchte ich mich ganz besonders bedanken.

Ebenso danke ich meinen weiteren Kollegen der AG Hertel und den „Labormitbewohnern“ der AG Wolf ganz herzlich für die gute und lustige Zusammenarbeit: Daniel Denzler, Dr. Christian Frischkorn, Dr. Stephan Funk, Cornelius Gahl, Axel Hagen, Anne-Isabel Henry, Dr. Christian Hess, Jennah Kriebel, Steffen Wagner und Renju Zacharia.

Ich danke Herrn Prof. Dr. Jun Akimitsu für die Überlassung der Magnesiumdiborid-Probe und Herrn Manfred Thiede für die Unterstützung bei den optischen Absorptionsmessungen. Besonders möchte ich den Mitarbeitern der Werkstätten und dem Elektroniklabor am Fritz-Haber-Institut, stellvertretend Herrn Peter Tesky und Herrn Georg Heyne, danken.

Ingeborg Reinhardt danke ich sehr für die Korrekturen und einen kleinen Auffrischkurs in den Regeln der deutschen Sprache. Thorsten Moos hat ebenfalls mit kritischen Anmerkungen zum Feinschliff dieser Arbeit beigetragen.

Mirjam danke ich herzlich für ihre vielfältige Unterstützung und Ablenkung von der Physik.

