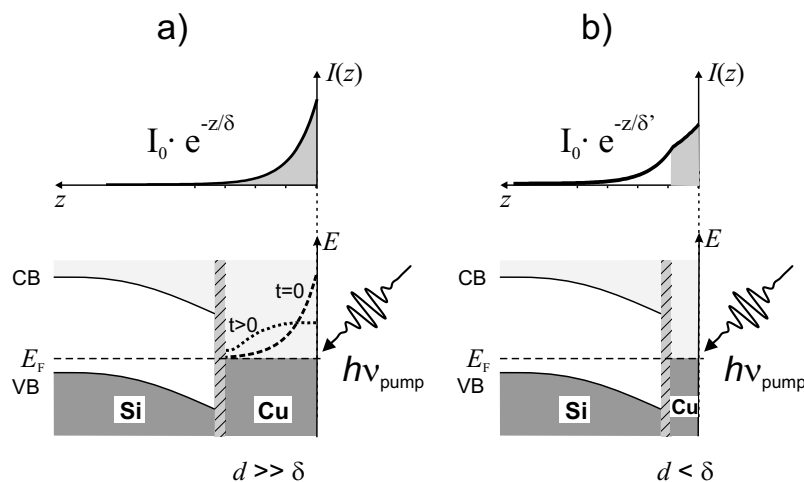


### 3 Elektronendynamik in dünnen Cu(111)/Si(111)- $7 \times 7$ Schichten

In Metallen wird einfallendes Licht an der Oberfläche absorbiert, typischerweise in einer Schicht von ca. 10 bis 20 nm Dicke (optische Eindringtiefe), s. Abb. 3.1. Untersuchungen zur Elektronendynamik in Metallen werden daher oft mit dünnen Schichten durchgeführt, um eine homogen angeregte Probe sicherzustellen und Elektronen-Transportprozesse zu unterbinden. Dadurch lassen sich die Messungen interpretieren ohne ein Modell zu verwenden, das die räumliche Verteilung der Anregung berücksichtigen muss. Es bleibt allerdings die Frage offen, inwiefern sich die daraus gewonnenen Erkenntnisse auf den Fall einer optisch dicken Probe übertragen lassen, d. h. unter Berücksichtigung der Transportprozesse. Um diese Frage zu beantworten wurden in dieser Arbeit Messungen an Kupfer-Filmen mit verschiedener Dicke durchgeführt.



**Abbildung 3.1:** Oben: Intensitätsverlauf  $I(z)$  der Pump-Strahlung mit optischer Eindringtiefe  $\delta$ . Unten: Schematisches Energie-Diagramm für einen Kupfer-Film auf Silizium für die beiden Extremfälle Schichtdicke  $d \gg \delta$  (a) und  $d < \delta$  (b). Für den Fall (a) ist zusätzlich die räumliche Verteilung der optisch angeregten Elektronen für den Zeitnullpunkt (gestrichene Linie) und einen Zeitpunkt lange nach der optischen Anregung (gepunktete Linie) gezeigt. Man sieht deutlich, dass an der Oberfläche die Anregungsenergie absinkt, während sie im Volumen zunimmt. Die Bandverbiegung im Silizium-Substrat ist hier stark komprimiert dargestellt. Tatsächlich variiert sie aufgrund der geringen Ladungsträgerdichte auf einer Längenskala von Mikrometern.

Abbildung 3.1 zeigt schematisch für Kupfer-Filme auf Silizium die beiden Extremfälle: (a) Schichtdicke  $d$  deutlich größer als optische Eindringtiefe  $\delta$  und (b)  $d < \delta$ . Die Funktion des Silizium-Substrats ist, die optisch angeregten Elektronen im Kupfer-Film einzusperren. Im

oberen Teil der Abbildung ist das Intensitätsprofil  $I(z)$  der Pump-Strahlung gezeigt, im unteren Teil ein Energieschema der Filmstrukturen. Für den dicken Film ist die räumliche Verteilung der optisch angeregten Elektronen zum Zeitpunkt der Anregung  $t = 0$  als gestrichelte Linie eingezeichnet. Man sieht, dass die Verteilung inhomogen ist. Elektronen-Transport (diffusiv oder ballistisch) wird daher die Elektronen die Tiefe der Schicht verteilen, so dass es an der Oberfläche zu einer Reduktion der Zahl der angeregten Elektronen kommt (gepunktete Linie)<sup>1</sup>. Misst man nun zeitaufgelöst diese Elektronenpopulation mit einer Methode, deren Oberflächenempfindlichkeit  $\lambda < \delta$  ist (beispielsweise Photoemission), so wird man eine Abnahme des Signals erwarten, die durch den Elektronen-Transport verursacht wird. Dies führt zu einer systematischen Verringerung der gemessenen Relaxationszeiten für Elektronen und wird als *Transport-Effekt* bezeichnet [Sch94, Aes96, Kno98]. Ziel in diesem Kapitel ist es, diesen Transport-Effekt für Kupfer-Filme nachzuweisen und zu quantifizieren. Abschließend soll noch bemerkt werden, dass die Diskussion von Elektronen-Transport die Betrachtung von lokalisierten Elektronen-Wellenpaketen impliziert [Aes00]. Für (delokalisierte) Bloch-Elektronen kann es keinen Transport geben [Eka00].

Der Rest des Kapitels ist wie folgt organisiert. Zunächst wird der Stand der Forschung skizziert. Anschließend wird die Präparation der epitaktischen Cu(111)-Filme auf Si(111)-7×7 beschrieben. Es folgen zeitaufgelöste Messungen der Elektronen-Populationsdynamik mit 2PPE und die Diskussion der Ergebnisse.

## 3.1 Stand der Forschung

Es existiert bereits eine Reihe von Arbeiten, die sich mit der Elektronendynamik und dem Einfluss des Transports auf diese beschäftigen. Messungen der transienten Reflektivität an Gold-Filmen [Bro87, Sua95, Hoh00] zeigten, dass es neben dem diffusiven Wärmetransport durch Elektronen auch einen Anteil durch ballistische Elektronen, d. h. solche, die keine Streuung erfahren haben, gibt. In [Hoh00] wurde eine stark filmdickenabhängige Relaxation beobachtet, die mit einem 2-Temperatur-Modell beschrieben werden kann, wenn man den Transport durch ballistische Elektronen durch eine vergrößerte effektive optische Eindringtiefe des Pumplichts beschreibt. Dabei macht man die Annahme, dass der ballistische Transport nur während der Dauer der optischen Anregung stattfindet.

Bereits durch Schmuttenmaer *et al.* [Sch94] wurde ein Einfluss des Elektronen-Transports auf die mit 2PPE gemessenen Relaxationszeiten von optisch angeregten Elektronen vermutet. Für Gold-Filme wurde mit 2PPE bei verschiedenen Filmdicken in einer Arbeit keine unterschiedliche Relaxationszeit von optisch angeregten Elektronen gemessen [Cao98], während in [Aes96, Aes00] unterschiedliche Relaxationszeiten für dünne Filme und Einkristalle beobachtet worden sind. Zudem wurde in [Aes00] ein deutlich größerer Transport-Effekt in Silber-Filmen als in Gold-Filmen beobachtet, was nicht zweifelsfrei erklärt werden konnte. In beiden Arbeiten wurden die Proben vor der Messung an Luft transportiert. Des Weiteren wurden teilweise epitaktische mit polykristallinen Proben verglichen, obwohl

---

<sup>1</sup>Dieser Strom wird durch einen gleich großen entgegengesetzten Strom der übrigen, nicht angeregten Elektronen, kompensiert, so dass es zu keiner Trennung von Ladungen kommt.

gezeigt worden ist [EA93], dass in polykristallinen Proben der Transport weniger effizient ist.

Knoesel *et al.* [Kno98] hat den Effekt von ballistischem Transport auf die mit 2PPE messbare Relaxationsrate von angeregten Elektronen in Kupfer-Einkristallen berechnet und kommt zu dem Schluss, dass für Energien  $E - E_F > 1$  eV der ballistische Transport wie ein zusätzlicher Relaxationskanal mit einer Zeitkonstanten von  $\tau_{\text{transp}} = 67$  fs auf die gemessenen Relaxationsraten wirkt. Die mit 2PPE gemessene Relaxationszeit  $\tau_m$  kann dann unter Verwendung der Matthiessen-Regel aus der Summe der Relaxationsraten durch Streuprozesse ( $1/\tau$ ) und Transport ( $1/\tau_{\text{trans}}$ ) geschrieben werden,

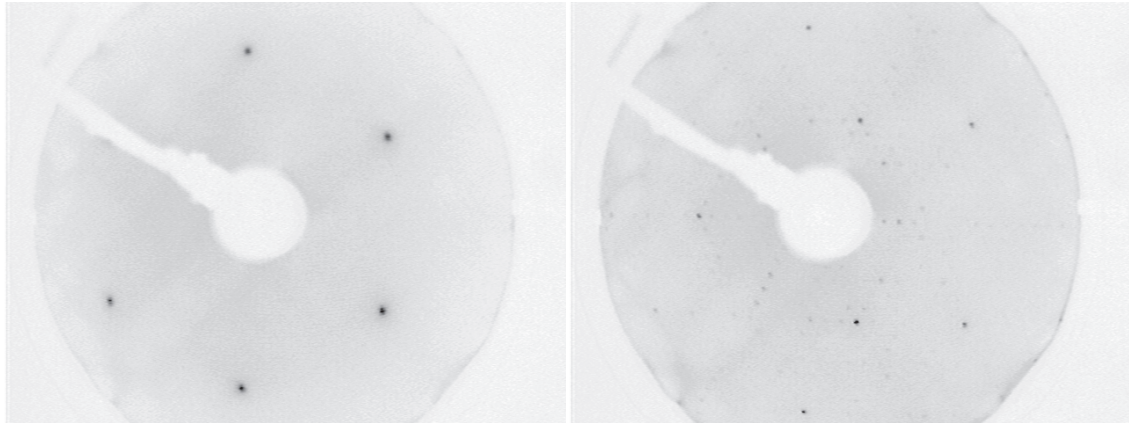
$$\frac{1}{\tau_m} = \frac{1}{\tau} + \frac{1}{\tau_{\text{trans}}}. \quad (3.1)$$

Diese Relation ist gültig, wenn die Elektronen-Population nicht durch Sekundärelektronen und Kaskaden-Prozesse dominiert wird. Diese Annahme ist am besten für Energien größer  $h\nu_1/2$  erfüllt. Da die in [Kno98] gemessenen Relaxationszeiten von der selben Größenordnung wie  $\tau_{\text{trans}}$  sind, sollte sich der Transport deutlich auf diese auswirken. Umgekehrt sollte eine Blockade des Transports in dünnen Filmen zu einem deutlichen Anstieg der Relaxationszeiten führen. Der experimentelle Nachweis durch Messungen an verschiedenen dicken Kupfer-Filmen steht jedoch noch aus. Die einzige solche Messung mit 2PPE durch Cao [Cao96] zeigt erstaunlicherweise keine Filmdickenabhängigkeit der Relaxationszeiten.

Knorren *et al.* [Kno01] haben in einer theoretischen Arbeit mit der Boltzmann-Gleichung in *random-k*-Näherung die Relaxationsraten von Elektronen in Kupfer für zwei Temperaturen (50 und 300 K) berechnet. Sie berücksichtigen sowohl e-e-, e-ph-Streuung, Sekundärelektronen und Auger-Elektronen als auch ballistischen Transport und sehen eine Reduktion der Relaxationszeiten für  $T = 50$  K verglichen mit  $T = 300$  K, die als Übergang vom diffusiven zum ballistischen Transport interpretiert wird. Als Begründung wird die größere Zahl von e-ph-Streueignissen bei 300 K angeführt.

Die widersprüchlichen Ergebnisse für Gold-Filme und die vielversprechenden Vorhersagen für Kupfer waren die Motivation, den Effekt des Transports auf die Elektronen-Relaxationszeit in dünnen Cu(111)/Si(111)- $7 \times 7$ -Filmen zu untersuchen. Als Substrat wurde p-dotiertes Silizium ausgewählt, da sich einerseits darauf Cu(111)-Filme epitaktisch wachsen lassen [Ped02] und andererseits die Bandlücke in Silizium die optisch angeregten Elektronen im Metallfilm einsperrt, siehe Abb. 3.1. Die Schottky-Barriere (Abstand der Leitungsbandunterkante (CB) zum Fermi-Niveau in der Grenzschicht) hat für Cu/Si den Wert von  $0.68 \pm 0.05$  eV [Ros87], d. h. das Fermi-Niveau des Kupfer-Films ist etwas unterhalb der Mitte der Si-Bandlücke festgelegt („gepinnt“). Elektronen mit Energien  $E - E_F \leq 0.68$  eV liegen daher noch im Bereich der indirekten Bandlücke und können den Kupfer-Film nicht verlassen. In der [111]-Richtung des Si-Kristalls gilt dies sogar für Elektronen mit  $E - E_F \leq 1.8$  eV.

Die Filmdicken wurden so gewählt, dass sie im Bereich kleiner als die optische Eindringtiefe  $\delta = 15$  nm [Pal91] bis zu  $3\delta$  liegen, so dass der Übergang von einer homogenen zur inhomogenen Anregung beobachtet werden kann. Stellvertretend für das Limit sehr dicker Filme wurde eine Messung auf einem Cu(111)-Einkristall durchgeführt.



**Abbildung 3.2:** LEED-Bilder eines Cu(111)/Si(111)-7×7-Films (links) und des Si(111)-7×7 Substrats (rechts) bei einer Primärenergie von 200 eV.

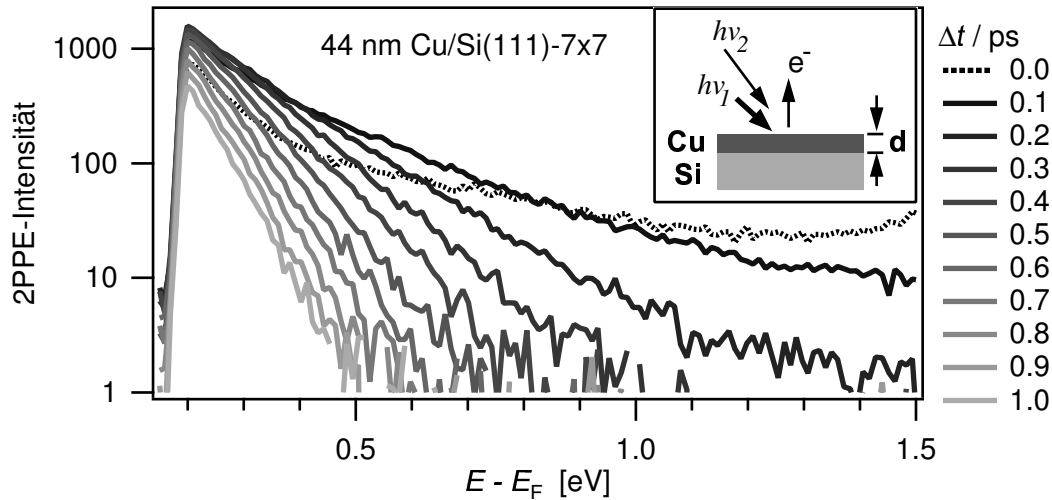
## 3.2 Präparation der Kupfer-Filme

Die Präparation und Vermessung der Proben erfolgte *in situ*, d. h. im Ultrahochvakuum ohne Transfer an Luft. Um ein epitaktisches Wachstum der Kupfer-Filme zu erreichen, muss das Silizium-Substrat so präpariert werden, dass die Si(111)-7×7-Überstruktur [Sch59] vorliegt [Bec89, Tel86, Yan94]. Hierzu wurde der Silizium-Wafer (Bor-dotiert (p-Typ), spezifischer Widerstand 15  $\Omega\text{cm}$ ) nach dem Einschleusen in das Magazin über Nacht bei ca. 120°C ausgegast, um Wasser von Probe und Probenträger zu desorbieren. Anschließend wurde die Probe in die Präparationskammer eingeschleust und ca. 2 bis 3 Stunden bei 500°C ausgegast. Währenddessen wurde der Manipulator mit flüssigem Stickstoff gekühlt, um ein Überhitzen des Probenträgers zu vermeiden. Nach dem Ausgasen wurde die Oxidschicht des Si-Wafers durch kurzes Hochheizen auf 1000°C desorbiert und anschließend die Probe mehrere Male kurz auf 1200°C hochgeheizt, bis der Druck bei 1000°C kleiner als  $2 \cdot 10^{-10}$  mbar war. Die Si(111)-7×7-Rekonstruktion wurde dann durch langsames Abkühlen von 1000°C auf 700°C (Abkühlrate 1 K/s) erreicht. Zum Ausheilen eventueller Defekte wurde die Probe noch für ca. 10 min bei 700°C belassen, bevor sie zum Aufdampfen der Kupfer-Filme auf 200 K abgekühlt wurde. Der Druck war während dieser Präparation bei Temperaturen von 1000°C und darunter typischerweise besser als  $2 \cdot 10^{-10}$  mbar.

Die Kupfer-Filme wurden mit einem kommerziellen Elektronenstrahl-Verdampfer aus einem Wolfram-Tiegel heraus verdampft. Hierzu wurde Kupfer-Draht der Reinheit 99.9999% (Alfa Aesar „Puratronic“) verwendet. Die Aufdampftrate betrug je nach Filmstärke zwischen 1 und 6  $\text{\AA}/\text{min}$  und wurde mit einer Quarz-Waage während des Aufdampfens überprüft.<sup>2</sup> Anschließend wurden die Kupfer-Filme wenige Minuten bei 300 K ausgeheilt, so dass scharfe hexagonale Beugungsmuster im LEED-Bild zu sehen waren (siehe Abb. 3.2).

---

<sup>2</sup>Der Quarz wurde hierfür so hinter der Probe positioniert, dass er noch vom Atom-Strahl getroffen wurde.



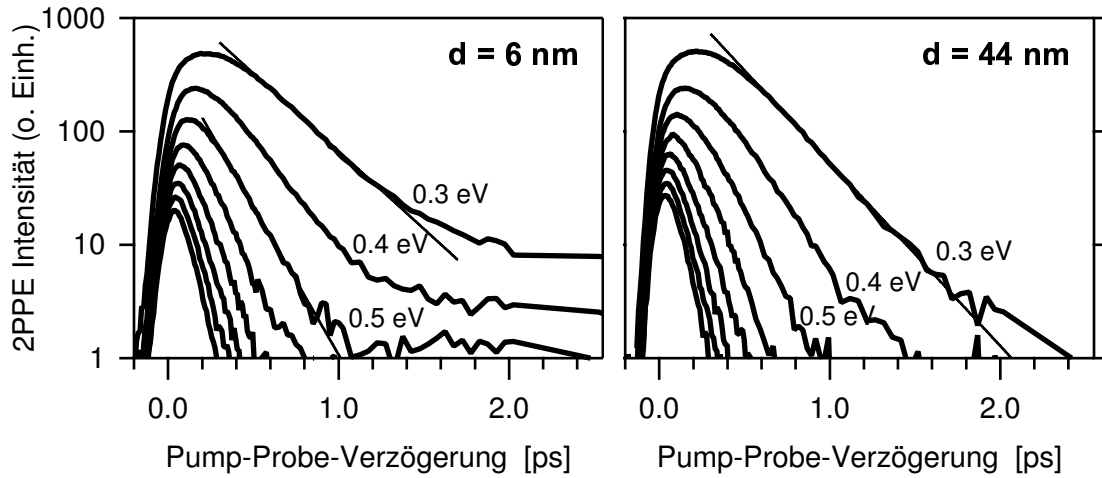
**Abbildung 3.3:** 2PPE-Spektren eines 6 nm dicken Cu(111)/Si(111)-7×7-Films bei verschiedenen Pump-Probe-Verzögerungszeiten  $\Delta t$  für Photonenenergien von  $h\nu_1 = 2.35$  eV und  $h\nu_2 = 4.70$  eV.

### 3.3 Ergebnisse

Die Messungen der Elektronendynamik in den Kupfer-Filmen mit der 2PPE wurden bei 300 K Proben­temperatur durchgeführt, Abb. 3.3 zeigt rechts oben ein Schema des Messanord­nung. Pump- und Probe-Strahlen hatten Photonenenergien von 2.35 eV und 4.70 eV, in der Einfallsebene polarisiert, mit Pulslängen von 55 fs (FWHM). Die absorbierte Pump-Fluenz betrug ca.  $30 \mu\text{Jcm}^{-2}$ , abgeschätzt durch Messung der eingehenden und reflektierten Leistung und der ungefähren Fokusgröße anhand der Transmission durch eine Lochblende. Dies entspricht etwa einer Anregungsdichte von  $10^{-3}$  Elektronen/Atom.

Die Wahl der Photonenenergien erfolgte nach folgenden Gesichtspunkten: Die d-Bänder von Kupfer liegen ca. 2 eV unterhalb des Fermi-Niveaus, somit ist die optische Absorption erst ab 2 eV nennenswert (darunter ca. 2%). Deshalb wurden die Messungen mit einer Pump-Photonenenergie von  $h\nu_1 = 2.35$  eV durchgeführt. Weil zum Zeitpunkt der Messungen die Multi-Hit Elektronik zur Flugzeitmessung noch nicht existierte, konnten nur kleine Photoelektronen-Zählraten (bis max. 20 kHz) verarbeitet werden (vgl. Abschnitt 2.3.6). Aus diesem Grund musste die Probe-Photonenenergie so gewählt werden, dass es nicht zur direkten Ein-Photonen-Photoemission kommt, d. h.  $h\nu_{\text{Probe}} < \Phi$ . Das bedeutet, dass die Dynamik der Elektronen und Löcher in der Nähe des Fermi-Niveaus nicht gemessen werden konnte und somit leider auch eine Auswertung der Überschuss-Energie im Elektronensystem, wie in Abschnitt 2.7.2 beschrieben, nicht möglich ist. Als Kompromiss zwischen tolerierbarer Zählrate und möglichst großem Informationsgehalt wurde eine Probe-Photonenenergie von  $h\nu_2 = 4.70$  eV gewählt, so dass bei einer Austrittsarbeit von  $\Phi_{\text{Cu}} = 4.95$  eV die Elektronendynamik bis hinunter zu Energien von  $E - E_F = 0.25$  eV beobachtet werden konnte.

Abbildung 3.3 zeigt die 2PPE-Spektren eines 6 nm dicken Cu(111)/Si(111)-7×7-Films für verschiedene Pump-Probe-Verzögerungszeiten  $\Delta t$ . Die gepunktete Linie zeigt ein Spek-



**Abbildung 3.4:** Kreuzkorrelationskurven für Cu(111)/Si(111)-7×7 -Filme von 6 nm Dicke (links) und 44 nm Dicke (rechts). Die Elektronenpopulation wurde jeweils in Energieintervallen von 50 meV Breite zentriert um die angegebenen Werte oberhalb der Fermi-Energie ermittelt (nur jede zweite Kurve ist dargestellt). Die durchgezogenen Linien sind an die Daten angepasste Modellfunktionen nach Gl. 1.50. Das kleine Bild in der Mitte zeigt das Messprinzip.

trum vor der Anregung ( $\Delta t = -0.5$  ps). Der exponentielle Ausläufer der Fermi-Dirac-Verteilung zeigt sich hier als linearer Abfall zu hohen Energien.

Die mit der 2PPE gewonnenen Daten werden im Sinne der Kreuzkorrelation ausgewertet (Abschn. 1.5.9). Das heißt, man betrachtet die Populationsdynamik der Elektronen oberhalb der Fermi-Energie für Energieintervalle mit einer Breite von 50 meV. Die Kreuzkorrelationskurven für einen 6 nm dünnen und einen 44 nm dicken Film sind in Abb. 3.4 logarithmisch dargestellt, wobei der Klarheit wegen nur jede zweite Kurve dargestellt ist. Die Zentren der jeweiligen Energieintervalle sind an den Kurven notiert und haben deshalb Abstände von 100 meV.

Qualitativ sieht man in Abb. 3.4, dass die Populationsdynamik umso schneller ist, je weiter die Energie oberhalb des Fermi-Niveaus liegt und dass nach einem anfänglichen Maximum die Population exponentiell abnimmt. Die beobachtete Populationsdynamik bei einer bestimmten Energie wird bestimmt durch e-e-Streuung, e-ph-Streuung und Transport aus dem Detektionsvolumen heraus. Die e-e-Streurate wird bestimmt durch die abgeschirmte Coulomb-Wechselwirkung und den zur Verfügung stehenden Phasenraum, welcher vom Abstand zum Fermi-Niveau abhängt [Ech00]. Durch die e-e-Streuung werden allerdings auch Elektronen von unterhalb der Fermi-Energie nach oberhalb gestreut (sog. Sekundärelektronen) und erhöhen somit dort die Population. Ebenso gelangen Elektronen durch e-e- und e-ph-Streuung von höheren Energieniveaus in tiefere. Je näher das betrachtete Energieintervall am Fermi-Niveau liegt, desto mehr angeregte Elektronen können von höheren Energien herunter relaxieren und desto mehr Streuprozesse sind dazu nötig. Dies führt dazu, dass das Maximum der Population nicht am Zeitnullpunkt, sondern erst zu späteren Zeiten erreicht wird, und zwar umso später, je näher das betrachtete Energie-

intervall am Fermi-Niveau ist (s. Abb. 3.4). Das Modellieren solcher Kaskaden-Prozesse erfordert im Prinzip ein Ratengleichungsmodell für alle Zustände des Leitungsbands. Allerdings ist es fraglich, ob die so gewonnenen Raten die Einsicht vertiefen, wenn man bedenkt, dass die e-ph-Streuung, der Transport und die Bandstruktur gleichfalls die Elektronendynamik beeinflussen.

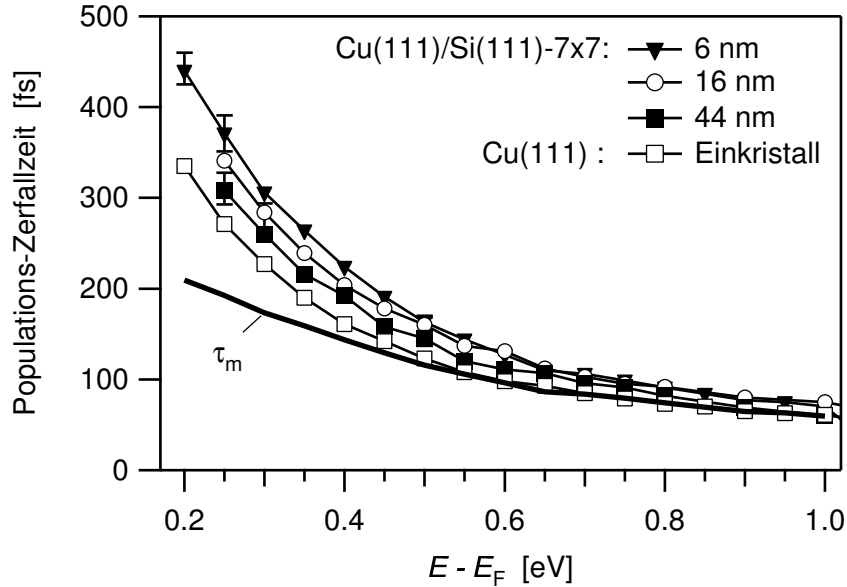
Aus diesem Grund wird ein einfacherer Weg beschritten und die gemessenen Kreuzkorrelationskurven durch Gl. 1.50 beschrieben. Dabei macht man die Annahme, dass eine Zunahme der Population nur durch Lichtabsorption erfolgt und die Abnahme nicht durch andere optisch angeregte Elektronen beeinflusst wird. Das heißt man befindet sich im Limit der Einzelelektronanregung, was bei der verwendeten Anregungsdichte vernünftig ist. Eine weitere Voraussetzung sind ausreichend hohe Zwischenzustandsenergien. Ausreichend hoch bedeutet, dass es keine Elektronen mit höherer Energie geben darf, was für genügend hohe Verzögerungszeiten in der Regel erfüllt ist (vgl. Abb. 3.4). Die Funktion Gl. 1.50 wird daher im Bereich der exponentiellen Abnahme an die Daten angepasst (Linien in Abb. 3.4).

Die Pump-Probe-Kreuzkorrelation  $I_{XC}$  in Gl. 1.50 stellt die Instrumentfunktion des Experiments in der Zeitdomäne dar und wurde aus dem 2PPE-Signal des besetzten Oberflächenzustands der Cu(111)-Oberfläche gewonnen.<sup>3</sup> Im Argument der Exponentialfunktion in Gl. 1.50 steht die Populations-Lebensdauer bzw. Relaxationszeit  $\tau = \Gamma_0/\hbar$ . Trägt man die so gewonnenen Relaxationszeiten für die verschiedenen Filmdicken gegen den Energieabstand zum Fermi-Niveau auf, erhält man Abb. 3.5. Dieses Ergebnis wird nun im folgenden Abschnitt diskutiert.

### 3.4 Diskussion

Man sieht in Abb. 3.5, dass mit abnehmender Filmdicke die Relaxationszeiten länger werden. Dieser Effekt kann durch zwei Prozesse erklärt werden: Zum einen wirkt bei zunehmender Filmdicke der Transport als Verlustkanal an der Oberfläche (Transport-Effekt). Zum anderen kann in dünnen Filmen die Quantisierung der Elektronenzustände zu einem reduzierten Phasenraum führen und auf diese Weise die Relaxation verlangsamen. Allerdings wurden in den Photoemissionsspektren keine Hinweise auf Quantentrogzustände gefunden, so dass dieser Effekt nicht sehr stark sein kann. Pedersen *et al.* sehen selbst in direkter Photoemission nur sehr schwach ausgeprägte Maxima der Quantentrogzustände [Ped02]. Streuung an Defekten kann den Elektronen-Transport beeinträchtigen. Da aber alle Filme unter gleichen Bedingungen hergestellt wurden, ist es unwahrscheinlich, dass die filmdickenabhängige Relaxationszeiten durch Elektron-Defekt-Streuung verursacht worden sind. Die Schlussfolgerung ist daher, dass der Elektronen-Transport für die schnelleren Relaxationszeiten mit wachsender Schichtdicke und im Einkristall verantwortlich ist.

<sup>3</sup>Da der Oberflächenzustand in einer Bandlücke liegt, gibt es für den 2-Photonen-Prozess keinen realen Zwischenzustand, d. h. der Übergang erfolgt instantan. Somit entspricht das Kreuzkorrelations-Signal dieses Oberflächenzustands gerade der Kreuzkorrelation von Pump- und Probe-Puls, d. h. der zeitlichen Auflösung des Experiments [Her96].



**Abbildung 3.5:** Zerfallszeiten der Elektronenpopulation in Kupfer-Filmen verschiedener Dicke sowie in einem Kupfer-Einkristall. Die Werte wurden durch Anpassen der Modellfunktion Gl. 1.50 an die Kreuzkorrelationskurven in Abb. 3.4 ermittelt. Die durchgezogene Linie zeigt die nach Gl. 3.1 berechnete Relaxationszeit für einen Cu(111)-Einkristall.

Man kann versuchen, den Transport-Effekt in der Lebensdauer gemäß Gl. 3.1 durch eine effektive Relaxationszeit  $\tau_{\text{trans}}$  auszudrücken. Für die echte Lebensdauer  $\tau$  werden die Werte des dünnsten Filmes ( $d = 6$  nm) eingesetzt, da für diesen der Beitrag des Transport-Effekts zu den gemessenen Relaxationszeiten am geringsten sein sollte. Das heißt, für diesen Film kann die Populations-Zerfallszeit tatsächlich als Quasiteilchen-Lebensdauer interpretiert werden. Der zusätzliche Relaxationskanal ( $1/\tau_{\text{trans}}$ ) in Gl. 3.1 führt dazu, dass die gemessene Populations-Lebensdauer  $\tau_m$  stets kleiner ist als  $\tau$ . Die effektive Transport-Relaxationszeit wird bestimmt, indem  $\tau_{\text{trans}}$  so variiert wird, dass  $\tau_m$  die Daten ( $\square$ ) für den Einkristall (maximaler Transport-Effekt) möglichst gut reproduziert. Dabei wird eine Übereinstimmung von  $\tau_m$  mit den Relaxationszeiten des Einkristalls bei hohen Energien angestrebt, denn nahe am Fermi-Niveau erwartet man keine Übereinstimmung, weil die dort vorhandenen Sekundär- und Kaskadenelektronen in Gl. 3.1 nicht berücksichtigt werden. In Abb. 3.5 ist  $\tau_m$  als durchgezogene Linie für  $\tau_{\text{trans}} = 400$  fs eingezeichnet. Die Kurve ist in Übereinstimmung mit den Relaxationszeiten des Einkristalls für Energien  $E - E_F > 0.4$  eV.

Diese effektive Transport-Relaxationszeit von  $\tau_{\text{trans}} = 400 \pm 100$  fs ist etwa einen Faktor 6 größer als der in [Kno98] bestimmte Wert von  $\tau_{\text{trans}} = 67$  fs für die Cu(111)-Oberfläche. Der Transport scheint also hier weitaus weniger effektiv zu sein als in der früheren Arbeit. Folgende Gründe können dafür angeführt werden: (i) Knoesel [Kno98] simuliert rein ballistischen Transport, der effektiver ist als diffusiver Transport. Diese Tatsache wird auch in der Temperaturabhängigkeit bei Knorren *et al.* [Kno01] deutlich: bei tiefen Tem-



peraturen, wenn e-ph-Streuung unterdrückt ist, dominiert der ballistische Transport. Die Messungen dieser Arbeit sind aber bei 300 K gemacht worden, so dass e-ph-Streuung nicht vernachlässigt werden kann und der Transport vorwiegend diffusiv sein sollte. (ii) Der in Abb. 3.5 gezeigte Energiebereich liegt unterhalb  $h\nu_1/2 = 1.2$  eV und somit sind Sekundär- und Kaskadenelektronen nicht vernachlässigbar.

Abschließend möchte ich die Aufmerksamkeit auf eine Besonderheit in der Relaxation bei sehr dünnen Filmen lenken. Für den 6 nm Film beobachtet man für kleine Energien oberhalb  $E_F$  einen doppelt-exponentiellen Zerfall (Abb. 3.4, links,  $E - E_F \leq 0.4$  eV) mit einer Zeitkonstanten von  $4.0 \pm 0.5$  ps für die langsame Komponente. Die Erklärung dafür ist folgende: Auf der Pikosekunden-Zeitskala hat das Elektronensystem sowohl intern als auch mit dem Gitter ein thermisches Gleichgewicht erreicht. Betrachtet man die in Frage kommenden Photoemissions-Spektren (Abb. 3.3), so sieht man, dass man bei diesen Energien bereits den exponentiellen Ausläufer der Fermi-Dirac-Verteilung sieht. Das bedeutet, dass in dünnen Filmen nach ca. 2 ps die Temperatur höher ist als in dicken Filmen, was man auch erwartet, da dort der elektronische Transport ins Volumen durch die Bandlücke des Substrats verhindert wird. Als Mechanismus, der die Abnahme mit einer Zeitkonstanten von 4.0 ps erklären kann, verbleibt somit nur noch die Phononen-Wärmeleitung, welche in Silizium sehr effizient ist (Wärmeleitfähigkeit  $\lambda_{\text{Si},300\text{K}} = 1 \text{ Wcm}^{-1}\text{K}^{-1}$  [Gla64] gegenüber  $\lambda_{\text{Cu},300\text{K}} = 4 \text{ Wcm}^{-1}\text{K}^{-1}$  [Stö94]).

## Fazit

Die 2PPE-Messungen an epitaktischen Cu(111)-Filmen verschiedener Dicke bei  $T = 300$  K zeigen, dass die Relaxationszeiten der Elektronenpopulation abhängig von der Filmdicke sind und widerlegen damit den experimentellen Befund in [Cao96]. Die Relaxation ist bei dünnen Filmen am langsamsten und steigt mit der Filmdicke, wobei an Einkristallen die schnellste Relaxation gemessen wurde. Dieses Verhalten wird erklärt durch zunehmend effizient werdenden Transport der optisch angeregten Elektronen aus dem Detektionsvolumen heraus, wenn die Filmdicke größer wird als die optische Eindringtiefe. Diese Ergebnisse sind in Übereinstimmung mit Messungen an Gold-Filmen [Aes00], obgleich in der vorliegenden Arbeit die Unterschiede zwischen dem dünnen Film und dem Einkristall nicht so ausgeprägt sind.

Die Berücksichtigung des Transports als zusätzlichen Relaxationskanal zur Elektron-Elektron-Streuung führt zu einer effektiven Transport-bedingten Relaxationszeit von  $\tau_{\text{trans}} = 400 \pm 100$  fs im Energieintervall  $0.4 \text{ eV} \leq E - E_F < 1 \text{ eV}$ . Dieser Wert ist etwa einen Faktor 6 größer als der zuvor in [Kno98] bestimmte. Der Grund hierfür liegt in der diffusiven Natur des Transports bei  $T = 300$  K, während die Rechnungen in [Kno98] einen rein ballistischen Transport implizieren (entsprechend  $T = 0$  K). Ein zweiter Grund für einen reduzierten Transport-Effekt können Sekundär- und Kaskadenelektronen sein, die verstärkt im hier untersuchten Energiebereich in der Nähe des Fermi-Niveaus auftreten.

