

HEISSE ELEKTRONEN IN GOLD

Elektronen in einem Materialverbund können überschüssige Energie durch Stöße und Transport umverteilen. Diese Abläufe zu verstehen, ist wichtig für die Optimierung elektronischer Bauteile. Mit unseren Experimenten können wir nachvollziehen, was genau passiert.

Ein elektrischer Leiter, der sich erwärmt; eine Solar- oder eine Brennstoffzelle, die Strom liefert: Hinter solchen makroskopischen Phänomenen stecken mikroskopische Prozesse. So hat die Erwärmung eines Stromleiters mit Stößen zwischen Elektronen und Atomrümpfen zu tun, der Solarstrom mit Lichtteilchen, die von Elektronen absorbiert werden, und in der Brennstoffzelle findet eine chemische Reaktion statt. Solche Schlüsse von makroskopischen Beobachtungen auf die dahinterstehenden elementaren Prozesse bemühen mal etablierte Modelle, mal beruhen sie nur auf plausiblen Vorstellungen. Quantitativen Aufschluss geben Experimente.

ENERGIEUMVERTEILUNG IN ORT UND ZEIT

Betrachten wir als Beispiel Gold – einen metallischen, elektrischen Leiter. Ein Elektron in diesem Material kann durch die Absorption eines Lichtteilchens, also eines Photons, auf ein höheres Energieniveau angeregt werden und sich infolge-

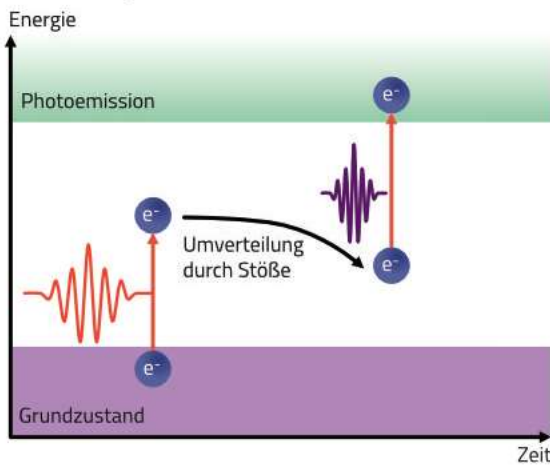
dessen als „heißes“ Elektron durch das Material bewegen. Dabei verliert es seine Energie durch unterschiedliche Prozesse – es relaxiert. Die Thermodynamik erlaubt es, die Prinzipien dieses Prozesses mithilfe der Boltzmann-Gleichung zu beschreiben. Demnach ändert sich die elektronische Verteilung im Lauf der Zeit durch

- die ausschließlich zeitabhängige Umverteilung durch Stoßprozesse an Ort und Stelle,
- die Umverteilung durch Transport,
- und die Umverteilung, die, falls vorhanden, durch ein äußeres elektrisches Feld bewirkt wird.

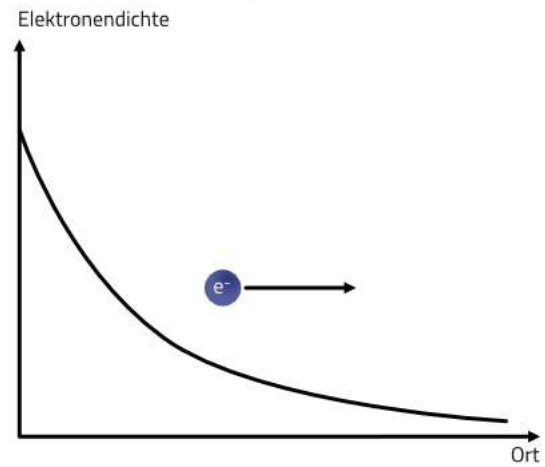
Die Bedeutung dieser drei Beiträge zur Relaxation lässt sich experimentell ermitteln. Da diese Prozesse alle sehr schnell ablaufen, braucht es dafür

Heiße Elektronen haben eine hohe kinetische Energie – höher als die, die für die jeweilige Temperatur innerhalb des Atomgitters üblich ist.

Umverteilung an Ort und Stelle



Umverteilung durch Transport



Die Umverteilung von Energie kann an Ort und Stelle geschehen (links): Ein Elektron wird vom ersten Lichtblitz angeregt, verliert dann durch Stöße Energie und wird vom zweiten Lichtblitz erneut angeregt und emittiert. Über den Energieerhaltungssatz lässt sich aus der kinetischen Energie am Ende die durch Stöße verlorene Energie quantifizieren. Rechts ist die Umverteilung von Energie durch Transport gezeigt. Elektronen wandern zu Orten mit geringerer Teilchendichte.

eine Zeitauflösung von wenigen Femtosekunden. Diese erreichen wir mit Anrege-Abfrage-Spektroskopie. Wir haben dieses Verfahren, bei dem mikroskopische Vorgänge mit Lichtblitzen ausgelöst und anschließend beobachtet werden, mit Photoelektronenspektroskopie kombiniert, mit der die Energie der austretenden Elektronen bestimmt werden kann. Durch den ersten Lichtpuls wird ein Elektron angeregt; durch den zweiten, stärkeren Lichtpuls wird es emittiert – dies ist die „Abfrage“. Die Analyse der kinetischen Energie der emittierten heißen Elektronen erlaubt dann zu erkunden, was mit ihnen nach der Anregung passiert ist. Die Methode wird 2PPE genannt, was für Zwei-Photon-Photoelektronenspektroskopie steht. Damit können wir den Prozess beobachten und die genannten Beiträge zur Relaxation – zeitabhängige Umverteilung und Umverteilung durch Transport – quantitativ untersuchen.

zeit der Elektronen durch die Heterostruktur und damit den Transportprozess untersuchen.

MEHR ENERGIE, SCHNELLERE RELAXATION

Beim 2PPE-Experiment erfassen wir die Intensität für verschiedene Elektronenenergien in Abhängigkeit der Verzögerung zwischen den Lichtpulsen, also zwischen Anregung und Abfrage. So konnten wir feststellen, dass die Intensität exponentiell mit der Zeit abnimmt. Daraus lässt sich eine energieabhängige Relaxationszeit bestimmen. Aus den breiter werdenden Intensitätsverläufen ist ersichtlich, dass diese Zeit mit abnehmender Energie länger wird. Das bedeutet: Die Wahrscheinlichkeit, dass das Elektron seinen angeregten Zustand verlässt, ist umso geringer, je

ZWEI SEITEN EINER STRUKTUR

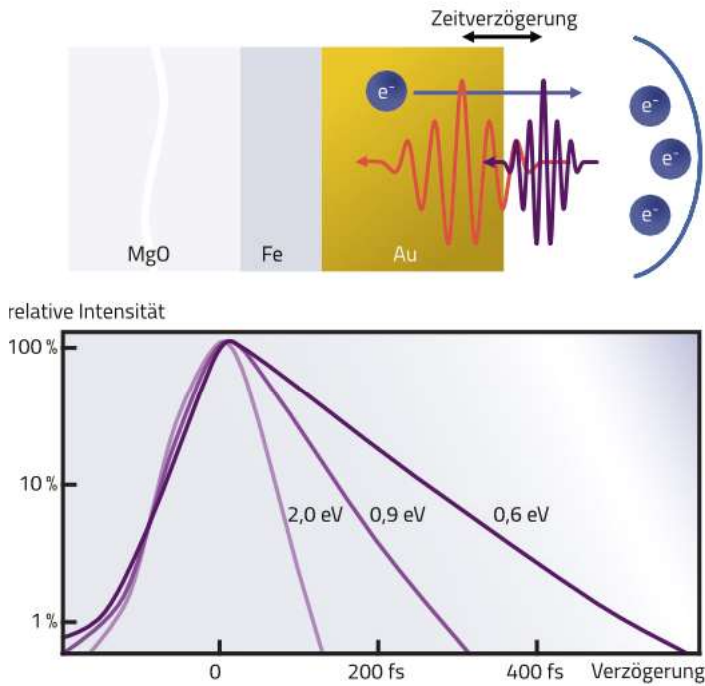
Für unsere Experimente haben wir eine Heterostruktur benutzt, die aus einer dünnen Eisenschicht und einer etwas dickeren Goldschicht besteht. Einmal ließen wir sowohl den Anrege- als auch den Abfrage-Laserpuls auf die Goldseite treffen. Bei einem zweiten Durchgang fiel der anregende Lichtpuls auf die Eisen- und die Abfrage erfolgte auf der Goldseite. Auf diese Weise konnten wir zusätzlich zur Relaxation die Lauf-

In solch einer Ultrahochvakuumapparatur werden die Proben hergestellt und charakterisiert sowie die austretenden Photoelektronen analysiert. Hinter dem transparenten Vorhang befindet sich der verwendete Kurzpuls-Laser.

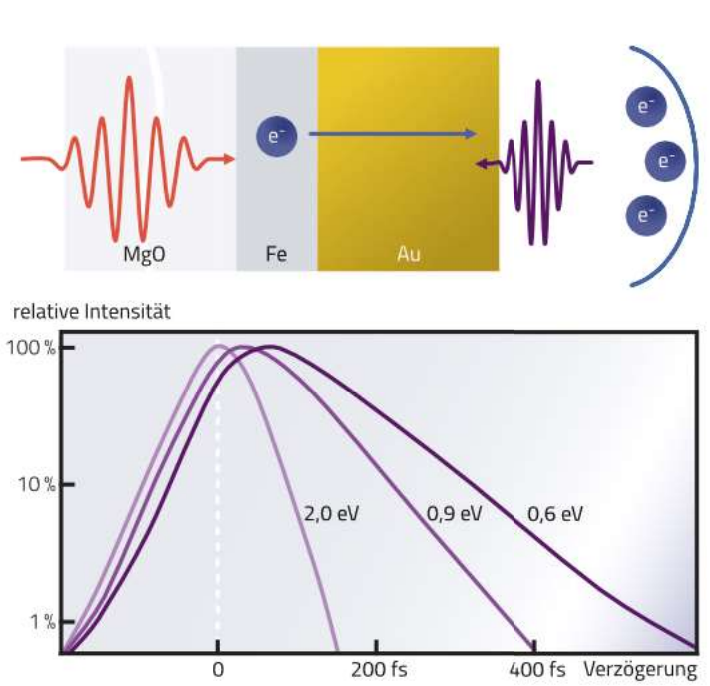
Eine Heterostruktur ist eine künstliche Kombination natürlich vorkommender Materialien, die – verglichen mit den einzelnen Materialien – neue Eigenschaften aufweist.



Anregung und Abfrage auf der Goldseite



Anregung auf der Eisenseite, Abfrage auf der Goldseite



Schematische Skizze des Experiments und dazu die zeitaufgelöste 2PPE-Intensität für unterschiedliche Energien (oberhalb des Grundzustands) nach der Anregung (vereinfacht nach Beyazit et al., Phys. Rev. Lett. 125, 076803 (2020)). Im ersten Durchgang (links) wird die Heterostruktur auf der Goldseite angeregt und dann mit einem zweiten Laserpuls, der die doppelte Frequenz des Abfragepulses hat und aus diesem erzeugt wird, abgefragt. Austrittende Photoelektronen werden mithilfe eines Elektronenspektrometers nachgewiesen. Beim zweiten Durchgang (rechts) erfolgt die Anregung auf der Eisenseite und die Abfrage auf der Goldseite. Die Anregung bei Verzögerungszeit null ist in beiden Graphen deutlich zu erkennen. Abhängig von der Energie der Elektronen erfolgt dann im weiteren Zeitverlauf die Relaxation, erkennbar an der abnehmenden Intensität.

geringer die Anregung ist – oder umgekehrt umso höher, je mehr Energie das Elektron hat.

Informationen über die Laufzeit der Elektronen durch die Heterostruktur erhielten wir im zweiten Experiment, in dem die Eisenseite angeregt und die Goldseite abgefragt wurde. Das Intensitätsmaximum ist hier abhängig von der Energie entlang der Zeitachse verschoben – was der Laufzeit durch die Heterostruktur entspricht. Diese nimmt mit kleinerer Elektronenenergie zu – je geringer die Energie, desto länger brauchen die Elektronen, um die Heterostruktur zu durchqueren.

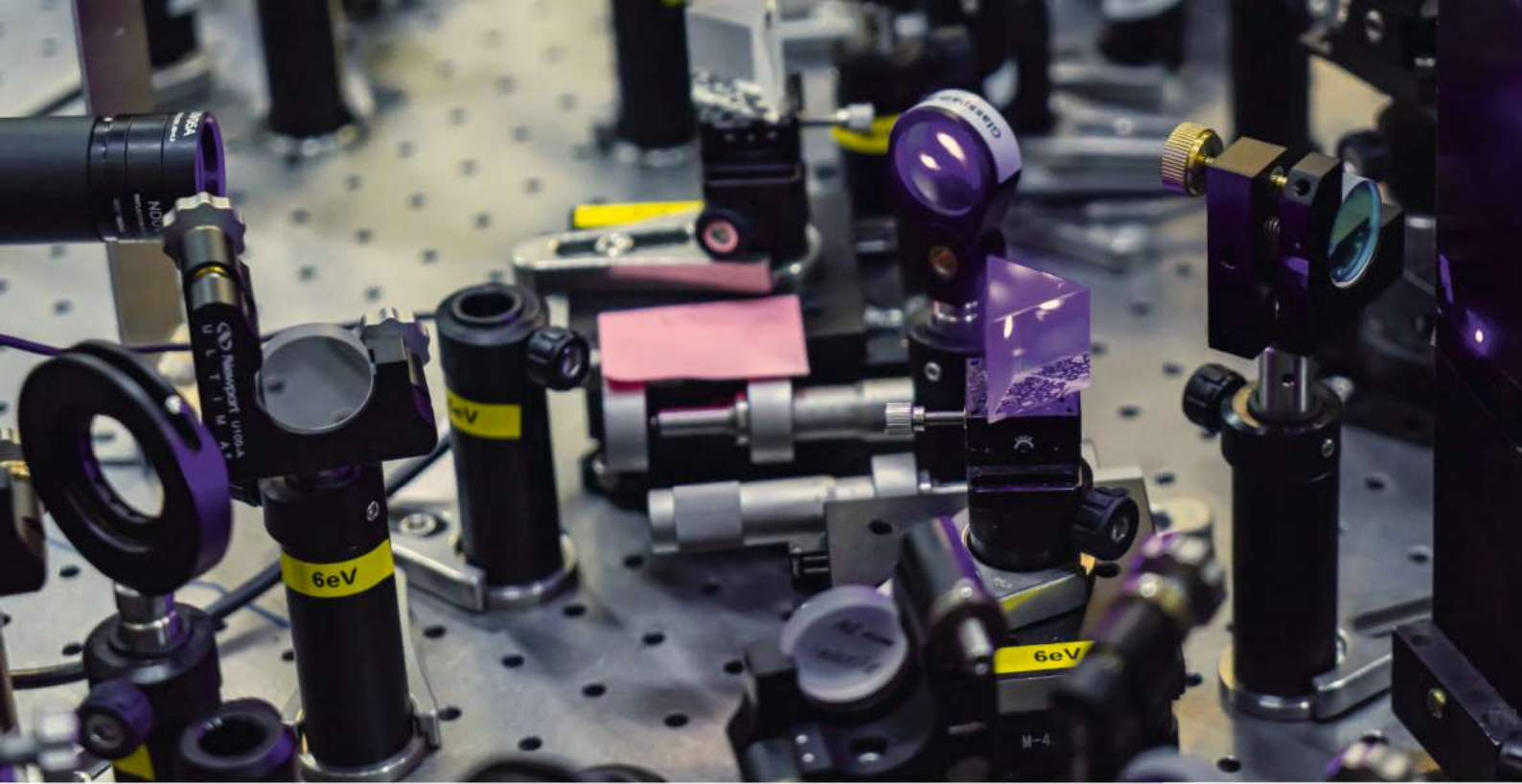
Unsere Messdaten zeigen also, dass die Relaxationszeit und die Laufzeit umso kürzer sind, je mehr Energie die Elektronen haben. Die Laufzeiten und die Relaxationszeiten hatten in unserem Experiment zudem sehr ähnliche Zahlenwerte: Elektronen brauchten zwischen 20 und 100 Femtosekunden, um zu relaxieren. Wenn die Elektronen durch das Material laufen, benötigen Sie dafür eine Zeit von 60 Femtosekunden.

Da sich die Relaxationszeit als mittlere Zeit zwischen zwei inelastischen Streueignissen verstehen lässt, bedeutet das, dass ein Elektron während des Durchquerens der Heterostruktur im Schnitt einmal inelastisch gestreut wird.

EINBLICK IN EINE VERGRABENE SCHICHT

Für den Vergleich mit Literaturwerten haben wir aus unserem Experiment eine Relaxationszeit von 60 Femtosekunden bei 0,8 Elektronenvolt abgeleitet – deutlich schneller als im Volumenkristall. Um der Ursache hierfür auf den Grund zu gehen, haben wir verschiedene Goldschichtdicken betrachtet – zunächst mithilfe einer analytischen Überlegung.

Angenommen, die Elektronen relaxieren unabhängig voneinander im Eisen oder im Gold und Streuung an der Grenzfläche zwischen den Materialien würde keine Rolle spielen, dann müssten die Elektronen mit wachsender Schichtdicke einen längeren Weg im Gold zurücklegen. Wir sind daher von einem linearen Zusammenhang zwischen dem Kehrwert der Relaxationszeit in Gold und dem Kehrwert der Goldschichtdicke ausgegangen. Diesen Zusammenhang konnten wir tatsächlich experimentell bestätigen und daraus Werte für die Relaxationszeit von Gold und Eisen ableiten. Sie stimmten im Rahmen der Messunsicherheit mit den Literaturwerten für einen Volumenkristall überein. Man kann also durch die Analyse der Schichtdickenabhängigkeit spektroskopisch in eine vergrabene Schicht hineinsehen – in

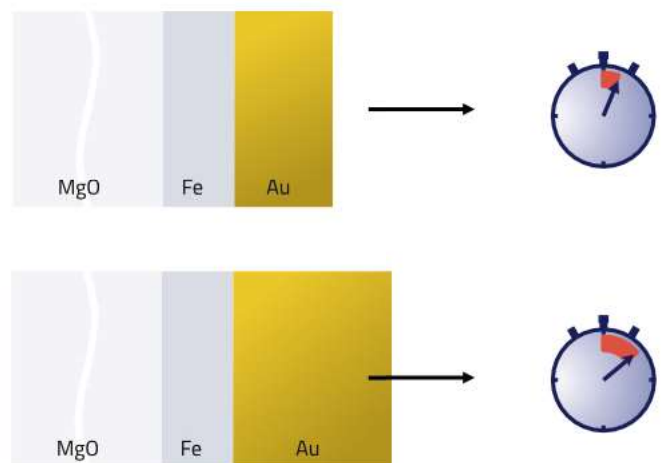
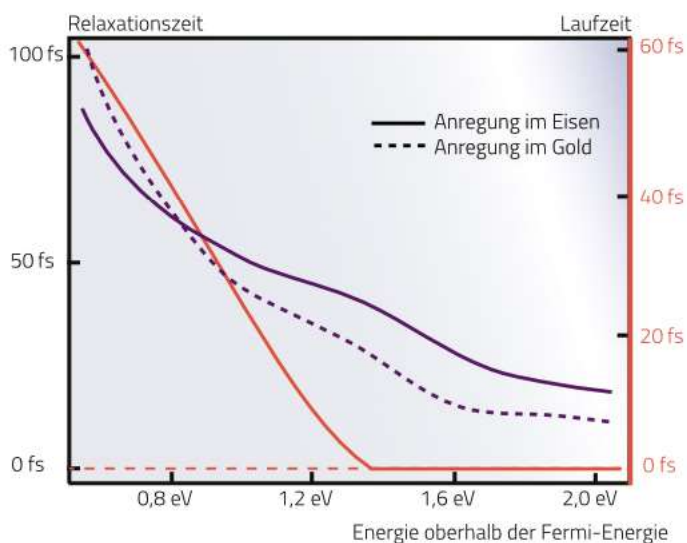


diesem Fall Eisen, das zwischen dem Gold und dem Magnesiumoxid-Substrat versteckt ist.

Bei weiterführenden Experimenten könnte man die Schichtdicke des Eisens variieren. Damit sollte es möglich sein, die Relaxationsrate direkt an der Grenzfläche zu bestimmen. Zusätzlich ist es denkbar, die Transporteffekte zu eliminieren: Dazu müsste man eine ausreichend dünne Goldschicht auf einem isolierenden Substrat untersuchen, so dass die Elektronen sich gar nicht wegbewegen können. Aufbauend auf Experimenten anderer Arbeitsgruppen werden wir außerdem die Umverteilung

der Elektronenenergie in einem elektrischen Feld genauer untersuchen. So können die in der Boltzmann-Gleichung beschriebenen Beiträge zur Relaxation von heißen Elektronen an unterschiedlichen Systemen quantitativ erforscht werden. Das gibt beispielsweise Aufschluss über den Ladungstransport in Leitern, Halbleitern und an Grenzflächen von Heterostrukturen.

Projektleitung: Uwe Bovensiepen



Auf der linken Achse sind die Relaxationszeiten für Anregung auf der Eisen- und der Goldseite dargestellt. Als rote Linie ist die Verzögerung in der Laufzeit auf der rechten Achse bei Anregung der Eisenseite gezeigt. Für die Anregung der Goldseite fanden wir keine solche Verzögerung.

Die gemessene Relaxationszeit in der Heterostruktur hängt nicht nur von der Energie, sondern auch von der Dicke der Goldschicht ab. Je dünner sie ist, desto kürzer ist die Relaxationszeit in der Heterostruktur.