

# Die Grundlagen der Photoemissions-Tomographie

Projektnummer: I 3731

In der Quantenmechanik tritt bekanntlich an die Stelle eines scharf definierten Orts eines Teilchens die Wellenfunktion, deren Betragsquadrat die Aufenthaltswahrscheinlichkeits-dichte eines Teilchens beschreibt, auch Orbitale genannt. Von besonderem Interesse sind die Orbitale des Valenzbandes, welche die niedrigsten Bindungsenergien aufweisen und in chemische Bindungen am stärksten involviert sind. Diese Valenzbandorbitale definieren die spezifischen chemischen, elektrischen und optischen Eigenschaften vom einfachsten Molekül bis hin zu komplexen, neuartigen Nanostrukturen. Die zur Bestimmung von Orbitalen angewandte experimentelle Methodik spannt einen weiten Bogen von der Femtosekunden-Hochleistungs-Laserspektroskopie bis hin zu Tiefsttemperatur-Rastersonden-Methoden. Obwohl diese Ansätze auf allgemeines und breites Interesse gestoßen sind, so waren sie bislang doch nur für wenige, einfache Moleküle oder unter sehr eingeschränkten Bedingungen erfolgreich, etwa, weil wegen der Moleküldiffusion das Kühlen mit flüssigem Helium auf ultrakalte Probertemperaturen notwendig ist. Im Gegensatz dazu ist der von uns gewählte experimentelle Ansatz der winkelaufgelösten Photoemissions-Spektroskopie auch auf technologisch relevante Temperaturen und Molekül-Substrat-Systeme anwendbar. Darüber hinaus bietet unsere Methode, die wir Photoelektronen-Tomographie genannt haben, die Möglichkeit, erstmals auch dreidimensionale Bilder von Orbitalen organischer Moleküle zu erhalten. Dabei wird eine Probe, auf der die zu untersuchenden Moleküle im Ultrahochvakuum aufgebracht wurden, mit UV-Licht beleuchtet, worauf die herausgelösten Elektronen in Bezug auf deren Winkelverteilung und Energie detektiert werden. Allerdings ist die Interpretation dieser experimentellen Daten nicht ganz einfach. Insbesondere müssen Annahmen über den quantenmechanischen Endzustand beim Übertritt des Elektrons vom gebundenen Molekülorbital zum herausgelösten Elektron getroffen werden. Der einfachste Ansatz hierfür ist ein freier Elektronenzustand. Diese Näherung bietet den Vorteil, dass die experimentellen Ergebnisse besonders einfach interpretiert werden können, was unter anderem die Bestimmung von Molekülgeometrien, oder Impulsverteilungen der Elektronen bis hin zu Orbitalbildern ermöglicht. In diesem Projekt soll nun untersucht werden, unter welchen Rahmenbedingungen (das sind geometrische Parameter des Versuchsaufbaus, die Energie des anregenden UV-Lichts, die Art und Größe der untersuchten Moleküle) diese vereinfachenden Annahmen sinnvoll eingesetzt werden können. Mit einem Team bestehend aus Oberflächenphysikern von der Universität Graz und dem Forschungszentrum Jülich sowie mit einem Expertenteam zur Erzeugung von UV-Licht mittels Synchrotronstrahlungsquellen von der Physikalisch-Technischen Bundesanstalt Berlin sind dazu eine Reihe von Experimenten geplant, die den Gültigkeitsbereich der freien Elektronen-Näherung abstecken sollen. Um die experimentelle Ergebnisse zu interpretieren und um vorherzusagen, in welchem Maße der Endzustand der Photoemission von einem Freie-Teilchen-Zustand abweicht, wird das Projektteam noch durch Experten auf dem Gebiet der quantenmechanischen ab-initio Berechnung elektronischer Eigenschaften der Universität Graz verstärkt. Die Möglichkeit, Orbitale technologisch relevanter Moleküle abzubilden, wird zweifelsohne unser grundlegendes Verständnis des Konzepts quantenmechanischer Elektronenorbitale erweitern. Dies erlaubt etwa die detaillierte Untersuchung vieler physikalischer und chemischer Prozesse an der Grenzfläche zwischen Molekülen und Oberflächen. Beispiele bilden das Maßschneidern von katalytischen Oberflächen, Sensoren, neuartigen Molekülen und Nanostrukturen aus dem Bereich Energiegewinnung, etwa Photovoltaik, und Energiespeicherung, aber auch die Identifizierung und Charakterisierung unbekannter Moleküle.