

Titel der Dissertation: Innerschalen Photoabsorption und Photoemission von Alkalihalogenid Clustern und Halbleiter Nanokristallen

Autor: Manfred Riedler

Datum der Disputation: 20. Dezember 2000

Engl. Titel der Dissertation: Innershell photoabsorption and photoemission of alkali halide clusters and semiconductor nanocrystals

Deutsche Kurzfassung:

In dieser Arbeit wird die geometrische und elektronische Struktur von Clusterfilmen und freien Clustern in der Gasphase mit Hilfe von Synchrotronstrahlung untersucht. Den ersten Teil der Arbeit bilden die Ergebnisse der Photoabsorptionsspektroskopie (**X-ray Absorption Near-Edge Structure, XANES**) an freien NaCl-Clustern und an Clusterfilmen unterschiedlicher Größenverteilungen. Die Verwendung einer Cluster Pick-Up Quelle ermöglichte die Herstellung von sowohl freien als auch in Argon eingebetteten Clustern. Dabei verhindert die Schutzhülle der Ar-Atome eine Agglomeration der NaCl-Cluster bei der Deposition.

Die XANES-Spektren an der Na K-Kante zeigen eine graduelle Entwicklung mit der Clustergröße. Oberhalb der Kante sind in den Absorptionsspektren aufgrund der Vielfachstreuung der auslaufenden Elektronenwelle Oszillationen zu sehen. Aus diesen Strukturen konnte die Bindungslänge im Cluster für die jeweilige Clustergröße bestimmt werden. Das Ergebnis ist in guter Übereinstimmung mit einem einfachen elektrostatischen Modell, welches nur die Coulomb Wechselwirkung und eine Born-Meyer Abstoßung zwischen den einzelnen Ionen berücksichtigt. Des weiteren zeigt ein Vergleich der experimentellen Spektren mit einem theoretischen Spektrum nach der Methode der Vielfachstreuung ebenfalls gute Übereinstimmung.

Der zweiten Teil der Arbeit stellt die Ergebnisse der Photoemissionsspektroskopie (**X-ray Photoelectron Spectroscopy, XPS**) an deponierten InAs-Nanokristallen vor. Die Durchführung dieser Experimente erforderte eine neue Vakuumkammer in UHV-Technik, die im Rahmen dieser Arbeit konzipiert und aufgebaut wurde.

Die nasschemisch hergestellten InAs-Nanokristalle sind mit organischen Liganden an der Oberfläche chemisch passiviert. Die XPS-Spektren des As3d- und In4d-Niveaus der größenselektierten Nanokristalle zeigen mehrere Komponenten, deren Intensitätsverhältnis sich sowohl mit der Anregungsenergie als auch mit der Clustergröße verändert. Aus der Anpassung dieser Spektren mit Voigt-Funktionen erhält man eine Volumenkomponente und zwei Oberflächenkomponenten. Die energetische Verschiebung und die Verbreiterung der beiden Oberflächenkomponenten deutet auf eine leichte Oxidation an der Oberfläche hin und zeigt die Bindung der Oberflächenatome an die Liganden. Eine stark oxidierte Probe besitzt eine zusätzliche Komponente, die der direkten Oxidation der Oberflächenatome zugeordnet wird.

Englische Kurzfassung:

The geometric and electronic structure of deposited and free clusters were investigated with the use of synchrotron radiation. In the first part of this work absorption spectra (**X-ray Absorption Near-Edge Structure, XANES**) of free and deposited NaCl-Cluster are presented. Spectra were recorded for different cluster size distributions. The use of a cluster pick-up source enabled us to produce both free and Ar-embedded NaCl clusters. The presence of a rare gas shell around the core prevented coalescence of the NaCl clusters during deposition.

XANES spectra at the Na K-edge show a gradual change with cluster size. Oscillations above the edge are due to multiple scattering of the outgoing electron wave. This spectral structure enables bond length determination for each cluster size. Variation of the bond length with cluster size is in reasonable agreement with model calculations assuming a Coulomb interaction and a Born Meyer repulsion between the ions. Furthermore, the spectra were compared with a theoretical spectra calculated using a one-electron full multiple scattering formalism.

Part two treats X-ray Photoelectron Spectra (XPS) of deposited InAs nanocrystals. Requirements of these experiments necessitated the design and construction of a new vacuum chamber with UHV capability within the scope of this work.

The InAs nanocrystals were produced by wet chemical methods. Their surface is chemically passivated by organic ligands. The XPS spectra of the As3d and In4d core levels of the size selected clusters exhibit several components. Their intensity ratios changes with excitation energy as well as with cluster size. The fitting procedure of the spectra with Voigt functions yielded a bulk and two surface components. The energy shift and the broadening of the first surface component signifies a structural relaxation of the surface atoms due to an initial oxidation. The second surface component is assigned to surface atoms, which are bonded to the organic ligands. A heavily oxidized InAs nanocrystal sample shows in addition an oxidation component.

PACS (sortiert nach Wichtigkeit):

- 61.10.Ht X-Ray absorption spectroscopy: EXAFS, NEXAFS, XANES, etc.
- 79.60.-i Photoemission and photoelectron spectra
- 61.46.+w Clusters, nanoparticles, and nanocrystalline materials
- 36.40.Mr Spectroscopy and geometrical structure of clusters
- 71.55.Eq III-V semiconductors
- 36.20.Kd Electronic structure and spectra