

Zeitaufgelöstes Fluoreszenz-Löschen in ultradünnen Coronen-Schichten auf Silizium-Substraten

P. Fischer, H. Port, and H. C. Wolf

3. Physikalisches Institut, Universität Stuttgart, Stuttgart, Germany

Z. Naturforsch. **47a**, 797–802 (1992); received June 8, 1992

*Time-resolved Fluorescence Quenching in Ultrathin Coronene Films on Silicon Substrates:
Coverage Dependence*

The fluorescence decay from thin coronene films deposited on Si(100) and Si/SiO₂ substrates are measured as a function of coronene coverage at helium temperature. As the film thickness is decreased (1000 Å–10 Å) the decays are shortened and increasingly deviate from monoexponential. Excellent fits to the experimental curves are achieved by superimposing the monoexponential decay by an empirical function of the Kohlrausch type. Possible quenching processes are modeled in terms of energy transport through the layer followed by trapping in surface states and direct energy transfer from the excited molecules to the substrate.

1. Einleitung

Die vorliegende Arbeit schließt an eine Veröffentlichung zu Coronen-Aufdampfschichten an, die unter Variation von Schichtdicke und Substrat mit Hilfe der cw-Fluoreszenzspektroskopie untersucht wurden [1]. Dort wurde eine substratspezifische vibronisch strukturierte Fluoreszenz dünner Coronen-Schichten auf reaktiven Si(100)- und Si(111)-Substraten bei He-Temperatur gefunden, die auf substratinduzierte Fallenzustände in der Aufdampfschicht zurückgeführt wird. Diese Fluoreszenz unterscheidet sich deutlich von der breitbandigen Fluoreszenz eines Coronen-Kristalls. Schichtdickenabhängige Messungen der Schichten auf Si(100)-Substraten zeigten, daß bei Schichtdicken kleiner als ca. 50 Å die schmalbandige monomerische Fluoreszenz auftrat, während bei Schichtdicken größer als ca. 500 Å die breitbandige kristallartige Fluoreszenz überwog. Auf den weniger reaktiven Oberflächen von Si/SiO₂, Graphit(0001) und MoS₂(0001) wurde dagegen unabhängig von der Schichtdicke eine breitbandige kristallähnliche Fluoreszenz beobachtet.

In der vorliegenden Arbeit werden an denselben Proben wie in [1] gemessene Fluoreszenzzerfallscurven von Coronen-Schichten auf dem reaktiven Si(100)- und dem chemisch nicht reaktiven Si/SiO₂-Substrat unter Variation der Schichtdicke vorgestellt und diskutiert.

Reprint requests to Prof. Dr. H. C. Wolf, 3. Physikalisches Institut, Universität Stuttgart, W-7000 Stuttgart 80.

0932-0784 / 92 / 0700-0797 \$ 01.30/0. – Please order a reprint rather than making your own copy.

Zwei konkurrierende Prozesse können Einfluß auf die beobachtete Fluoreszenzlebensdauer einer organischen Schicht auf einem Substrat haben:

- (I) der Energietransport innerhalb der organischen Schicht und ein eventueller Falleneinfang,
- (II) der direkte Energietransfer vom organischen Molekül zum Substrat.

Im Fall (I) ist die Fluoreszenzlebensdauer stark abhängig von der strukturellen Qualität der organischen Schicht. Während in einer perfekten einkristallinen Schicht der Energietransport effektiv über Excitonen erfolgt, wird er in ungeordneten Systemen durch inkohärentes Hüpfen in Einzelschritten von Molekül zu Molekül erfolgen. Ein direkter Einfang in Fallenzustände führt nach Förster [2] zu einer Verkürzung der Fluoreszenzlebensdauer und zu folgendem Zeitverhalten für den Fluoreszenzzerfall:

$$I(t) = I_0 \exp \left[-\frac{t}{\tau_0} - c \left(\frac{t}{\tau_0} \right)^{1/2} \right]. \quad (1)$$

Der Parameter c ist hierbei der Fallenzkonzentration proportional, τ_0 ist die Fluoreszenzlebensdauer des isolierten Moleküls. Von dieser für einen dreidimensionalen Transport in Fallenzustände hergeleiteten Beziehung wurden in der Literatur für zweidimensionale oder fraktale Systeme auch abweichende Beziehungen verwendet [3, 4] bzw. [5].

Theoretische Untersuchungen zum Fall (II) eines direkten Energietransfers zwischen angeregtem Molekül und Substrat wurden für Metall-Substrate [6] und für Halbleiter-Substrate [7] durchgeführt. Das oszillie-



Dieses Werk wurde im Jahr 2013 vom Verlag Zeitschrift für Naturforschung in Zusammenarbeit mit der Max-Planck-Gesellschaft zur Förderung der Wissenschaften e.V. digitalisiert und unter folgender Lizenz veröffentlicht: Creative Commons Namensnennung-Keine Bearbeitung 3.0 Deutschland Lizenz.

Zum 01.01.2015 ist eine Anpassung der Lizenzbedingungen (Entfall der Creative Commons Lizenzbedingung „Keine Bearbeitung“) beabsichtigt, um eine Nachnutzung auch im Rahmen zukünftiger wissenschaftlicher Nutzungsformen zu ermöglichen.

This work has been digitized and published in 2013 by Verlag Zeitschrift für Naturforschung in cooperation with the Max Planck Society for the Advancement of Science under a Creative Commons Attribution-NoDerivs 3.0 Germany License.

On 01.01.2015 it is planned to change the License Conditions (the removal of the Creative Commons License condition "no derivative works"). This is to allow reuse in the area of future scientific usage.

rende Dipolfeld eines angeregten Moleküls im Abstand r über der Substrat-Oberfläche kann im Metall-Substrat Ladungsdichte-Oszillationen und Plasmonen, im Halbleiter-Substrat auch Elektron-Loch-Paare anregen. Für die Energietransferrate vom Molekül zum Metall- bzw. einem indirekten Halbleiter-Substrat wurde eine $1/r^3$ -Abhängigkeit abgeleitet. Entsprechend der Energietransferrate ergibt sich eine abstandsabhängige Verkürzung der strahlenden Lebensdauer des Moleküls gegenüber τ_0 zu

$$\tau(r) = \frac{\tau_0}{1 + (r_0/r)^3}. \quad (2)$$

Der Parameter r_0 ist abhängig von der Orientierung des Moleküls zum Substrat, von der Dielektrizitätskonstante bzw. Bandstruktur des Substrates und der Emissionsfrequenz des Moleküls. Experimentelle Bestätigungen für diese Abstandsabhängigkeit des Lumineszenz-Löschens wurden in den letzten Jahren bei Messungen an organischen Monoschichten mit einem durch Spacermoleküle realisierten variablen Abstand zum Substrat gefunden [8–11]. Nur für sehr kleine Abstände ($r \leq 25 \text{ \AA}$) werden für den indirekten Halbleiter Abweichungen zu kleineren Transferraten vorhergesagt [7].

Zur Beschreibung der in der vorliegenden Arbeit beobachteten Fluoreszenzzerfallscurven der Coronen-Schichten werden beide Modelle (I) und (II) diskutiert.

2. Experimentelles

Als Substrate für die Aufdampfschichten wurde ein Si(100)-Einkristall und ein mit 1200 \AA SiO₂ belegter Silizium-Kristall (im folgenden abgekürzt als SiO₂-Substrat bezeichnet) verwendet [1]. Zur Reinigung der Substrat-Oberflächen wurden die Substrate im Ultrahochvakuum (Basisdruck $\leq 10^{-9} \text{ mbar}$) bei ca. 1000°C ausgeheizt. LEED-Aufnahmen zur Kontrolle der Qualität der Substrat-Oberflächen zeigten im Falle des Si(100)-Substrats eine 2×1 -Rekonstruktion [12].

Die Herstellung der Coronen-Aufdampfschichten erfolgte durch Bedampfen der Substrate mit synthetischem Coronen im Ultrahochvakuum bei Zimmertemperatur [12]. Die Aufdampfrate betrug zwischen 1 \AA/min und 10 \AA/min in Abhängigkeit von der eingestellten Temperatur des Aufdampföfens und wurde über eine geeichte Schwingquarz-Waage kontrolliert. Eine nähere Beschreibung zu experimentellen Details und zur Qualität der Schichten findet sich in [1, 12].

Die Fluoreszenzzerfallscurven wurden an einer Picosekunden-Apparatur mit Einzelphotonen-Zählung bei einer Temperatur von 5 K aufgenommen. Als Anregungslichtquelle wurde ein aktiv modengekopelter Ar-Ionenlaser verwendet, der einen Farbstofflaser (mit Cavity-Dumper) synchron pumpt. Das Licht des Farbstofflasers wurde anschließend mit Hilfe eines nichtlinearen Kristalls aus LiJO₃ frequenzverdoppelt. Der Nachweis der Fluoreszenz erfolgte über einen Doppelmonochromator und einen schnellen Photomultiplier. Die optische Anregung bei der Messung der Coronen-Schichten erfolgte bei 330 nm , der Nachweis selektiv auf einer Fluoreszenzbande bei 463 nm .

3. Experimentelle Ergebnisse

Die Schichtdickenabhängigkeit des Fluoreszenzzerfalls wurde an Coronen-Aufdampfschichten auf Si(100)- und SiO₂-Substraten bei einer Temperatur von 5 K gemessen. Abbildung 1 zeigt die Schichtdickenabhängigkeit der Fluoreszenz-Abklingcurven auf SiO₂ und Si(100) mit mittleren Schichtdicken von jeweils 1000 \AA , 100 \AA , 30 \AA und 10 \AA . Die auf gleiche maximale Intensität normierten Abklingcurven sind in einem Zeitbereich bis ca. 500 ns nach dem Anregungspuls in einem linearen Maßstab aufgetragen. Für beide Substrate findet man einen mit abnehmender Schichtdicke beschleunigten Fluoreszenzzerfall.

Die Abklingcurven sind nicht monoexponentiell, was in der einfach logarithmischen Darstellung der Abklingcurven in Abb. 2 deutlich wird. Es wurden jeweils die gemessenen relativen Quantenströme im gesamten gemessenen Zeitbereich bis ca. 800 ns nach dem Anregungspuls aufgetragen. Mit abnehmender Schichtdicke (1000 \AA , 100 \AA , 30 \AA , 10 \AA) beobachtet man in den stationären Fluoreszenzmessungen eine der Schichtdicke proportionale Abnahme des Fluoreszenzsignals [1]. Die quantitative Bestimmung der relativen Fluoreszenz-Quantenausbeute in Abhängigkeit von der Schichtdicke wurde in der Kurzzeit-Apparatur nicht vorgenommen.

Für beide Substrate zeigen die Abklingcurven eine zunehmende Abweichung vom monoexponentiellen Zerfall mit abnehmender Schichtdicke. Diese Abweichung tritt besonders in der ersten Hälfte des dargestellten Zeitausschnitts hervor. Für größere Zeiten nähern sich die Kurven einem monoexponentiellen Zerfall an, mit einer von der Schichtdicke und dem

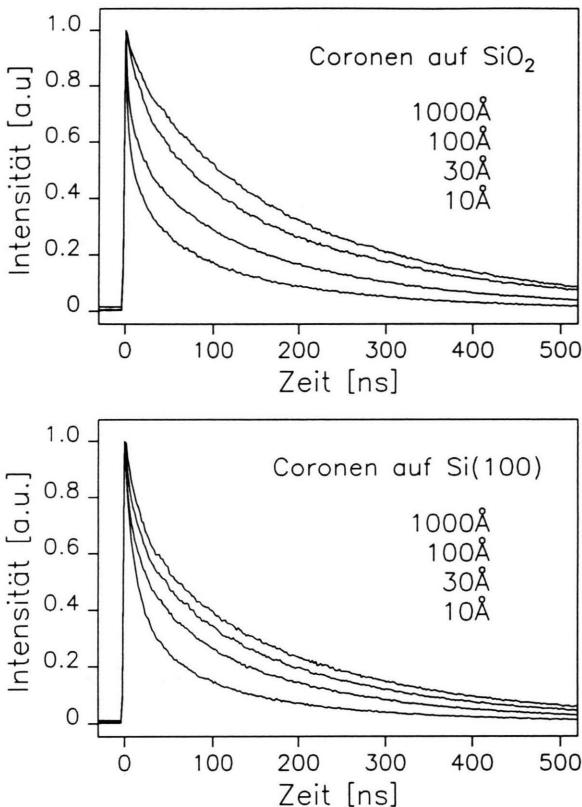


Abb. 1. Schichtdicken-Abhängigkeit der Fluoreszenz-Abklingkurven von Coronen-Abklingkurven auf SiO_2 (oben) und auf $\text{Si}(111)$ (unten) bei $T = 5\text{ K}$ (auf gleiche Maxima normiert aufgetragen). Die Schichtdicken betragen jeweils 1000 \AA , 100 \AA , 30 \AA und 10 \AA . Es zeigt sich eine Verkürzung der Zerfallszeit mit abnehmender Schichtdicke.

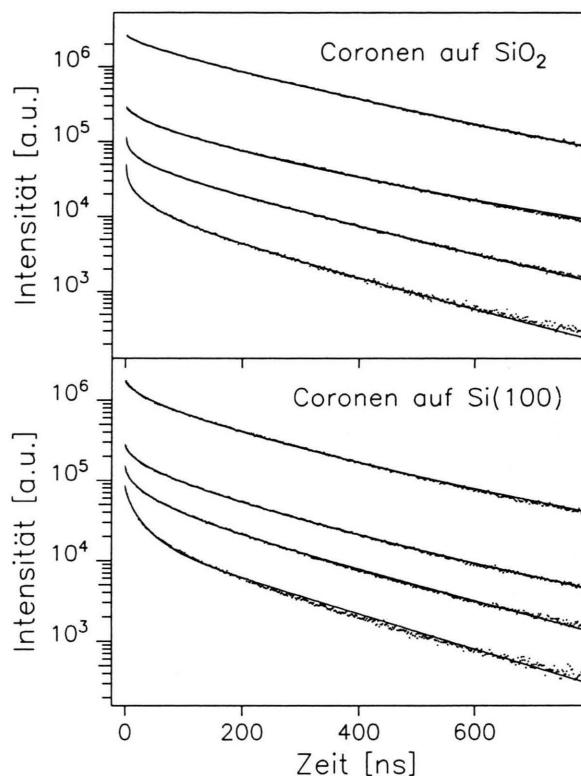


Abb. 2. Schichtdicken-Abhängigkeit der Fluoreszenz-Abklingkurven von Coronen-Aufdampfschichten auf SiO_2 (oben) und auf $\text{Si}(100)$ (unten) bei $T = 5\text{ K}$, halblogarithmische Auftragung der Meßdaten aus Abbildung 1. Die Schichtdicken betragen (jeweils von oben nach unten) 1000 \AA , 100 \AA , 30 \AA und 10 \AA . Die Kurven zeigen eine zunehmende Abweichung vom monoexponentiellen Zerfall mit abnehmender Schichtdicke. Zusätzlich zu den Meßkurven ist jeweils eine Anpassung gemäß (3) eingezeichnet.

Substrat im Rahmen der Fehlergrenzen unabhängigen Zerfallszeit von ca. 230 ns . Dieser Wert entspricht der Tieftemperatur-Lebensdauer eines als Referenz gemessenen Coronen-Kristalls, wo ein monoexponentielles Fluoreszenz-Abklingen bei 5 K gefunden wurde (Abbildung 3). Der Übergang vom schnellen Anfangszerfall zum monoexponentiellen Verlauf erfolgt bei den Schichten auf $\text{Si}(111)$ später als bei den Schichten auf SiO_2 . Ansonsten zeigen sich keine qualitativen Unterschiede in der Schichtdickenabhängigkeit der Abklingkurven zwischen den Aufdampfschichten auf SiO_2 und $\text{Si}(100)$. Dies lässt vermuten, daß vor allem ein Schichtdickeneffekt und weniger der Substrateinfluß für die beobachtete Abweichung vom monoexponentiellen Zerfall maßgeblich ist.

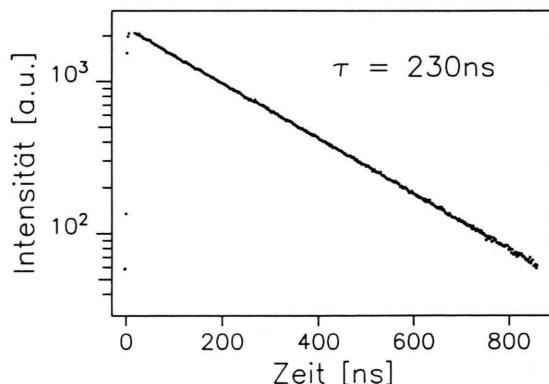


Abb. 3. Fluoreszenz-Abklingkurve des Coronen-Kristalls bei $T = 5\text{ K}$ in halblogarithmischer Auftragung. Das Abklingen erfolgt monoexponentiell mit einer Lebensdauer von 230 ns .

4. Diskussion

Die beobachtete Verkürzung des Fluoreszenzzerfalls soll im folgenden in einem ersten Schritt nach einem empirischen Zerfallsgesetz, sodann anhand der in der Einleitung beschriebenen Modelle eines abstandsabhängigen direkten Energietransfers vom organischen Molekül zum Substrat, bzw. eines Förstertransfers in Fallenzustände, diskutiert werden.

4.1. Empirische Kurvenanpassung

Um das Abweichen vom monoexponentiellen Zerfall näher, aber noch modellunspezifisch zu quantifizieren, wurde ein Abklingverhalten der Form

$$I(t) = I_1 \exp \left[-\left(\frac{t}{\bar{\tau}} \right)^\alpha \right] + I_2 \exp \left[-\frac{t}{\tau_0} \right], \quad \alpha = 0, \dots, 1 \quad (3)$$

an die beobachteten Fluoreszenzzerfallscurven angepaßt (Abbildung 2). Der erste Term in (3) ist eine sogenannte Kohlrauschfunktion [13], die in der Literatur häufig zur Beschreibung nichtexponentiellen Verhaltens verwendet wird. Der zweite Term beschreibt einen überlagerten, rein monoexponentiellen Anteil. Für den letzteren wurde die gefundene schichtdickenunabhängige Langzeitkomponente $\tau_0 = 230$ ns eingesetzt.

Als Fitverfahren wurde die Levenberg-Marquardt-Methode [14] verwendet. Fitparameter sind $\bar{\tau}$, α und das Amplitudenverhältnis I_2/I_1 . Die nach der Anpassung erhaltenen Werte für die Fitparameter sind in Tabelle 1 zusammengefaßt.

- Der Parameter α beschreibt die Abweichung des Kohlrausch-Terms vom monoexponentiellen Zerfall und ist bei allen Schichten deutlich kleiner als der Wert 1. Mit abnehmender Schichtdicke nimmt die Abweichung von 1 unabhängig vom Substrat zu.
- Die beobachtete charakteristische Lebensdauer $\bar{\tau}$ ist als Funktion der Schichtdicke d in Abb. 4 graphisch aufgetragen. Sie nimmt mit abnehmender Schichtdicke deutlich ab. Bei gleicher Schichtdicke ist die Lebensdauer $\bar{\tau}$ der Coronen-Schicht auf dem Si(100)-Substrat jeweils kürzer als auf dem SiO_2 -Substrat.
- Die Notwendigkeit eines monoexponentiellen Zerfallsterms in (3) mit der Lebensdauer τ_0 des Coronen-Kristalls gibt einen Hinweis auf teilweise vorliegende ungestörte Coronen-Mikrokristallite in den Schichten. Das Verhältnis I_2/I_1 in Tab. 1 drückt

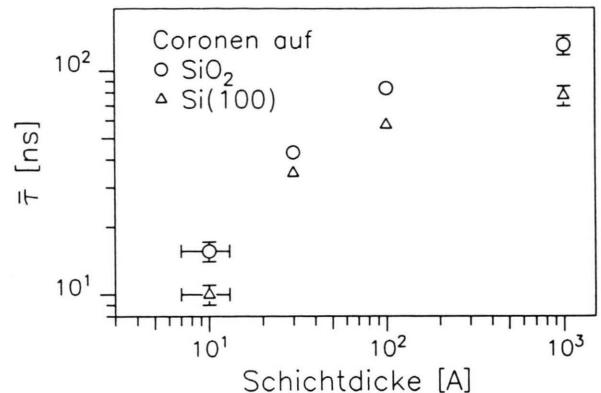


Abb. 4. Schichtdicken-Abhängigkeit der Fluoreszenz-Lebensdauer $\bar{\tau}$ von Coronen-Aufdampfschichten auf Si(100) und auf SiO_2 bei $T = 5$ K. Der Wert von $\bar{\tau}$ ergibt sich aus einer Anpassung der Abklingkurven gemäß (3).

Tab. 1. Fitwerte für die Lebensdauer $\bar{\tau}$, den Parameter α und das Amplitudenverhältnis I_2/I_1 der Fluoreszenz-Abklingkurven von Coronen-Schichten auf den Substraten SiO_2 und Si(100) in Abhängigkeit von der Schichtdicke d gemäß (3).

Substrat	d [Å]	$\bar{\tau}$ [ns]	α	I_2/I_1
SiO_2	1000	129,9	0,678	0,67
	100	84,0	0,573	0,49
	30	43,2	0,478	0,22
	10	15,6	0,459	0,15
Si(100)	1000	77,3	0,601	0,33
	100	57,6	0,574	0,28
	30	34,8	0,549	0,22
	10	10,0	0,530	0,17

dabei eine systematische Abnahme des relativen Anteils dieser ungestörten Mikrokristallite zur Gesamtschicht mit abnehmender Schichtdicke aus.

Abbildung 5 zeigt die Schichtdickenabhängigkeit der Fluoreszenz-Abklingkurven in halblogarithmischer Darstellung jeweils abzüglich des gemäß der Anpassung gefundenen rein monoexponentiellen Anteils. In dieser Darstellung wird die Abweichung vom monoexponentiellen Zerfall und die mit abnehmender Schichtdicke zunehmende Verkürzung des Zerfalls besonders deutlich. Die eingezeichnete Anpassung der Kohlrauschfunktion (erster Term in (3)) stimmt unabhängig vom Substrat und für alle Schichtdicken gut mit der jeweiligen Zerfallscurve überein.

4.2. Modell eines direkten Energietransfers zum Substrat

Ein isoliertes Molekül in einem Abstand r über einer Substratoberfläche hat, gemäß der für Metall-

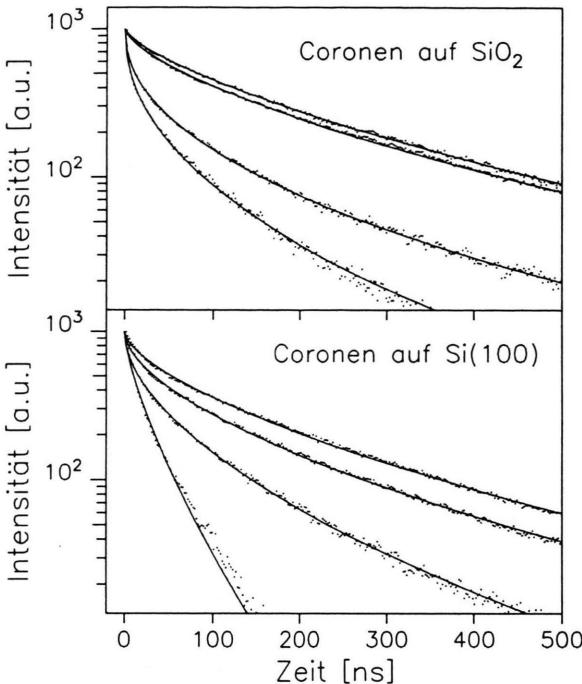


Abb. 5. Modifizierte Auftragung zum Fluoreszenz-Abklingen für Coronen-Aufdampfschichten auf SiO_2 (oben) und $\text{Si}(100)$ (unten) bei $T=5\text{ K}$. Meßdaten aus Abb. 1, jeweils abzüglich des rein monoexponentiellen Anteils. Die Schichtdicken betragen (von oben nach unten) 1000 Å, 100 Å, 30 Å und 10 Å. Zusätzlich zu den Meßdaten sind Anpassungen gemäß (3) (1. Term) eingezeichnet. Alle Kurven wurden auf gleiche maximale Intensität normiert aufgetragen.

substrate [6] hergeleiteten Beziehung (2), eine verkürzte Lebensdauer $\tau(r)$ mit der die Anregung monoexponentiell zerfällt. Bei den hier betrachteten Coronen-Schichten handelt es sich nicht um Monoschichten, sondern um Multilagenschichten. In einer Schicht der Schichtdicke d liegt eine Verteilung von Molekülen vor, mit einem von $r \approx 0$ bis $r = d$ variierenden Molekül-Substrat-Abstand. Nimmt man vereinfachend an, daß einerseits die Schicht gleichmäßig homogen ist, und daß andererseits jedes Molekül im Abstand r zum Substrat monoexponentiell mit der Lebensdauer $\tau(r)$ zerfällt, erhält man bei einer Summation über die gesamte Schichtdicke näherungsweise ein Abklingverhalten der Form

$$I(t) = I_0 \int_0^d e^{-t/\tau(r)} dr. \quad (4)$$

Damit ergibt sich qualitativ ein vom monoexponentiellen Verhalten abweichender Zerfall. Eine quantita-

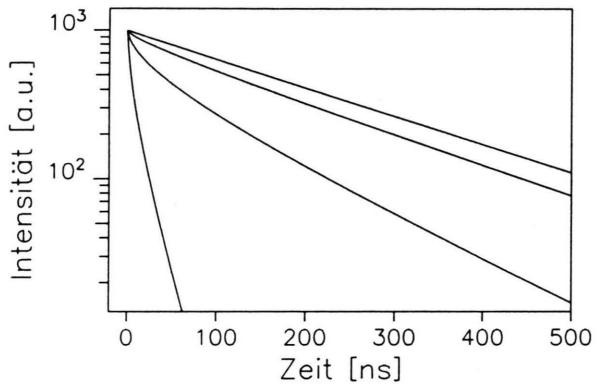


Abb. 6a. Numerisch berechnete Schichtdicken-Abhängigkeit der Zerfallskurven im Modell eines direkten Energietransfers zum Substrat nach (4). Der Wert für die Schichtdicke d ist 1000 Å, 100 Å, 30 Å und 10 Å (von oben nach unten).

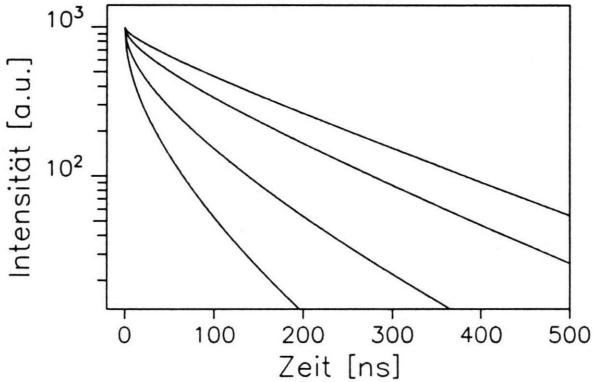


Abb. 6b. Numerisch berechnete Zerfallskurven im Modell eines Förster-Einsangs nach (1). Variiert wurde der zur Fallenzkonzentration proportionale Parameter $c=0,5, 1,0, 2,2, 3,8$ (von oben nach unten).

tive Abschätzung erhält man durch eine numerische Integration der Gleichung mit der Wahl von sinnvollen Werten für die Parameter τ_0 und r_0 . Für große Abstände r muß sich $\tau(r)$ der Lebensdauer des freien Coronen-Kristalls annähern, d.h. $\tau_0 = 230\text{ ns}$. Für den materialabhängigen Parameter r_0 wurde ein Wert von 20 \AA gewählt, was bedeutet, daß die Lebensdauer eines Moleküls im Abstand von 20 \AA zur Substratoberfläche auf die Hälfte des Wertes von τ_0 abgenommen hat.

Die so berechneten Zerfallskurven für die Schichtdicken $d=1000\text{ \AA}$, 100 \AA , 30 \AA und 10 \AA sind, auf gleiche Maxima normiert, in Abb. 6a aufgetragen. Für große Schichtdicken (1000 \AA) erhält man einen nahezu monoexponentiellen Zerfall mit der Kristall-

Lebensdauer τ_0 . Mit abnehmender Schichtdicke ergibt sich sowohl eine zunehmende Abweichung vom monoexponentiellen Zerfall, als auch eine Abnahme der mittleren Lebensdauer. Die berechneten Zerfallskurven entsprechen qualitativ dem Verlauf der gemessenen Fluoreszenzabklingkurven für Si(100) in Abbildung 5. Insbesondere die Abweichung vom rein monoexponentiellen Zerfall ist jedoch bei den gemessenen Zerfällen viel stärker ausgeprägt als bei den berechneten Zerfällen. Vernachlässigt wird in dieser vereinfachten Betrachtung ein Energietransport innerhalb der organischen Schicht.

4.3. Modell eines Falleneinfangs

Wie einleitend dargestellt wurde, kann ein Förster-Einfang in nicht-strahlende, fluoreszenz-löschenende Fallenzustände zu einem nicht-monoexponentiellen Zerfall der Wirtszustände führen. Dimensionsabhängig ergeben sich verschiedene Zerfallsgesetze. Für den dreidimensionalen Fall (1) sind in Abb. 6b die Zerfallskurven in Abhängigkeit von dem zur Fallenkonzentration proportionalen dimensionslosen Parameter c dargestellt. Die Werte für c variieren zwischen 0,5 und 3,8 und entsprechen einer groben Anpassung an die Meßkurven. Der Wert für die Lebensdauer τ_0 wurde wiederum entsprechend der beobachteten Langzeit-Komponente zu 230 ns gewählt.

Die so erhaltenen Zerfallskurven entsprechen qualitativ den gemessenen Fluoreszenzabklingkurven der Coronen-Schichten in Abbildung 5. Eine kleine Fallenkonzentration wird dabei einer großen Schichtdicke, eine große Fallenkonzentration einer kleinen Schichtdicke zugeordnet. Daß die Anzahl durch das Substrat induzierter Löschzustände bezogen auf die Zahl angeregter Donoren bei dünnen Aufdampfschichten größer ist als bei dicken Schichten, erscheint sinnvoll. Der bei gleicher Schichtdicke jeweils stärker verkürzte Fluoreszenzzerfall der Schicht auf Si(100) gegenüber der Schicht auf SiO_2 , läßt sich auf eine erhöhte Fallenkonzentration auf der reaktiveren Si(100)-Oberfläche bzw. einen effektiveren Löschprozeß zurückführen.

Zusammenfassend betrachtet erweisen sich die dynamischen Prozesse in den Coronen-Aufdampfschichten als sehr komplex. Eine eindeutige quantitative Zuordnung im Rahmen der vorgestellten Modelle ist bisher nicht möglich.

Danksagung

Wir danken U. Zimmermann und N. Karl für die Herstellung der Coronen-Schichten und ihre Charakterisierung mit LEED sowie R. Seyfang und G. Quapil für die Unterstützung bei den Kurzzeitmessungen. Die Arbeit wurde finanziell durch die Deutsche Forschungsgemeinschaft gefördert.

- [1] P. Fischer, H. Port u. H. C. Wolf, *Z. Naturforsch.* **47a**, 643 (1992).
- [2] T. Förster, *Z. Naturforsch.* **4a**, 321 (1949).
- [3] N. Nakashima, K. Yoshihara u. F. Willig, *J. Chem. Phys.* **73**, 3553 (1980).
- [4] P. Anfinrud, R. L. Crackel u. W. S. Struve, *J. Phys. Chem.* **88**, 5873 (1984).
- [5] J. Klafter, *J. Chem. Phys.* **80**, 875 (1984).
- [6] R. R. Chance, A. Prock u. R. Silbey, in: *Advances in Chemical Physics*, Vol. 37 (S. A. Rice u. I. Prigogine, eds.), Wiley-Interscience, New York 1978.
- [7] M. Stavola, D. L. Dexter u. R. S. Knox, *Phys. Rev. B* **31**, 2277 (1985).
- [8] P. M. Whitmore, H. J. Robota u. C. B. Harris, *J. Chem. Phys.* **77**, 1560 (1982).
- [9] T. Hayashi, T. G. Castner u. R. W. Boyd, *Chem. Phys. Lett.* **94**, 461 (1983).
- [10] D. H. Waldeck, A. P. Alivisatos u. C. B. Harris, *Surface Science* **158**, 103 (1985).
- [11] A. P. Alivisatos, M. F. Arndt, S. Efrima, D. H. Waldeck u. C. B. Harris, *J. Chem. Phys.* **86**, 6540 (1987).
- [12] U. Zimmermann, Dissertation, Universität Stuttgart 1992.
- [13] R. Kohlrausch, *Ann. Phys. Leipzig* **12**, 393 (1847).
- [14] W. H. Press, B. P. Flannery, S. A. Teukolsky u. W. T. Vetterling, *Numerical Recipes – The Art of Scientific Computing*, Cambridge University Press 1986.