

Zeitaufgelöste
Transmissionselektronenbeugung an
Nickel zur Untersuchung der
ultraschnellen Gitteraufheizung

Diplomarbeit

Fakultät für Physik
der Universität Duisburg Essen

AG Prof. Dr. Bovensiepen

von
Thorsten Brazda

28. September 2011

angemeldeter Arbeitstitel:
Zeitaufgelöste Elektronenbeugung an dünnen 3d Metallfilmen zur Untersuchung
des Debye-Waller-Effekts

Hiermit versichere ich, dass ich die vorliegende Arbeit selbständig ohne unzulässige Hilfe Dritter und nur unter Verwendung der angegebenen Hilfsmittel angefertigt habe.

Duisburg, 28. September 2011

Thorsten Brazda

Zusammenfassung

Die drei Elemente Eisen, Cobalt und Nickel sind außergewöhnlich in ihren magnetischen Eigenschaften. Sie sind die einzigen bei Raumtemperatur ferromagnetischen Elemente. Zudem besitzen sie untereinander größere Ähnlichkeit als zu ihren Homologen, den Platinmetallen. Dies lässt sich dadurch begründen, dass die Atome dieser Elemente unaufgefüllte innere Elektronenschalen besitzen, was zu stark delokalisierten Elektronen im 3d Orbital bei diesen Metallen führt. Ihre besonderen magnetischen Eigenschaften machen sie sowohl für die Industrie als auch für die Forschung hoch interessant. So ist es nicht verwunderlich, dass erhebliche Anstrengungen unternommen werden, um die Prozesse in diesen Metallen genau zu untersuchen.

Der Fokus dieser Arbeit besteht darin, das zeitliche Verhalten von Nickel innerhalb der ersten 5 bis 30 Picosekunden nach der laserinduzierten Anregung mit der Transmissionselektronenbeugung zu beobachten und zu analysieren. Diese Messungen wurden mit dem bestehenden Pump-Probe Aufbau aufgenommen. An dem einige Verbesserungen vorgenommen wurden. Hier wird die Probe mit sehr kurzen Laserpulsen angeregt und anschließend mit kurzen Elektronenpulsen abgefragt. Die thermische Entwicklung von dünnen polykristallinen Filmen wurde bereits mit dieser Methode von einer anderen Arbeitsgruppe untersucht, wodurch der nächste logische Schritt darin besteht die Experimente mit monokristallinen Proben durchzuführen. Dafür musste im ersten Schritt eine Methode gefunden werden diese dünnen monokristallinen Filme herzustellen. Als nächstes mussten die geeigneten Parameter gefunden werden, unter denen eine zeitliche Änderung der Intensität der auftretenden Beugungsmaxima beobachtet werden kann. Daran schließen sich Messungen unter verschiedenen Anregungsbedingungen an. Dazu gehört eine Variation der eingestrahlten Energiedichte und Polarisationsrichtung, sowie Messungen über unterschiedliche Zeitintervalle und zeitlichen Schrittweiten.

Auf diese Weise wurde erfolgreich der Debye-Waller-Effekt in dünnen Nickelfilmen untersucht, der eine Reduzierung der Intensität der Beugungsmaxima bei einer Zunahme der Gittertemperatur vorhersagt. Ebenso konnte die zeitliche Änderung der Gittertemperatur ermittelt werden. So zeigt die zeitliche Intensitätsänderung, dass der Einfluss der Polarisationsrichtung sich hauptsächlich durch das unterschiedliche Reflexionsvermögen unter einem schrägen Einfallswinkel der Anregepulse erklären lässt. Die Messungen bei variierender Energiedichte der Laserpulse deuten auf ein anomales Verhalten des Temperaturanstiegs in Nickel, gegenüber nicht ferromagnetischen Metallen wie Kupfer oder Gold, hin. Im Gegensatz zu Gold und Kupfer nimmt die Gittertemperatur von Nickel nicht

linear mit der eingestrahnten Energiedichte zu, und es deutet sich ein Zusammenhang zwischen diesem anormalen Verhalten der Gitteraufheizung und dem Verlauf der Wärmekapazität von Nickel an. Diese Erkenntnis liefert eine sehr interessante Fragestellung für zukünftige zeitaufgelöste Elektronenbeugungsexperimente.

Weitere Untersuchungen der Intensität von verschiedenen Beugungsmaxima, bei einer zu den Elektronenpulsen schräggestellten Probe, zeigten eine sehr unterschiedliche Reaktion auf die Anregung. Ebenso lassen sich bei einer Neigung der Probe gegenüber den Elektronenpulsen mehr Gitterebenen untersuchen als bei senkrechtem Einfall. So lassen sich die Gitterschwingungen in Nickel vollständiger analysieren.

Eine weitere Aufgabe besteht darin die Methode der zeitaufgelösten Elektronenbeugung zu optimieren, um genauere Messergebnisse zu erzielen. Dafür wurde ein zweiter Experimentierstand mit Vakuumkammer und Elektronenquelle für die Elektronenbeugung aufgebaut. Im Rahmen dieser Arbeit wurde der optische Weg für die Anrege- und Abfragepulse aufgebaut und eine neue Elektronenquelle entwickelt. Erste Tests der neuen Kammer wurden durchgeführt und Verbesserungen in der Stabilität des Elektronensignals beobachtet. Ebenso wurde der Aufwand eine Messung vorzubereiten erheblich reduziert. Die neue Elektronenquelle befindet sich noch in der Testphase, doch es wurden bereits Fortschritte in der Spannungsfestigkeit bei einzelnen Komponenten und im Zusammenbau dieser erzielt.

Summary

The three elements iron, cobalt and nickel are extraordinary in their magnetic attributes. They are the only ferromagnetic elements at room temperature. In addition they share more similarities among each other than between their homologue, the platinum metals. This can be explained through their unoccupied inner electron shells, which leads to strongly delocalized 3d electron orbitals for these metals. Due to this attribute, they are called the 3d metals. Their special magnetic properties are the reason why these metals are highly interesting for industrial applications and fundamental research. So it is not astonishing that great effort is put into the investigation of the inner processes within those metals.

This work focusses on the observation of the temporal behavior with transmission electron diffraction of nickel during the first few picoseconds (5 to 30) after laser induced excitation. Those measurements were made with the already existing pump/probe setup. Also some improvements were made on this chamber. Here the sample was excited with a very short intensive laser pulse and then probed by a short electron pulse. The thermal evolution of thin polycrystalline films were already studied with this method by another work group, so the next logical step was to analyze monocrystalline samples. To do so we needed to find a way to grow such thin monocrystalline samples. The next task was to find the proper parameters to measure the temporal change of intensity of the diffraction spots. Then the measurements were made under different excitation conditions. Those conditions are a varying fluency and polarization of the excitation pulses.

With this concept we successfully observed the Debye-Waller-Effect in thin nickel films, which predicts a decrease in the diffraction intensity, if the lattice temperature increases. In addition the temporal change of the lattice temperature could be observed. So it seems, that the polarization only influenced the diffraction intensity by the difference in reflectivity, because the pump pulses have an incidence angle of 40° . The measurements with varying fluency hint towards an abnormal behaviour of the increase of the lattice temperature in nickel, in comparison with other non ferromagnetic metals like copper or gold. In contrast to gold and copper the lattice temperature of nickel increases non-linear with the increase of the fluency. Also it seems likely that there is a connection between this abnormal behavior and the heat capacity of nickel in the observed temperature region. This result gives an interesting question for further experiments. The newest experiments show, that additional information on the Phononsystem could be gained by tilting the sample against the electron pulses.

Another task was to optimize the experimental setup for time resolved electron diffraction, to obtain better results with our measurements. With this goal in mind a second experimental chamber for the electron diffraction was assembled. In the course of this work the optical path for the pump and probe pulses was arranged and a new electron source was designed. First test with the new chamber were performed and some improvements in stability of the electron signal were observed. There was also a significant improvement in the needed effort to prepare a measurement. The new electron source is still in beta testing, but there was a big step forward to a better high voltage resistivity and an easier was to assemble the new source.

Inhaltsverzeichnis

1	Einführung	1
1.1	Wie kann man Atome sehen?	1
1.1.1	AFM und STM	4
1.1.2	TEM	7
1.1.3	Röntgen und Elektronenbeugung	9
1.2	Motivation	12
2	Grundlage	14
2.1	Beugungstheorie	14
2.1.1	Beugung von Wellen	14
2.1.2	Beugung an Atomen, Bragg und Laue-Bedingung	19
2.1.3	Strukturfaktor und Atomformfaktor	24
2.2	Zeitaufgelöste Messungen	27
2.2.1	Dynamik in Kristallen, Phononen	27
2.2.2	Debye-Waller-Faktor	30
2.2.3	Erzeugung kurzer Laserpulse	33
2.2.4	Erzeugung kurzer Elektronenpulse	34
3	Der Aufbau des Experiments	37
3.1	Das Lasersystem	37
3.2	Pump-Probe-Setup	38
3.3	Der Strahlgang	40
3.4	Der Aufbau der Elektronenquellen	44
3.4.1	Dritte Generation	45
3.4.2	Vierte Generation	47
3.5	Die Experimentierkammern	52
3.5.1	Überlagerung der Anrege- und Abfragepulse	53
3.5.2	Die neue Kammer	56
3.6	Die Probenpräparation	57
4	Zeitaufgelöste Elektronenbeugung an Nickel	63
4.1	Die Bearbeitung der Daten	63
4.2	Die Auswertung der Messungen	64
4.2.1	Auswertung der Intensitätsänderung	64
4.2.2	Zeitverhalten der Temperatur	74
4.2.3	Vergleich mit dem Zweitemperaturmodell	75
4.2.4	Polarisationsabhängigkeit	77
4.2.5	Abweichung vom Debye-Waller-Effekt: Der Achsenabschnitt	82
4.3	Fluenzabhängigkeit	84

5	Resultate und Ausblick	90
5.1	Ergebnisse der Messungen	90
5.2	Stand des neuen Elektronenbeugungsaufbaues	93
5.3	Experimente an anderen ferromagnetischen Metallen	94
6	Danksagung	96
7	Verzeichnis	97
7.1	Literaturverzeichnis	97
7.2	Bildquellen	98

1 Einführung

1.1 Wie kann man Atome sehen?

Hiermit beginnen wir die Reise durch meine Diplomarbeit. Eins vorweg, ich bin auf das Ende genauso gespannt wie Sie!

Da es in dieser Arbeit um die Dynamik von Atomen in dünnen kristallinen Filmen geht, stellen wir uns doch als erstes die Frage, wie man überhaupt Atome sichtbar machen kann?

Obwohl alle Materie aus Atomen besteht, können wir diese mit dem bloßem Auge nicht sehen. Sie sind so klein, dass unsere Augen diese nicht mehr auflösen können. Machen wir uns erst einmal klar, in welchen Dimensionen wir uns bewegen, wenn wir über Atome sprechen. Ein Wasserstoffatom hat einen Durchmesser von ungefähr $0,5 \text{ \AA}$ ($\text{\AA} = 10^{-10} \text{ m}$). Um eine Vorstellung zu bekommen wie klein 10^{-10} m sind, betrachten wir ein menschliches Haar. Dieses ist mehr oder weniger $0,1 \text{ mm}$ dick oder auch 10^{-4} m . Daraus folgt das man auf den Durchmesser dieses Haares eine Millionen Wasserstoffatome aneinander legen kann, wenn man dies so einfach könnte.



Abbildung 1.1: Detailansicht eines menschlichen Haares: Bearbeitet mit einem fokussiertem Ionenstrahl (FIB) vom Cenide Zentrum, und abgebildet mit einem Elektronenmikroskop. Entnommen aus [a1]

In Abb. (1.1) sieht man ein mit Hilfe eines Elektronenmikroskops aufgenommenes menschliches Haar. In der Gravur, welche mit einem fokussiertem Ionenstrahl (FIB: Focused Ion Beam) vom Cenide Zentrum hergestellt wurde, erkennt man eine Reihe von immer kleiner werdenden Punkten. Der kleinste dieser Punkt misst im Durchmesser nur noch ein Hundertstel des Haares. Und selbst dieser ist noch 10.000 mal größer als ein Atom.

Da wir uns nun verdeutlicht haben wie klein Atome sind, gehen wir der Frage auf den Grund, woran es liegt, dass wir sie nicht sehen können. Die kleinste Struktur, welche unter idealen Bedingungen von einem optischen Instrument, wie dem Auge, noch zu erkennen ist, wird durch das Rayleigh-Kriterium bestimmt.

$$\delta_{min} = 1,22 \cdot \lambda/D \quad (1.1)$$

λ ist die Wellenlänge des Lichts und D ist die Öffnung der Blende oder der abbildenden Optik. Im Fall des Auges ist das die Pupille. In dieses fließt nur ein, dass Licht aus elektromagnetischen Wellen besteht und einzelne Teilwellen miteinander interferieren. Hierdurch wird der kleinste Winkel δ_{min} bestimmt, unter dem zwei Wellen, ausgesendet von unterschiedlichen Punkten (S_1, S_2) einer Oberfläche, interferieren, und die Intensitätsverteilung der nullten Beugungsordnungen noch zwei unterscheidbare Maxima besitzt. Abb. (1.2) zeigt die Intensitätsverteilung für ein paralleles Strahlenbündel, das durch eine Linse hindurch tritt und für zwei Strahlen, die von S_1 und S_2 ausgesendet werden.

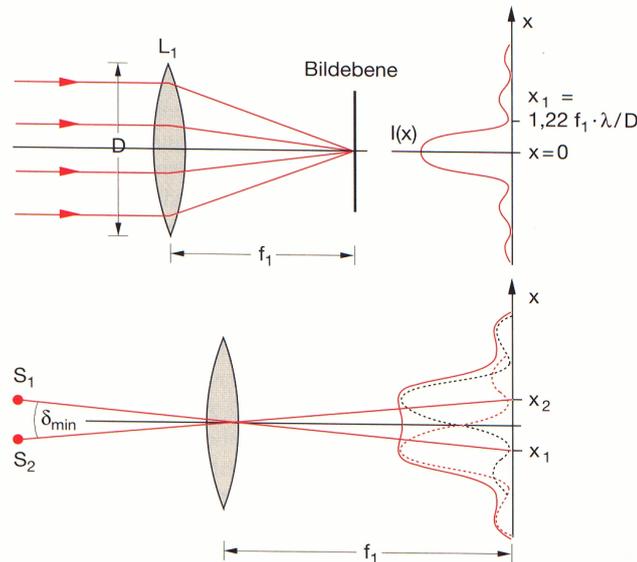


Abbildung 1.2: Rayleigh-Kriterium. [a2]

Mit Hilfe des Rayleigh-Kriteriums kann man nun bestimmen, unter welchen Bedingungen ein Objekt noch scharf abgebildet werden kann. Für das menschliche Auge nehmen wir an, dass die Pupille einen Durchmesser von etwa 5 mm hat. Zudem ist es für Licht mit einer Wellenlänge von etwa $\lambda = 550 \text{ nm} = 5,5 \cdot 10^{-7} \text{ m}$

am empfindlichsten. Nun nehmen wir weiter an, dass wir ein Objekt dann deutlich sehen können, wenn wir die Lichtstrahlen, die von seinem Rand ausgehen noch getrennt wahrnehmen können. Somit folgt:

$$\begin{aligned}\delta_{min} &= 1,22 \cdot 5,5 \cdot 10^{-7} \text{ m} / 5 \cdot 10^{-3} \text{ m} \\ &= 1,34 \cdot 10^{-4} \text{ rad} = 7,7 \cdot 10^{-3} \text{ Grad}\end{aligned}$$

Daraus ergibt sich für einen Abstand a von 100 Metern zwischen Objekt und Linse:

$$\Delta x = 2 \cdot a \cdot \tan \frac{\delta_{min}}{2} = 13,4 \text{ mm}$$

Was ungefähr der Größe einer 1 Euro Münze entspricht. Wie gesagt unter idealen Bedingungen. Nun stellt sich sofort die Frage, wie nah müssen wir an ein Objekt heran, um theoretisch Atome sehen zu können?

In diesem Fall beträgt $\Delta x_{theo} = 0,5 \cdot 10^{-10} \text{ m}$ und dafür erhalten wir:

$$a = \frac{\Delta x}{2 \cdot \tan \delta_{min}} = 1,87 \cdot 10^{-7} \text{ m} = 1,87 \cdot 10^{-4} \text{ mm}$$

Um bei dem Beispiel mit dem Haar zu bleiben, müsste der Abstand der Optik (unserem Auge) zum Gegenstand eintausend mal kleiner sein als ein Haar dick ist. Nach der zuvor beschriebenen Theorie wäre dies möglich. Praktisch und natürlich auch in einer korrekten Theorie hingegen muss man bedenken, dass zum Rayleigh-Kriterium gewisse Annahmen gehören. Eine wichtige Annahme ist, dass dieses nur gilt, wenn man weit von dem zu betrachtenden Objekt entfernt ist. Weit bedeutet hier ungefähr 100 mal die Wellenlänge des Lichtes, welches wir beobachten möchten. Schon sehen wir, dass es selbst dann nicht möglich ist Atome zu sehen, wenn man nah genug heran geht.

Nun stellt sich als nächste Frage, wie groß oder besser wie klein muss die Wellenlänge des Lichtes sein, damit wir Atome sehen können. Legen wir zum Beispiel fest, dass ein Atom vom Detektor auf einer Distanz von 1 cm aufgelöst werden soll. Zudem soll die Blende des Detektors einen Durchmesser von 1 mm haben.

$$\lambda = \frac{D}{1,22} \cdot \arctan \frac{\Delta x}{2 \cdot a} = 2 \cdot 10^{-10} \text{ m}$$

Bei dieser Wellenlänge befinden wir uns im Bereich des Röntgenlichtes, das ein Teil des Spektrums der elektromagnetischen Wellen darstellt. Dadurch ergeben sich einige Schwierigkeiten. Zum einen gibt es kaum geeignete Materialien, um für Röntgenlicht optische Elemente herzustellen. Zum anderen handelt es sich hierbei um hoch energetische Strahlung, die in der Lage ist Atome zu ionisieren. Dadurch können Stoffe beschädigt werden, wie zum Beispiel menschliche Zellen. Das kann im Extremfall zu Krebs führen. Zudem unterscheidet sich ein Atom von seinem Ion in der Größe und in gewisser Weise auch in seiner Form, wodurch unsere Beobachtung des Atoms verfälscht werden kann. Trotzdem wird Röntgenstrahlung genutzt, um atomare Strukturen zu untersuchen. Darauf werden wir in einem späteren Abschnitt genauer eingehen.

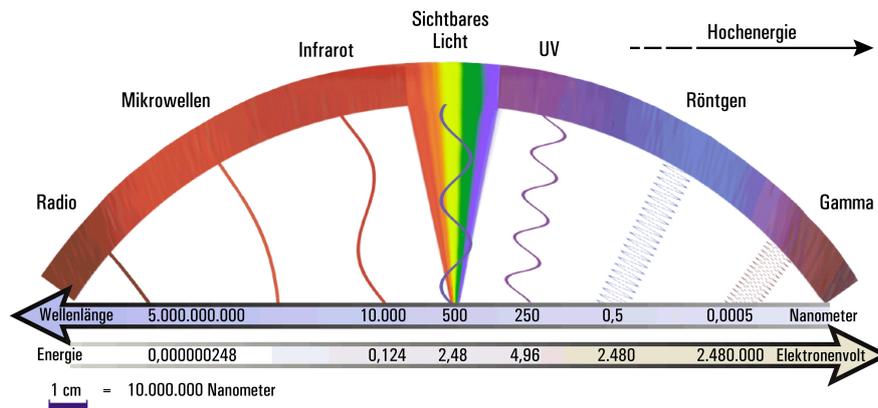


Abbildung 1.3: Spektrum der elektromagnetischen Wellen [a3]

In dem oberen Bild (1.3) sehen wir das elektromagnetische Spektrum. Hier ist gut zu erkennen, dass die Energie mit geringer werdender Wellenlänge zunimmt. Außerdem ist zu erkennen, dass der Teil, den wir Menschen wahrnehmen können, nur einen kleinen Teil des Spektrums umfasst. In diesem Zusammenhang bietet es sich an, noch eine wichtige Relation zu nennen, und zwar den Zusammenhang zwischen Energie E und Wellenlänge λ einer elektromagnetischen Welle:

$$E = h \cdot \nu = h \cdot \frac{c}{\lambda} \quad (1.2)$$

Hier ist h das Plancksche Wirkungsquantum und ν die Frequenz der Welle.

Mit diesem Wissen kommen wir zu dem Schluss, dass Atome nur schwer, vielleicht sogar gar nicht, beobachtet werden können. Ende des 18ten Jahrhunderts kam Ernst Abbe, ein Meister im Bereich der Mikroskopie, zu dem Schluss:

„it is poor comfort to hope that human ingenuity will find ways and means of overcoming this limit.“ [17]

Abbe starb 1905 etwas 20 Jahre bevor De Broglie einen Weg aufzeigte, mit dem man die Grenzen der Lichtoptik überwinden konnte. Um zu zeigen, mit welchen Methoden Atome sichtbar werden, welche sich unserer Wahrnehmung so vehement entziehen, befassen wir uns in den nächsten Kapiteln. Hier gehen wir zunächst auf einige nicht optischen Methoden ein, und kehre dann zu den elektromagnetischen Wellen und Materiewellen zurück.

1.1.1 AFM und STM

Kommen wir nun zu einigen der heutzutage gängigen Methoden, um Strukturen mit einer Größe von Atomen aufzulösen und für uns Menschen beobachtbar zu machen. Da wir bereits wissen, dass wir mit der Optik im sichtbaren Spektrum keinen Erfolg haben werden, schauen wir uns an welche Alternativen zu Verfügung stehen.

Lernen wir doch zuerst das Raster-Kraft-Mikroskop (AFM, Atomic Force Microscopy) kennen. Bei diesem wird die gegenseitige Wechselwirkung von Atomen

zueinander ausgenutzt, um ein Bild von der Topographie der Oberfläche einer Probe zu erzeugen. In Abb. (1.4) ist der schematische Aufbau eines AFMs gezeigt. Richten wir unser Augenmerk zuerst auf das Kernstück eines AFMs, den Cantilever. Ein Cantilever ist im Prinzip eine sehr feine Stimmgabel, an deren Ende eine dünne Spitze angebracht ist. Die entscheidenden Merkmale eines Cantilevers sind seine Länge (um die $l = 150 \mu m$), Federkonstante (etwa $D = 40 N/m$) und Eigenfrequenz ($\nu = 300 kHz$ [6]). Gelegentlich werden auch die Quarz-Stimmgabeln aus Armbanduhren verwendet ($l = 2000 \mu m$, $D = 1800 N/m$, $\nu \approx 20 kHz$). Die Spitze sollte sich auf wenige Atome, im Idealfall ein Atom, verjüngen und wird dann bis auf etwa 1 \AA an die Oberfläche der Probe angelehnt. Dafür befindet sich die Probe auf einer Halterung, welche durch einen Piezokristall gesteuert werden kann. Ab diesem Abstand bewirkt die Van-der-Waals Wechselwirkung, dass die Spitze durch die Probe ausgelenkt wird. Diese Auslenkung kann nun mit einem Laserstrahl leicht registriert werden, welcher von dem Cantilever reflektiert wird. Über eine Vierquadrantendiode kann nun die Änderung der Position des Laserstrahls aufgezeichnet werden. Dadurch erhalten wir Informationen über die Topographie der Probe, und zusätzlich über Kräfte die lateral zur Probenoberfläche auf die Spitze wirken.

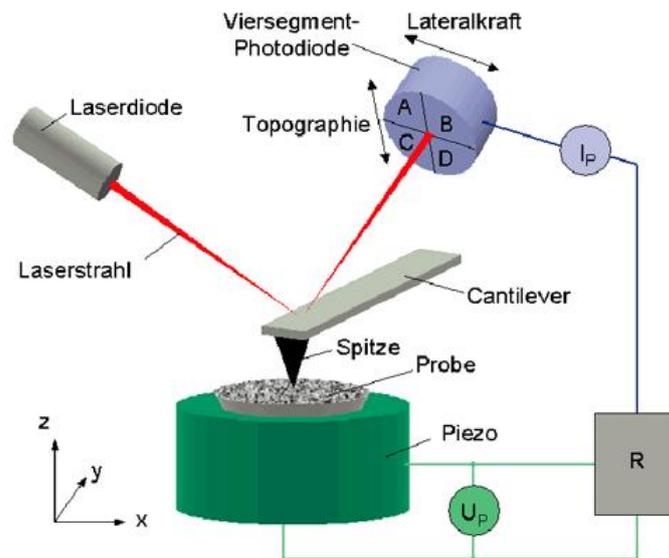


Abbildung 1.4: Prinzip eines Rasterkraftmikroskops [a4]

Die Van-der-Waals Wechselwirkung E_{pot} beschreibt die anziehende Kraft zwischen zwei neutralen Atomen (A , B), welche sich in geringem Abstand (r) zueinander befinden. Die Kraft hat nur eine sehr kurze Reichweite, und hängt von der Polarisierbarkeit $\alpha_{A,B}$ der wechselwirkenden Atome ab.

$$E_{pot}(R) = -C_1 \frac{\alpha_A \cdot \alpha_B}{r^6} \quad (1.3)$$

Wir sehen, dass die Van-der-Waals Wechselwirkung anziehend wirkt, wobei ($C_1 \approx 1/\pi^2 \cdot \epsilon_0^2$) eine positive Konstante ist. Bei hinreichend kleinem Abstand

spüren die Atome aber auch eine abstoßende Kraft, aufgrund der Überlagerung der Elektronenhüllen. Insgesamt ergibt sich das Lennard-Jones-Potential V , welches in Abb. (1.5) gezeigt wird:

$$V(R) = \frac{a}{r^{12}} - \frac{b}{r^6} \quad (1.4)$$

Wobei a und b Material abhängige Parameter sind.

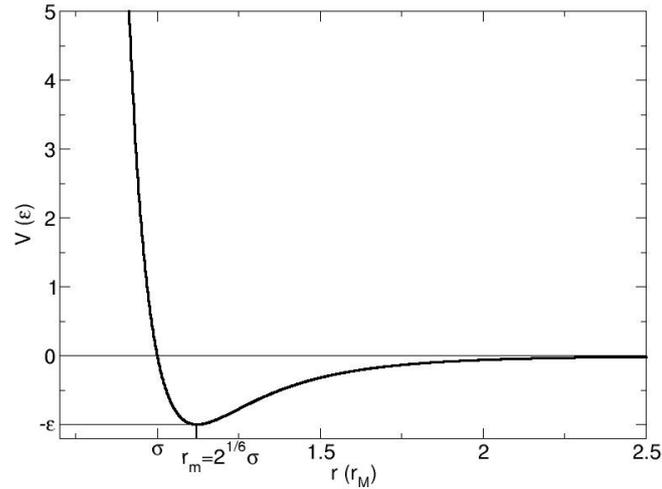


Abbildung 1.5: Lennard Jones Potential [a5]

Da die Auslenkung des Cantilevers durch die Van-der-Walls Wechselwirkung ist nicht viel größer als die Auslenkung durch Störungen in der Umgebung ist, messen wir die Frequenz ν des Cantilevers mit der dieser schwingt und nicht dessen Auslenkung alleine. Ungehindert schwingt er mit seiner Eigenfrequenz ν_0 , welche durch die Federkonstante D_0 und der effektiven Masse m_{eff} gegeben ist.

$$\nu_0 = 2\pi \cdot \sqrt{D_0/m_{eff}} \quad (1.5)$$

Wenn sich nun die Spitze des Cantilevers einem Atom nähert, so ändert sich dessen Frequenz in Abhängigkeit vom Abstand. Die Änderung dieser Frequenz wird nun an einer Stelle der Probe gemessen und anschließend fährt man die Probe um eine definiert Schrittweite Δx weiter und misst wieder die Änderung der Frequenz an der neuen Position. So können kleine Unterschiede im Abstand zwischen Probe und Spitze registriert werden. Auf diese Art rastert man den gewünschten Bereich der Probe ab und kann ein Bild von der Oberfläche erzeugen, welches Größe und Position der Atome in der Probe verrät. Zudem können mit dem AFM einzelne Atome aufgehoben und an einer anderen Stelle abgelegt werden, wodurch zum Beispiel IBM [1] bereits Schriftzüge und Bilder in der Größenordnung von wenigen Atomen erschaffen hat. Weiter sollten wir auf diese Methode aber nicht eingehen, denn allein die Eigenschaften des Cantilevers reichen aus, um ein Buch zu füllen.

Das AFM und das Raster Tunnel Mikroskop (STM = Scanning Tunneling Microscope) haben einige Ähnlichkeiten miteinander, dennoch sind ihre grundlegenden Prinzipien völlig anders. Während das AFM die Van-der-Waals Wechselwirkung ausnutzt und dadurch einen Zugang zu vielen Proben, auch organischen Stoffen, ermöglicht, basiert das STM wie der Name schon sagt, auf dem Tunnelstrom zwischen zwei sehr nah beieinander liegenden Stoffen. Dafür ist es aber entscheidend, dass die Probe und die Sonde leitend sind, wodurch sich fast ausschließlich Metalle mit dem STM untersuchen lassen. Die grundlegenden Elemente eines STMs sind die Spitze, welche wie beim AFM möglichst nur ein Atom an ihrem Ende haben sollte, ein Piezokristall, um die Spitze präzise über die Probe zu bewegen, und ein Regelwerk, das den Piezo steuert, damit der Abstand zwischen Spitze und Probe reguliert werden kann. Diese Elemente werden in Abb. (1.6) schematisch dargestellt. Ähnlich wie beim AFM wird die Spitze bis auf einige Ångström an die Probe herangebracht und der Tunnelstrom ist abhängig vom Abstand der Spitze zur Probe. So können dieselben Informationen über die Probenoberfläche gesammelt werden wie mit dem AFM.

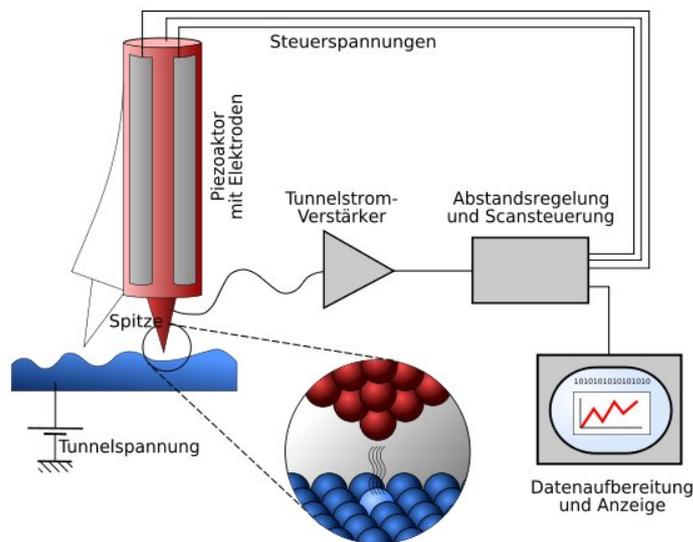


Abbildung 1.6: Schematischer Aufbau eines Raster Tunnel Mikroskops [a6]

Aber wenn wir die Dynamik von Atomen in Kristallen untersuchen wollen, sind AFM und STM ungeeignet. Denn diese Methoden benötigen zu viel Zeit um ein Bild aufzunehmen. Darum bewegen wir uns nun einen Schritt näher an die Technik heran, welche in dieser Diplomarbeit verwendet wurde.

1.1.2 TEM

TEM steht für Transmissions Elektronen Mikroskop und benutzt, wie ihr Name schon sagt, Elektronen um eine Probe zu untersuchen. Das erste TEM wurde von Ernst Ruska 1932 in Betrieb genommen. Der Aufbau eines TEMs ist

schon deutlich komplexer als die zuvor beschriebenen Techniken. In Abb. (1.7) ist ein schematischer Aufbau skizziert. Genauso wie bei den vorherigen Geräten auch, beginnt alles mit einer feinen Spitze. Diese wird über einen elektrischen Strom geheizt, so dass durch Glühemission Elektronen aus dieser austreten. Die Spitze (Kathode) befindet sich zudem auf einem negativem Potential gegenüber einer Anode. Die freien Elektronen werden nun im Feld beschleunigt und treten durch ein Nadelloch in der Anode hindurch. Als Beschleunigungsspannung werden bis über 500 kV verwendet. Auch in diesem Fall sollte die Spitze sehr fein sein, da man so eine nahezu punktförmige Elektronenquelle erzeugt. Dadurch kann eine höhere räumliche Auflösung erzielt werden. Hinter der Anode haben wir nun einen Elektronenstrahl, welcher durch eine Reihe von elektrostatischen oder magnetischen Linsen auf die Probe fokussiert und anschließend vergrößert abgebildet wird.

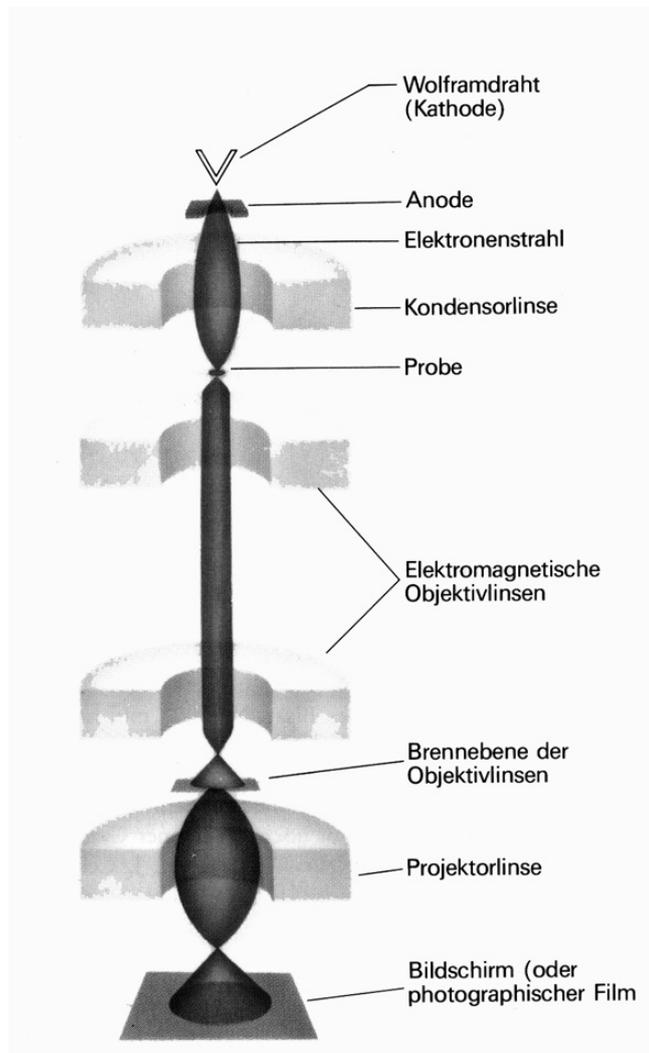


Abbildung 1.7: Schematischer Aufbau eines TEMs [a8]

Das TEM basiert auf dem von De Broglie entdecktem Prinzip, dass Elektronen Welleneigenschaften besitzen. Daher auch die Bezeichnung Materiewelle. Der Wellen Charakter von Teilchen wurde von Young in seinem berühmten Doppelspaltexperiment nachgewiesen. Demnach können wir einem Elektron mit der kinetischen Energie E_{kin} eine feste Wellenlänge λ_{db} zuordnen.

$$\lambda_{db} = \frac{h}{p} = \frac{h}{m_e \cdot v} = \frac{h}{\sqrt{2 \cdot m_e \cdot E_{kin}}} \quad (1.6)$$

In Formel (1.6) ist p der Impuls des Elektrons, h das Planksche Wirkungsquantum, m_e die Elektronenmasse und v die Geschwindigkeit. Ist die Geschwindigkeit des Elektrons sehr klein gegenüber der Lichtgeschwindigkeit $v \ll c$, gilt in einem Feld mit der Beschleunigungsspannung U :

$$\lambda_{db} = \frac{h}{\sqrt{2 \cdot m_e \cdot e \cdot U}} \quad (1.7)$$

Hier ist e die Elementarladung. Um eine erste Abschätzung für die Wellenlänge von Elektronen zu erhalten, nehmen wir eine Spannung von $U = 30 \text{ kV}$ an. Wir behalten im Hinterkopf, dass in einem TEM die Elektronen mit mehr als 100 kV beschleunigt werden können, dann gilt aber $v \ll c$ nicht mehr. Für 30 kV erhalten wir eine De-Broglie Wellenlänge von $\lambda_{db} = 7,1 \text{ pm}$.

Diese ist völlig ausreichend um Strukturen mit einer Größe von Atome aufzulösen, wir sind sogar um 2 Größenordnungen darunter. Dieses ideale Auflösungsvermögen wird aber bei weitem nicht erreicht, da die Optik für Elektronen weit größere Fehler verursacht.

Das TEM ist also bestens geeignet um die Position der Atome in einer Probe zu untersuchen, aber für die Experimente in dieser Arbeit hat das TEM einen entscheidenden Nachteil. Falls sie sich erinnern, wir wollen die Dynamik von Atomen untersuchen, und die Zeitskala auf der diese sich abspielt ist sehr klein. Typische Lebensdauern angeregter Atome sind zum Beispiel für $H(2^2P_{1/2}) = 1,5 \cdot 10^{-9} \text{ s}$ und $Na(3^2S_{1/2}) = 16 \cdot 10^{-9} \text{ s}$ [1]. Die Frequenz von Phononen befindet sich in der Größenordnung von $10^{12} \cdot 1/\text{s}$. Also spielen sich die interessanten Effekte innerhalb von 1 ps ab. Das TEM erzeugt aber einen kontinuierlichen Elektronenstrahl. Mit einem solchen Strahl ist es aber nicht möglich solch schnelle Prozesse zu untersuchen. Wir benötigen etwas, das Bilder in einer vergleichbaren Zeitspanne aufnehmen kann, mit der zu beobachtende Prozess abläuft. Das führt zu der Frage, womit können wir solche kurzen Zeitskalen erreichen? Die Antwort lautet: Mit einem Laser der hinreichend kurze Pulse liefert, und das führt uns zum nächsten Abschnitt.

1.1.3 Röntgen und Elektronenbeugung

In diesem Kapitel beschäftigen wir uns mit zwei Methoden, mit deren Hilfe wir Änderungen eines Ensembles von Atomen untersuchen können, die in nur wenigen Pikosekunden ablaufen. Wie im Detail mit Hilfe der Elektronenbeugung diese Aufgabe bewältigt wird, erfahren wir aber erst in einem späterem Kapitel.

Hier lernen wir nur das grundlegende Prinzip der Röntgen und Elektronenbeugung kennen. Beide Methoden erzeugen keine Abbildung des realen Kristalls, sondern liefern eine Beugungsfigur aufgrund der Interferenz einzelner Teilstrahlen, die von an den Atomen im Kristall gestreut werden. Damit lassen sich die Abstände der einzelnen Atome in einem Festkörper untersuchen. In Abb. (1.8) können wir uns den Aufbau eines Röntgenspektrometers anschauen. Dieses besteht aus einer Röntgenröhre, welche die Röntgenstrahlung emittiert, einen Kristall und einem Detektor. Wir sehen, dass man sich jegliche abbildende Optik erspart hat.

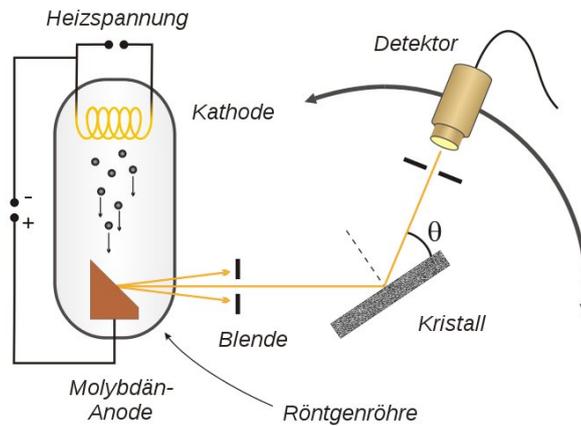


Abbildung 1.8: Skizze eines Röntgenspektrometers [a9]

In Abschnitt 1.1 haben wir festgestellt, dass man mit Röntgenstrahlung Atome sichtbar machen kann. Um die Anschauung einfach zu halten, betrachten wir einen kubischen Einkristall, bei dem die Atome auf den Ecken eines Würfels liegen. Der Abstand der Atome ist also gleich der Kantenlänge d des Würfels. Für Röntgenstrahlung mit der Wellenlänge λ gilt nun die Bragg Bedingung, welche sagt, dass nur unter bestimmten Winkel ϑ Röntgenlicht reflektiert wird, siehe Abb. (1.9).

Wenn Röntgenstrahlung auf einen Kristall trifft, so wird sie nicht nur an dessen Oberfläche reflektiert, sondern an vielen Atomen innerhalb dieses Kristalls gestreut. Bei einem Einkristall sind diese Atome periodisch angeordnet und liegen auf den Gitterebenen, mit einem festen Abstand. Damit Röntgenstrahlung reflektiert werden kann, müssen die Teilstrahlen, die von den einzelnen Gitterebene ausgesendet werden, einen Gangunterschied Δs von einem Vielfachen der Wellenlänge des Lichtes $\Delta s = m \cdot \lambda$ zueinander besitzen. Ansonsten löschen diese

sich durch destruktive Interferenz aus. Dieser Gangunterschied hängt von dem Winkel ϑ zwischen dem einfallendem Röntgenlicht und der Gitterebene ab. Sind sowohl Wellenlänge als auch Reflexionswinkel bekannt, können wir mit diesen Informationen den Gitterabstand bestimmen.

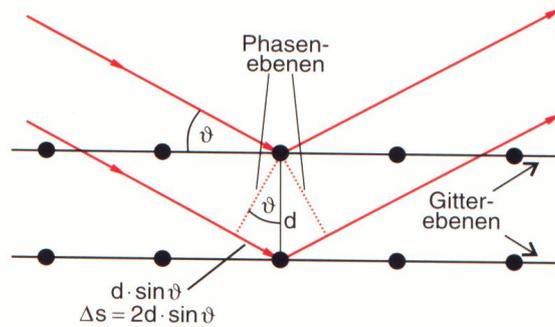


Abbildung 1.9: Herleitung der Bragg Bedingung an einem Einkristall [a2]

Bei dieser Methode sind wir nicht auf Röntgenstrahlung begrenzt. 1927 hat der französische Physiker De Broglie theoretisch gezeigt, dass auch Materie behaftete Teilchen eine Wellenlänge besitzen, die sich nach Formel 8 berechnen lässt. Somit ist es möglich mit allem was eine ausreichend kleine Wellenlänge besitzt Beugungsexperimente durchzuführen. Damit ein Teilchen eine De Broglie Wellenlänge von $1 \text{ \AA} (=10^{-10} \text{ m})$ besitzt, muss es im Falle von Röntgenphotonen auf eine Energie von 12.35 keV gebracht werden. Für Elektronen reichen 145 eV , Neutronen kommen mit 80 meV aus und Heliumatome begnügen sich mit 20 meV . Heliumatome und Neutronen erlauben aufgrund ihrer geringen Eindringtiefe nur Untersuchungen der Oberfläche einer Probe, wohingegen mit Röntgen- und Elektronenpulsen auch Informationen aus dem Volumen einer Probe verfügbar sind. Mit Hilfe von Kurzpulslasern lassen sich Röntgen- und Elektronenpulse mit einer ähnlich geringen zeitlichen Ausdehnung der Pulse erzeugen wie die Laserpulse.

Zwischen Elektronen- und Röntgenbeugung gibt es trotz einiger Gemeinsamkeiten einige wichtige Unterschiede. Zum einen ist die Eindringtiefe von Elektronen kleiner als von Röntgenphotonen, wodurch im allgemeinen die Proben dünner sein müssen. Auch die Wechselwirkung der Probe mit den Teilchen ist unterschiedlich. Dadurch können nicht alle Proben, welche mit der Elektronenbeugung untersucht werden können auch mit der Röntgenbeugung analysiert werden. Des Weiteren kann man die Wellenlänge der Elektronen leicht variieren, indem man die Beschleunigungsspannung ändert. So erhalten wir Zugang zu verschiedenen Techniken wie dem LEED (Low Energy Electron Diffraction), RHEED (Reflection High Energy Electron Diffraction), und dem TED (Transmission Electron Diffraction), welches in dieser Arbeit verwendet wurde. Beim TED werden die Elektronen mit 30 bis 100 kV beschleunigt, was zu Wellenlängen im Pikometer Bereich führt. Das ist 2 Größenordnungen unter der von Röntgenlicht. Durch die kleine Wellenlänge lassen sich gleichzeitig mehrere Beugungsmaxima untersuchen, und wir erhalten bei einer Messung mehr Informationen. Zudem lassen sich Elektronen leicht manipulieren. Mit zusätzlichen

magnetischen oder elektrischen Feldern kann der Elektronenstrahl (Puls) leicht abgelenkt, aufgeweitet oder fokussiert werden, was uns bei Röntgenpulsen nur schwer gelingt.

1.2 Motivation

Bis jetzt haben wir nur statische Methoden zur Untersuchung atomarer Strukturen kennen gelernt. Dabei liegen viele spannende Fragestellungen in dem zeitlichen Verhalten der Materie. Gerade die ersten Femto- und Picosekunden nachdem Energie in einen Kristall, eine Flüssigkeit oder ein Gas deponiert wurde sind entscheidend für den Energietransfer zwischen Elektronen und Gitteratomen. Auch die Interaktion der Atome untereinander läuft auf dieser Zeitskala ab. Die zeitaufgelöste Transmissionselektronenbeugung (TED: Transmission Electron Diffraction) ist eine von zwei Methoden diese Zusammenhänge zeitlich zu verfolgen. Neben der TED gibt es nur noch die Röntgenbeugung, die nach einem sehr ähnlichem Prinzip arbeitet. Bei dieser gibt es nur zwei Wege kurze Röntgenpulse zu erzeugen. Die eine ist in einem Synchrotron. Bei diesen Großanlagen ist es oft schwierig Strahlzeit (Messzeit) für die eigenen Experimente zu bekommen, wodurch ein großes Maß an Planung und Sorgfalt bei den Vorbereitungen einer solchen Messung nötig ist. Der andere Weg führt über so genannte Plasmaquellen, die sehr intensive Laser zur Erzeugung der Röntgenpulse an einer Metalloberfläche benutzen. Diese Quellen können in einem normalen Labor aufgebaut werden, doch die Ausbeute an generierten Röntgenquanten ist recht gering.

Die zeitaufgelöste Elektronenbeugung ist noch eine recht junge Methode, um die schnellen Prozesse in Festkörpern zu untersuchen. Diese wurde als erstes von Williamson und Mourou [24] genutzt um das laserinduzierte Schmelzen von Aluminiumfilmen zu beobachten. Seitdem wurde die zeitaufgelöste Elektronenbeugung mit großem Erfolg weiterentwickelt. Dabei haben B.J. Siwik aus der Miller Group [25] (Univ. of Toronto) und Zewail und Mitarbeiter [26] einen entscheidenden Beitrag geleistet. Dennoch bleiben viele Fragestellungen im Bereich der Optimierung und Anwendbarkeit dieser noch jungen Messmethode zu ergründen.

In dieser Arbeit beschäftigt uns die Frage nach dem thermischen Aufheizverhalten von dünnen Nickelfilmen. Dabei liegt ein besonderes Augenmerk auf den Temperaturverlauf des Gitters in den ersten 5 *ps* nach der Anregung. Damit wir Zugang zu diesen kleinen Zeitskalen bekommen, nutzen wir das bewährte Pump-Probeverfahren (Anrege- Abfrageverfahren). Bei diesem nutzen wir einen gepulsten Laser mit einer Pulsdauer von 50 *fs*, mit dem zum einen die Probe angeregt und zum anderem kurze Elektronenpulse (~ 700 *fs*) erzeugt werden, mit denen die Probe abgefragt wird. Zwischen diesen Pulsen können wir die zeitliche Verzögerung mit der diese auf die Probe treffen kontrollieren und so in zeitlichen Abständen von weniger als 100 *fs* den aktuellen Zustand des Gitters unserer Probe untersuchen.

Nickel ist als eines der drei ferromagnetischen elementaren Metalle von besonderem Interesse. Zum einen liegt seine Curie Temperatur T_C mit 627 K [4] am niedrigsten von den 3d-Metallen Eisen, Cobalt und Nickel. Zum anderen ist Nickel chemisch sehr resistent, was es zu einem geeigneten Material macht, um dünne und reine Proben herzustellen, welche wir mit der TED untersuchen können.

Diese Arbeit ist wie folgt aufgebaut.

- In Kapitel 2 werden die nötigen Grundlagen zur Beugung von Wellen und zeitaufgelösten Messungen behandelt. Hier erfahren wir auch, welche Effekte wir in diesen Experimenten zu sehen erhoffen.
- Anschließend folgt in Kapitel 3 eine detaillierte Beschreibung des experimentellen Aufbaus. Dabei wird erklärt wie die Messungen durchgeführt wurden und worauf besonders zu achten ist, um eine erfolgreiche Messung durchzuführen.
- Die Daten der Messungen und ihre Interpretation wird dann in Kapitel 4 präsentiert.
- Kapitel 5 fasst daraufhin die Ergebnisse zusammen und liefert weitere Fragestellungen, die sich zu beantworten lohnen, und einige Vorschläge für eine Optimierung der Anlage.

2 Grundlage

2.1 Beugungstheorie

Nachdem wir nun einen Überblick über die verschiedenen Techniken zur Untersuchung atomarer Strukturen in dem ersten Kapitel gewonnen haben, gehen wir jetzt tiefer in die Theorie. Da sich diese Arbeit mit der Elektronenbeugung beschäftigt wollen wir zunächst wissen, was Beugung eigentlich ist und wie wir diese mathematisch beschreiben können.

2.1.1 Beugung von Wellen

Unabhängig ob wir uns die Materiewelle eines Elektrons oder eine Schallwelle anschauen, die Beugung an Hindernissen wird mit derselben Mathematik beschrieben. Von der Beugung einer Welle sprechen wir, wenn sich ihre räumliche Amplitudenverteilung aufgrund von Hindernissen in ihre Ausbreitungsrichtung ändert, und diese Änderung durch die Überlagerung von vielen Teilwellen (Elementarwellen) mit einer festen Phasenbeziehung zueinander und gleicher Ausbreitungsgeschwindigkeit hervorgerufen wird. Dieser Prozess wird durch das grundlegende Huygenssche Prinzip erklärt.

Die Ausbreitung von Wellen im Raum lässt sich dadurch beschreiben, dass man jeden Punkt P auf einer Phasenfläche der Welle als Ausgangspunkt einer neuen Kugelwelle (Elementarwelle) auffasst. Diese Elementarwellen breiten sich in alle Richtungen aus und überlagern sich. Nehmen wir nun an, dass zur Zeit t_0 alle von einer Phasenfläche $\Phi(r_0, t_0)$ ausgehenden Kugelwellen erzeugt werden. Dann legen sie während der Zeit Δt den Weg $r = v_{ph} \cdot \Delta t$ zurück. Die Tangentenfläche an den Kugelwellenfronten zum Zeitpunkt $t = t_0 + \Delta t$ bilden dann wieder eine Phasenfläche der Primärwelle, die gegenüber der ersten Fläche im Raum um $r = v_{ph} \cdot \Delta t$ verschoben ist. Bei Schallwellen sind die Ausgangspunkte der Elementarwellen die in Schwingung versetzten Atome im Ausbreitungsmedium. Bei Licht sind die Schwingungen des elektromagnetischen Feldes selbst die Erreger der Elementarwellen.

Da die Ausgangspunkte der Elementarwellen alle auf derselben Phasenfläche liegen, sind ihre Quellen phasestarggekoppelt. Die Phasendifferenz zwischen den Kugelwellen im Punkt P hängt von der Richtung α des Ortsvektors \vec{r} zum Punkt P gegen die Ausbreitungsrichtung der Primärwelle ab.

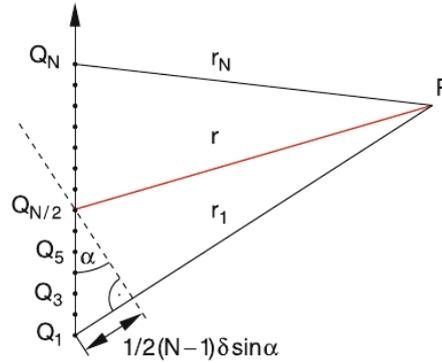


Abbildung 2.1: Schema zur Herleitung der Intensität bei der Überlagerung von N Kugelwellen im Punkte P [a2]

In Abb. (2.1) betrachten wir die Phasenebene einer ebenen Welle im Punkt $z = z_0$, die sich in z -Richtung ausbreitet, mit dem wir das Phänomen der Beugung verdeutlichen. Von N Quellpunkten Q_1 bis Q_N werden im Abstand δ kohärente Elementarwellen ausgesendet. Wir erwarten Interferenzeffekte bei ihrer Überlagerung zu beobachten. In der Richtung α gegen die Normale \vec{k} der Phasenfläche ist die Wegdifferenz zwischen benachbarten Elementarwellen $\Delta s = \delta \cdot \sin \alpha$, und die entsprechende Phasendifferenz ist

$$\Delta\phi = \frac{2\pi}{\lambda} \Delta s = k \cdot \delta \cdot \sin \alpha \quad (2.1)$$

mit $k = \frac{2\pi}{\lambda}$. Wir beobachten die Überlagerung aller Kugelwellen, die von den Quellen Q_n auf der Strecke $d = N \cdot \delta$ ausgesandt werden, im Punkt P , der den Abstand $r \gg d$ vom Mittelpunkt der linearen Quellenordnung hat. Wenn alle Amplituden a_n der Kugelwellen gleich sind ($a_n = a$), dann erhalten wir für die Gesamtamplitude der im Winkelbereich $\alpha \pm \Delta\alpha/2$ ($\Delta\alpha = d/r \ll 1$) ausgesandten Überlagerungswelle:

$$\xi(\alpha) = \sum_{n=1}^N a \cdot e^{i(kr_n - \omega t)} \quad (2.2)$$

Setzen wir $r_n = r + (\frac{N+1}{2} - n)\delta \cdot \sin \alpha$, was sich aus der Geometrie von Abb. (2.1) und Formel (2.1) ein, so ergibt sich mit Formel (2.2)

$$\begin{aligned} \xi(\alpha) &= a \cdot e^{i\frac{N+1}{2} \cdot \Delta\phi} \cdot \sum_{n=1}^N e^{-i \cdot n \Delta\phi} \cdot e^{i(kr - \omega t)} \\ &= A \cdot e^{i(kr - \omega t)} \end{aligned} \quad (2.3)$$

Wir entwickeln die geometrische Reihe $\sum_{n=0}^N x^n = \frac{1-x^{N+1}}{1-x}$:

$$\begin{aligned} \sum_{n=1}^N e^{-i \cdot n \Delta \phi} &= e^{-i \cdot N \cdot \Delta \phi} \cdot \frac{e^{i \cdot N \Delta \phi} - 1}{e^{i \cdot \Delta \phi} - 1} \\ &= e^{-i \frac{N-1}{2} \Delta \phi} \cdot \frac{e^{i \frac{N}{2} \Delta \phi} - e^{-i \frac{N}{2} \Delta \phi}}{e^{i \frac{\Delta \phi}{2}} - e^{-i \frac{\Delta \phi}{2}}} \end{aligned}$$

Den Bruch können wir umschreiben zu $\sin(\frac{N}{2} \Delta \phi) / \sin(\frac{1}{2} \Delta \phi)$, wodurch wir für die Amplitude der Welle folgenden Ausdruck bekommen:

$$A(\alpha) = a \cdot e^{i \frac{N-1}{2} \cdot \Delta \phi} \cdot \frac{\sin(\frac{N}{2} \Delta \phi)}{\sin(\frac{1}{2} \Delta \phi)} \quad (2.4)$$

Für die Intensität gilt $I(\alpha) \propto |A(\alpha)|^2$, und mit $|a \cdot e^{-i \Delta \phi}|^2 = I_0$ erhalten wir:

$$I(\alpha) = I_0 \cdot \frac{\sin^2(\frac{N}{2} \Delta \phi)}{\sin^2(\frac{1}{2} \Delta \phi)} = I_0 \cdot \frac{\sin^2(\frac{N}{2} k \cdot \delta \cdot \sin \alpha)}{\sin^2(\frac{1}{2} k \cdot \delta \cdot \sin \alpha)} \quad (2.5)$$

Das Ergebnis schauen wir uns in Abb. (2.2) an, und erkennen deutliche Unterschiede für die Fälle $\delta < \lambda \ll d$ und $\lambda < \delta \ll d$.

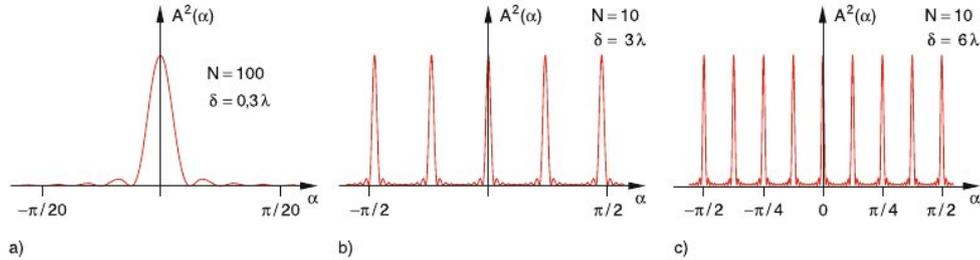


Abbildung 2.2: Intensitätsverteilung für den Raumwinkel α [a2]

Wir erhalten nur dann mehrere Beugungsmaxima, wenn $\lambda < \delta$ ist, und zwar $p = \lceil \delta / \lambda \rceil$ Stück, für die gilt:

$$\sin \alpha_n = n \frac{\lambda}{\delta} \quad (2.6)$$

In Formel (2.6) ist α_n der Winkel unter dem das n-te Maxima zu beobachten ist, wobei für n gilt:

$$n = 0, 1, 2, \dots, p < \delta / \lambda$$

Bis jetzt haben wir eine feste Anzahl N an Quellen betrachtet. Aber was passiert, wenn wir N gegen unendlich gehen lassen?

Die Breite $d = N \cdot \delta$ unserer Anordnung von Quellen, lassen wir dabei konstant. Ebenso bleibt die gesamte Intensität $I_{0,g}$ konstant mit $I_{0,g} = N^2 \cdot I_0$, daraus folgt:

$$I_g(\alpha) = \lim_{N \rightarrow \infty} I(\alpha) = \lim_{N \rightarrow \infty} I_{0,g} \cdot \frac{1}{N^2} \cdot \frac{\sin^2(\frac{d \cdot k}{2} \sin \alpha)}{\sin^2(\frac{d \cdot k}{2 \cdot N} \sin \alpha)} \quad (2.7)$$

Für $N \rightarrow \infty$ können wir den Sinus durch sein Argument ersetzen und erhalten dadurch:

$$I_g(\alpha) = I_{0,g} \cdot \frac{\sin^2\left(\frac{d \cdot k}{2} \sin \alpha\right)}{\left(\frac{d \cdot k}{2} \sin \alpha\right)^2} \quad (2.8)$$

Formel (2.8) beschreibt die Intensitätsverteilung über den Winkel α für den Fall, dass eine ebene Welle auf einen Spalt trifft. Der Verlauf der Funktion $\frac{\sin^2 x}{x^2}$ ist in Abb. (2.3) gezeigt. Wir sehen, dass man nur einen merklichen Beitrag der Beugung erhält, wenn $\lambda < d$ aber nicht $\lambda \ll d$ ist. Wir halten fest, bei einem Spalt geht die meiste Intensität gerade aus ($\alpha = 0^\circ$). In dem Bereich zwischen den ersten Beugungsminima (von $-\pi$ bis π) geht sogar 90% der gesamten Intensität, wie folgendermaßen berechnet werden kann:

$$\int_{-\pi}^{\pi} \frac{\sin^2 x}{x^2} \Bigg/ \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\sin^2 x}{x^2} = 0,9$$

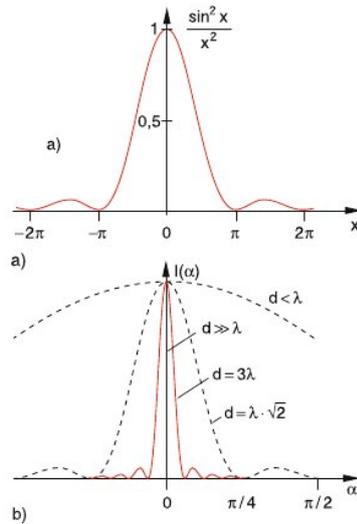


Abbildung 2.3: Intensitätsverteilung für den Raumwinkel bei der Beugung am Spalt für unterschiedliche Werte von λ/d α [a2]

Wir haben nun die Intensitätsverteilung für einen Spalt. Was passiert aber, wenn wir viele Spalte nebeneinander platzieren?

Schauen wir es uns an. Mehrere identische, periodisch angeordnete Spalte nennt man ein Beugungsgitter. Den Abstand der Spalte voneinander nennen wir b . In diesem Fall interferieren zum einen die einzelnen Teilwellen, die von einem einzigen Spalten ausgesendet werden, miteinander. Hierdurch erhalten wir das gleiche Ergebnis wie in Formel (2.8). Zum anderem interferiert die Wellen aus den verschiedenen Spalten mit einander, was dem Fall in Formel (2.5) entspricht für N einzelne Quellen. Ersetzt man in Formel (2.5) den Senderabstand δ durch den Spaltabstand b und den Wellenvektor k mit der Wellenlänge $\lambda = 2\pi/k$,

so erhalten wir durch kombinieren von Formel (2.5) mit Formel (2.8) für die Intensitätsverteilung $I_B(\theta)$ eines Gitters:

$$I_B(\theta) = I_{0,g} \cdot \frac{\sin^2\left(\frac{d\pi}{\lambda} \sin \theta\right)}{\left(\frac{d\pi}{\lambda} \sin \theta\right)^2} \cdot \frac{\sin^2\left(\frac{N \cdot b \cdot \pi}{\lambda} \sin \theta\right)}{\sin^2\left(\frac{b\pi}{\lambda} \sin \theta\right)} \quad (2.9)$$

Breitet sich die Welle vor dem Gitter in z -Richtung aus, so ist θ der Winkel zwischen z -Achse und dem \vec{k} -Vektor der gebeugten Welle. In Abb. (2.4) wird der Graph der Funktion (2.9) dargestellt. Die Funktion wird maximal, wenn für die Wegdifferenz Δs von äquivalenten Teilbündeln folgende Beziehung gilt:

$$\Delta s = b \cdot \sin \theta = m \cdot \lambda \quad (2.10)$$

Formel (2.10) folgt aus dem dritten Faktor in Formel (2.9), d.h. von der Anordnung der einzelnen Spalte und beschreibt den Winkel unter dem die Hauptmaxima auftreten. Die Intensität der Hauptmaxima wird durch den zweiten Faktor aus Formel (2.9) bestimmt. Es können bis zu m_{max} Hauptmaxima auftreten, wobei für m_{max} gilt:

$$m_{max} = \lceil b/\lambda \rceil$$

Daher nennt man die einzelnen Hauptmaxima auch Beugungsmaxima m -ter Ordnung, da es sich dabei um das m -te Hauptmaximum handelt.

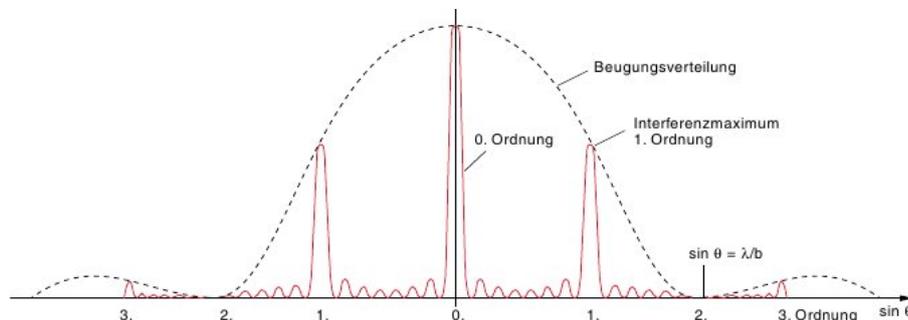


Abbildung 2.4: Intensitätsverteilung für den Raumwinkel θ bei der Beugung am Gitter mit N Spalten [a2]

Für ein Gitter mit N Spalten existieren noch $N - 2$ Nebenmaxima zwischen den jeweiligen Hauptmaxima. Für Gitter mit großem N ist deren Intensität aber so klein, dass sie nicht mehr beobachtet werden können.

Da wir nun die wichtigsten Grundlagen zur Beugung von Wellen hergeleitet haben, soll nochmal betont werden, dass alle Formeln und Gesetze in diesem Kapitel für beliebige Wellen gelten. Egal ob wir mechanische Wellen (z.B. Wasserwellen), elektromagnetische Wellen (z.B. Licht) oder Materiewellen (z.B. Elektronen) behandeln. Alle zeigen das gleiche Verhalten, wenn sie auf ein Hindernis treffen, solange nur das Verhältnis zwischen Wellenlänge λ und den Abmessungen des Hindernisses gleich bleiben. Bei der Elektronenbeugung sind wir in

diesem Fall aber nicht so sehr an der Beugung an einem Spalt interessiert, sondern an einen Festkörper, dessen Atome periodisch angeordnet sind. Bis jetzt haben wir uns nur die Beugung an Öffnungen (Spalten) verdeutlicht. Dies stellt aber auch kein weiteres Problem dar, da der französische Physiker J. Babinet (1794-1872) herausfand, dass die Beugungsstruktur von 2 komplementären Flächen dieselbe Intensitätsverteilung liefert. Folglich können wir anhand eines Beugungsbildes nicht erkennen, ob eine Welle an einem Spalt in einer undurchlässigen Wand oder an einem Draht gleichen Durchmessers gebeugt wird. Es sei denn wir ziehen die durch Beugung hervorgerufene Intensitätsverteilung von beiden Bildern ab.

Ganz allgemein lässt sich die Beugung an einer beliebigen Struktur mit Hilfe des Fresnel-Kirchhoffschen Beugungsintegrals berechnen.

$$E_P = \iint_C C \cdot E_S \cdot \frac{\exp[-i \cdot \vec{k} \cdot \vec{r}]}{r} dx \cdot dy \quad (2.11)$$

E_P ist die Amplitude im Punkt $P(x, y)$ hinter der Fläche F , an der gebeugt wird. E_S ist die gesamte Amplitude der Welle vor der Öffnung. C ist ein Proportionalitätsfaktor für den gilt $C = \cos \Theta / (i \cdot \lambda)$, mit λ gleich der Wellenlänge, i der imaginären Einheit und Θ dem Winkel zwischen der Flächennormalen von der Oberfläche von F und dem \vec{k} -Vektor der Welle. r ist die Strecke, welche die Welle von der Fläche F bis zum Punkt P zurücklegen muss, und $dx \cdot dy = d\sigma$ ist das zweidimensionale Flächenelement von F . Dieses Integral ist nur für einige einfache Fälle analytisch lösbar. Ansonsten muss und kann es numerisch gelöst werden, solange die Randbedingungen der Öffnung bekannt sind. Selbst in den einfachen Fällen muss das Integral in verschiedene Bereiche eingeteilt und separat ausgewertet werden. Diese Bereiche werden nach dem Abstand z_0 des Detektors zur Öffnung, an der gebeugt wird, wie folgt eingeteilt:

- Die Nahzone, falls $z_0 \ll b^2/\lambda$ gilt. Hier gilt die Fresnelbeugung.
- Die Übergangszone, falls $z_0 \approx b^2/\lambda$ gilt.
- Die Fernzone, für den Fall $z_0 \gg b^2/\lambda$, bei dem die in diesem Abschnitt hergeleitete Formeln gelten. In dieser Zone spricht man von Fraunhoferbeugung.

In dieser Arbeit steht die Beugung an Kristallen, genauer an dem periodischen Gitter, welches die Atome im Festkörper aufspannen, im Vordergrund. Sowohl die Röntgen- als auch die Elektronenbeugung sind starke Werkzeuge zur Untersuchung der Struktur von Kristallen, aber auch von amorphen Festkörpern, Flüssigkeiten und Gasen. Die Details zur Behandlung der Beugung an Festkörpern, erwartet uns im nächsten Abschnitt.

2.1.2 Beugung an Atomen, Bragg und Laue-Bedingung

Eines der ersten Experimente zur Bestimmung der Atomabstände mit Hilfe von Röntgenstrahlen in Kristallen wurde von W.L. Bragg (1890-1971) durchgeführt.

In Abschnitt 1.1.3 wurde bereits die Röntgenbeugung angesprochen und wird nun genauer behandelt.

Wir wissen, dass Wellen nur dann konstruktiv interferieren, wenn der Wegunterschied Δs zwischen kohärenten Teilstrahlen gleich einem Vielfachen n der Wellenlänge λ entspricht. Anhand von Abb. (2.5) kann man leicht sehen, dass unter streifendem Einfall dies genau für

$$\Delta s = 2 \cdot d \cdot \sin \vartheta = n \cdot \lambda \quad (2.12)$$

erfüllt ist, wobei d der Abstand der Gitterebenen ist. Dies ist die Bragg Bedingung. Sie sagt, unter welchem Winkel wir bei gegebener Wellenlänge eine Reflexion der Welle beobachten können. Zudem ist zu beachten, dass der Winkel ϑ nicht, wie sonst in der Optik üblich, zum Lot hin gemessen wird, sondern zur Oberfläche. Um mit dieser Technik die Gitterkonstante, der Abstand der Gitterebenen, zu vermessen nutzt man monochromatische Röntgenstrahlung mit bekannter Wellenlänge. Im Fall von Elektronen benutzt man eine Quelle, die Elektronen mit einer konstanten de Brogli Wellenlänge emittiert, im fernerem Sinne monochromatische Elektronen.

In einem allgemeinerem Ansatz wird die Beugung für Wellen beschrieben, die ein breites kontinuierliches Spektrum besitzen. Max von Laue (1879-1960) hat diese Technik zur Untersuchung von Festkörpern als erster angewendet. Auch hier lässt sich der Formalismus direkt auf die Materiewellen von Elektronen übertragen.

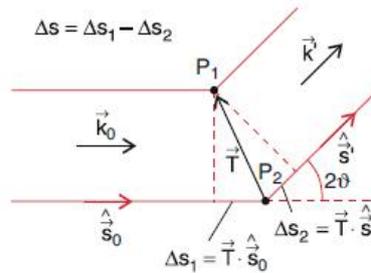


Abbildung 2.5: Schema zur Herleitung der Laue Beugung [a2]

Wir betrachten eine ebene Welle, die auf ein atomares Gitter trifft. Für die an den Atomen elastisch gestreuten Wellen ergibt sich auch hier nur dann konstruktive Interferenz, wenn der Wegunterschied Δs von zwei an beliebigen Atomen des Gitters gestreuten Teilwellen $\Delta s = m \cdot \lambda$ beträgt. Für die \vec{k} -Vektoren der einfallenden \vec{k}_0 und gestreuten Welle \vec{k}_g gilt:

$$\vec{k}_0 = k \cdot \vec{s}_0, \quad \vec{k}_g = k \cdot \vec{s}_g$$

\vec{s}_0 und \vec{s}_g sind Einheitsvektoren in Richtung der einfallenden und gestreuten Welle. Zudem gilt $|\vec{k}_0| = |\vec{k}_g| = k$, da wir nur die elastisch gebeugten Wellen

anschauen. Greifen wir uns nun 2 beliebige Gitterpunkte P_1 und P_2 aus dem Gitter heraus, die durch den Translationsvektor

$$\vec{T} = m_1 \cdot \vec{a} + m_2 \cdot \vec{b} + m_3 \cdot \vec{c}$$

verknüpft sind. Hierbei sind m_1 , m_2 und m_3 beliebige ganze Zahlen und \vec{a} , \vec{b} und \vec{c} die Basisvektoren des Gitters parallel zu den Kristallachsen. Somit ergibt sich:

$$\begin{aligned} \Delta s &= \vec{T} \cdot \vec{s}_0 - \vec{T} \cdot \vec{s}_g = \\ &= k[m_1 \cdot \vec{a}(\vec{s}_0 - \vec{s}_g) + m_2 \cdot \vec{b}(\vec{s}_0 - \vec{s}_g) + m_3 \cdot \vec{c}(\vec{s}_0 - \vec{s}_g)] = \\ &= m_1 \Delta a + m_2 \Delta b + m_3 \Delta c = m \cdot \lambda \end{aligned} \quad (2.13)$$

Die Abkürzungen Δa , Δb und Δc stehen für die Wegdifferenzen der einfallenden und gestreuten Teilwellen zueinander, bezüglich der Basisvektoren \vec{a} , \vec{b} und \vec{c} des Gitters. Dadurch folgt sofort:

$$\begin{aligned} \Delta a &= m_1 \cdot \vec{a}(\vec{s}_0 - \vec{s}_g) = h \cdot \lambda \\ \Delta b &= m_2 \cdot \vec{b}(\vec{s}_0 - \vec{s}_g) = k \cdot \lambda \\ \Delta c &= m_3 \cdot \vec{c}(\vec{s}_0 - \vec{s}_g) = l \cdot \lambda \end{aligned} \quad (2.14)$$

Wobei h , k und l ganzzahlige Werte annehmen müssen.

Sind $(\alpha_0, \beta_0, \gamma_0)$ die Winkel der Einfallsrrichtungen gegen die (x, y, z) -Achsen und $(\alpha_g, \beta_g, \gamma_g)$ die der Streurichtung, so erhalten wir aus Formel (2.14) die Laue-Gleichungen:

$$\begin{aligned} \cos \alpha_0 - \cos \alpha_g &= h \cdot \lambda / a \\ \cos \beta_0 - \cos \beta_g &= k \cdot \lambda / b \\ \cos \gamma_0 - \cos \gamma_g &= l \cdot \lambda / c \end{aligned} \quad (2.15)$$

Konstruktive Interferenz kann also nur für bestimmte Wellenlängen λ in Richtung von $(\alpha_g, \beta_g, \gamma_g)$ erreicht werden, wenn die Einfallsrichtung fest vorgegeben ist. In diesen Richtungen erscheinen die so genannten Laue Reflexe. Zudem gibt es eine vierte Bedingung die erfüllt sein muss:

$$\cos^2 \alpha + \cos^2 \beta + \cos^2 \gamma = 1 \quad (2.16)$$

Definieren wir den Ablenkwinkel ϑ der gebeugten Welle über $(\alpha_0, \beta_0, \gamma_0)$ und $(\alpha_g, \beta_g, \gamma_g)$, so gilt die Relation:

$$\cos 2\vartheta = \vec{s}_g \cdot \vec{s}_0 = \cos \alpha_g \cdot \cos \alpha_0 + \cos \beta_g \cdot \cos \beta_0 + \cos \gamma_g \cdot \cos \gamma_0 \quad (2.17)$$

Quadriert man die Laue Gleichung (2.15) und addiert sie zu Formel (2.17), erhalten wir mit Formel (2.16)

$$2 \cdot [1 - \cos 2\vartheta] = \lambda^2 \left[\frac{h^2}{a^2} + \frac{k^2}{b^2} + \frac{l^2}{c^2} \right] = m^2 \cdot \lambda^2 \quad (2.18)$$

Des weiteren gilt $(1 - \cos 2\vartheta) = 2 \cdot \sin^2 \vartheta$ und mit der Definition des Gitterabstandes, auch Netzebenenabstand genannt, für eine orthorhombische Einheitszelle

$$d_{hkl} = \left[\frac{h^2}{a^2} + \frac{k^2}{b^2} + \frac{l^2}{c^2} \right]^{-1/2}$$

erhalten wir die uns schon bekannte Bragg Bedingung, für ein kubisches Gitter:

$$2 \cdot d_{hkl} \cdot \sin \vartheta = m \cdot \lambda \quad (2.19)$$

Hieran können wir erkennen, das die Bragg Beugung nur ein Spezialfall der allgemeineren Laue Beugung ist.

Schauen wir uns nochmal 2 Teilstrahlen mit der Wegdifferenz Δs an. Diese haben dann eine Phasendifferenz von $\Delta\varphi = (2\pi/\lambda)\Delta s = k \cdot \Delta s$. Aus der Bedingung $\Delta s = m \cdot \lambda$ wird dann $\Delta\varphi = \cdot 2\pi \Rightarrow k \cdot \Delta s = m \cdot 2\pi$. Damit lässt sich Formel (2.13) umschreiben zu:

$$\begin{aligned} \vec{T} \cdot \Delta\vec{k} &= m \cdot 2\pi = \\ &= m_1 \vec{a} \cdot \Delta\vec{k}_a + m_2 \vec{b} \cdot \Delta\vec{k}_b + m_3 \vec{c} \cdot \Delta\vec{k}_c \end{aligned} \quad (2.20)$$

Daraus ergibt sich für beliebige m_1, m_2, m_3 :

$$\Delta\vec{k}_a \cdot \vec{a} = h \cdot 2\pi, \quad \Delta\vec{k}_b \cdot \vec{b} = k \cdot 2\pi, \quad \Delta\vec{k}_c \cdot \vec{c} = l \cdot 2\pi, \quad (2.21)$$

Finden wir nun einen Vektor dergestalt, dass gilt:

$$\vec{G} = h \cdot \frac{2\pi}{a} + k \cdot \frac{2\pi}{b} + l \cdot \frac{2\pi}{c} \quad (2.22)$$

Dann lässt sich Formel (2.15) in eine einfache Form bringen:

$$\Delta\vec{k} = \vec{k}_0 - \vec{k}_g = \vec{G} \quad (2.23)$$

Der Vektor \vec{G} wird reziproker Gittervektor genannt. Dieser und der reziproke Raum, welcher durch die reziproken Basisvektoren aufgespannt wird, sind nützliche Hilfsmittel zur Beschreibung der Beugung in Festkörpern und vieler anderer Phänomene. Die reziproken Basisvektoren sind wie folgt definiert:

$$\begin{aligned} \vec{a}^* &= 2\pi \cdot \frac{\vec{b} \times \vec{c}}{\vec{a} \cdot (\vec{b} \times \vec{c})} = \frac{2\pi}{V_E} \cdot \vec{b} \times \vec{c} \\ \vec{b}^* &= \frac{2\pi}{V_E} \cdot \vec{c} \times \vec{a} \\ \vec{c}^* &= \frac{2\pi}{V_E} \cdot \vec{a} \times \vec{b} \end{aligned} \quad (2.24)$$

Mit den Millerschen Indizes (h, k, l) , welche benutzt werden um die Netzebenen in einem Kristallgitter zu indizieren, gilt:

$$\vec{G} = h \cdot \vec{a}^* + k \cdot \vec{b}^* + l \cdot \vec{c}^* \quad (2.25)$$

Für den Betrag des reziproken Gittervektors gilt:

$$\vec{G} = \frac{2\pi}{d_{hkl}} \quad (2.26)$$

Im reziproken Raum gibt es eine sehr anschauliche grafische Darstellung der Laue Bedingung, die Ewald Konstruktion. Bei der Ewald Konstruktion zeichnet man den \vec{k}_0 -Vektor der einfallenden Welle in den reziproken Raum ein, so dass dieser auf einem Gitterpunkt endet. Um den Ursprung von \vec{k}_0 zeichnet man eine Kugel mit einem Radius $r = |\vec{k}_0| = 2\pi/\lambda$. Für alle Punkte, die den Rand dieser Ewaldkugel, schneiden gibt es einen Vektor \vec{k}_g , in dessen Richtung die Welle gestreut werden kann. In Abb. (2.6) sehen wir sofort, dass dann die Bedingung $\vec{k}_g = \vec{G} + \vec{k}_0$ erfüllt ist.

Bei dem in dieser Arbeit verwendeten Aufbau, ist der \vec{k} -Vektor sehr groß im Vergleich mit dem reziproken Gittervektor \vec{G} . Dadurch wird die Ewaldkugel sehr groß, was in Abb. (2.7) gezeigt wird. Zudem sehen wir in Abb. (2.7), dass die Gitterpunkte Zigarrenförmig verzerrt sind. Dieser Effekt, tritt bei dünnen Filmen mit einer Dicke von wenigen Nanometern auf. Im reziproken Raum werden die Gitterpunkte des Realraumes nur dann durch die Fourier Transformation auf ideale Punkte abgebildet, wenn wir einen unendlich ausgedehnten Realraum betrachten. Dieser Effekt und der große \vec{k} -Vektor erlauben uns mehrere Beugungsmaxima, die zu derselben Gitterebene gehören auf einmal zu beobachten. Dieselben Bedingungen führen dazu, dass wir blind in Bezug zu Veränderungen des Gitters parallel zu dem \vec{k} -Vektor sind.

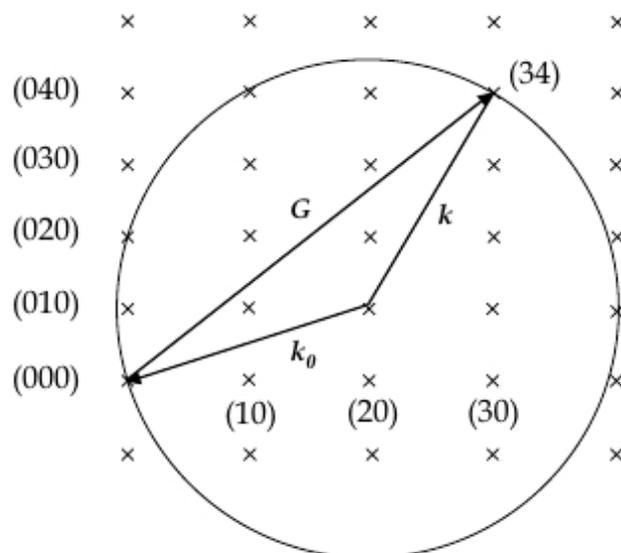


Abbildung 2.6: Ewald Kugel im k-Raum, für kleine Wellenvektoren [a10]

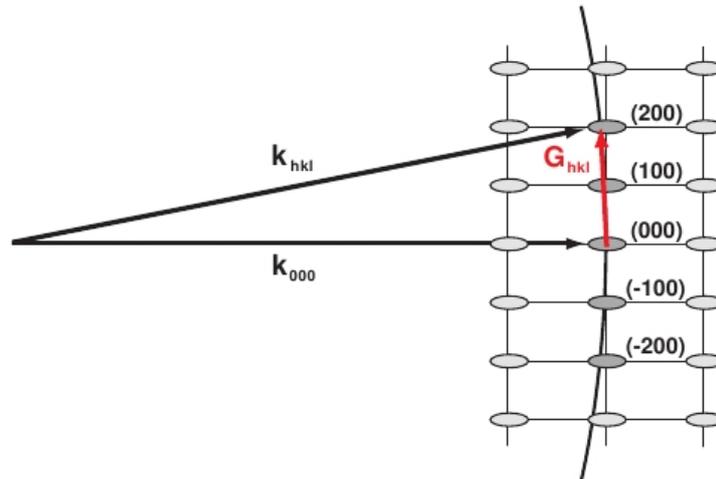


Abbildung 2.7: Ewald Konstruktion für schnelle Elektronen [a11]

2.1.3 Strukturfaktor und Atomformfaktor

Im vorigen Abschnitt haben wir die Laue Gleichungen hergeleitet. Dabei haben wir vorausgesetzt, dass der zu untersuchende Festkörper in ideales einatomiges Punktgitter ist. Diese Annahme stellt eine starke Einschränkung dar, die wir jetzt erweitern werden.

In den meisten Fällen kann ein Körper leichter durch eine nicht primitive Einheitszelle beschrieben werden, so dass mehr als ein Atom pro Elementarzelle existiert. Das lässt sich durch eine mehratomige Basis realisieren. Eine solche Basis kann nun auch unterschiedliche Atome beinhalten, wie es für Molekulkristalle notwendig ist. Außerdem sind Atome, auch wenn sie sehr klein sind, keine Punkte im Raum. Die Atome an den Gitterpunkten besitzen eine charakteristische Form, aufgrund ihrer Ladungsverteilung in der Atomhülle. Bei der Elektronenbeugung, werden die Elektronen (Sonden) sowohl an der Atomhülle als auch an dem Atomkern gestreut. Die Streuung an dem Atomkern folgt der Rutherford Streuung und ist dominant für große Ablenkwinkel. Bei dieser tritt oft inelastische Streuung auf, was wir in der Elektronenbeugung nicht untersuchen wollen. Zudem können wir nur Beugungsordnungen detektieren, die zu kleinen Beugungswinkel gehören ($\Theta < 10^\circ$). Denn unser Detektor hat einen Durchmesser von 4 cm und befindet sich in einem Abstand von 30 cm von der Probe. Darum interessiert uns besonders die Streuung an der Hülle. So ergeben sich 3 Faktoren, welche die Intensitätsverteilung der gestreuten Welle bestimmen.

- Die Position der Beugungsmaxima für das Punktgitter wird durch die Laue Bedingung bestimmt.
- Durch die Anordnung mehrerer Atome in der Elementarzelle können einzelne Maxima ausgelöscht werden, welche nach der Laue Bedingung be-

obachtbar wären. Dieser Faktor wird Strukturfaktor oder Streuamplitude genannt.

- Zudem legt die Ladungsverteilung (Form) der Atome eine Verbreiterung der Intensitätsmaxima fest, was durch den atomaren Streufaktor beschrieben wird.

Wir starten mit einer ebenen Welle $\vec{E}(\vec{r})$, die auf ein Streuzentrum P am Ort \vec{r} trifft. Dabei wird der Bruchteil f der Amplitude \vec{A}_e als Kugelwelle in alle Raumrichtungen gestreut, siehe Abb. (2.8).

$$\vec{E}(\vec{r}) = \vec{A}_e \cdot \exp [i \cdot (\vec{k} \cdot \vec{r} - \omega \cdot t)] \quad (2.27)$$

Wir definieren den Verbindungsvektor $\vec{R} = \vec{R}_0 - \vec{r}$ wie in Abb. (2.8) und die Konstante $C = A_e/R \cdot e^{i(\vec{k} \cdot \vec{R}_0 - \omega \cdot t)}$. So ergibt sich für die Amplitude A_B der gestreuten Welle im Beobachtungspunkt $B(\vec{R}_0)$ unter der Voraussetzung, dass $R_0 \gg r$ ist:

$$A_B = C \cdot f \cdot e^{i\Delta\vec{k}\vec{r}} \quad (2.28)$$

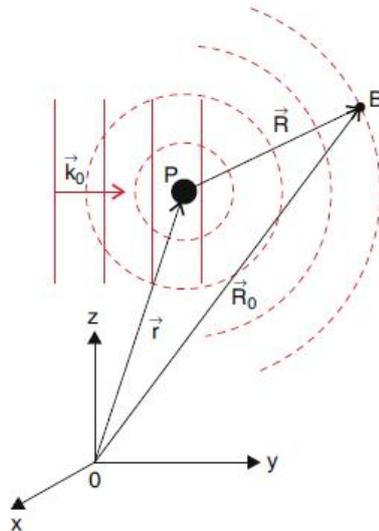


Abbildung 2.8: Skizze zur Herleitung des Strukturfaktors [a2]

Hieraus folgt für die gesamte Streuamplitude A_t eines Kristall mit vielen Streuzentren and den Gitterplätzen

$$\vec{r}_m = m_1 \cdot \vec{a} + m_2 \cdot \vec{b} + m_3 \cdot \vec{c}$$

aber immer noch einem Atom pro Elementarzelle:

$$A_t = C \cdot f \cdot \sum_{m_i} e^{i\Delta\vec{k}(m_1 \cdot \vec{a} + m_2 \cdot \vec{b} + m_3 \cdot \vec{c})} \quad (2.29)$$

Gleichung (2.29) lässt sich nun leicht für eine mehratomige Basis erweitern, wenn wir die Ortsvektoren \vec{r}_j der Atome A_j über eine Translation einführen:

$$\begin{aligned}\vec{r}_j &= \vec{T} + \vec{t}_j = \\ &= (m_1 + u_j) \cdot \vec{a} + (m_2 + v_j) \cdot \vec{b} + (m_3 + w_j) \cdot \vec{c}\end{aligned}\quad (2.30)$$

$\vec{t}_j = (u_j, v_j, w_j)$ ist hier der Basisvektor des Atoms A_j . Diesen Vektor setzen wir in Gleichung (2.29) und erhalten:

$$\begin{aligned}A_t &= C \cdot \sum_j f_j \cdot e^{i\Delta\vec{k} \cdot (u_j \cdot \vec{a} + v_j \cdot \vec{b} + w_j \cdot \vec{c})} \cdot \sum_{m_l} e^{i\Delta\vec{k} \cdot \vec{T}} \\ &= C \cdot SF \cdot LG\end{aligned}\quad (2.31)$$

Damit haben wir die gesamte Streuamplitude für einen Festkörper mit mehr als ein Atom pro Einheitszelle. Diese setzt sich zusammen aus dem Faktor LG , welcher die Beugung an dem einatomaren Punktgitter widerspiegelt, gemäß der Laue Bedingung. Der Strukturfaktor SF beschreibt den Einfluss einer mehratomigen Basis, auf das Beugungsbild. Mit Hilfe der reziproken Gittervektoren (2.24) können wir den Strukturfaktor auch wie folgt schreiben:

$$SF = \sum_j f_j \cdot e^{i2\pi \cdot (u_j \cdot h + v_j \cdot k + w_j \cdot l)} \quad (2.32)$$

Für die Intensität gilt wie üblich: $I \propto A \cdot A^* \propto |SF|^2 \cdot |LG|^2$

Der Faktor f_j ist der atomare Streufaktor. Dieser gibt an, wie stark die einfallende Welle gestreut wird, und hängt von der Ladungsdicht in der Elektronenhülle des streuenden Atoms ab. Um diese Aussage in eine quantifizierbare Form zu bringen, betrachten wir ein Volumenelement dV innerhalb der Atomhülle am Ort \vec{r}' . Darin ist eine vom Ort abhängige Anzahl Elektronen $n(\vec{r}')dV$ enthalten. Damit lässt sich der Streufaktor wie folgt schreiben:

$$f = \int n(\vec{r}') e^{i\Delta\vec{k} \cdot \vec{r}'} \cdot dV \quad (2.33)$$

Des Weiteren nehmen wir eine kugelsymmetrische Ladungsverteilung an. So können wir über den Winkel α , der zwischen $\Delta\vec{k}$ und \vec{r}' aufgespannt wird, von 0 bis π integrieren. Zudem benutzen wir $dV = 2\pi r'^2 \cdot dr' \cdot \sin \alpha \cdot d\alpha$ und $\Delta\vec{k} \cdot \vec{r}' = \Delta k \cdot r' \cdot \cos \alpha$:

$$f = \frac{4\pi}{\Delta k} \int \frac{\sin(r' \cdot \Delta k)}{r'} \cdot r'^2 \cdot n(r') \cdot dr' \quad (2.34)$$

Aus Formel (2.34) folgt für eine punktförmige Ladungsverteilung:

$$f = 2\pi \int r'^2 \cdot n(r') \cdot dr' = Z \quad (2.35)$$

Z ist die Kernladungszahl. Der atomare Streufaktor f beschreibt das Verhältnis zwischen der Amplitude einer Welle, die an einem realen Atom gestreut wurde,

zu einer Welle, die an einer punktförmigen Ladungsverteilung gestreut wurde. Daher kann man über die Intensitätsverteilung innerhalb eines Beugungsmaximums Informationen über die Ladungsverteilung in einem Kristall erhalten. Bis jetzt haben wir uns nur mit der statischen Vermessung von Festkörpern mittels der Elektronenbeugung beschäftigt. Die zeitaufgelöste Beugung von Elektronen ermöglicht uns aber die Dynamik eines Kristalls zu untersuchen, worum es im nächsten Abschnitt geht.

Nickel kristallisiert in der fcc Struktur. Für diese ergibt sich, dass nur dann konstruktive Interferenz auftritt, wenn h , k , und l alle gerade oder alle ungerade sind. Für alle anderen Kombinationen können wir kein Beugungsmaximum beobachten.

2.2 Zeitaufgelöste Messungen

Sowohl Röntgen- als auch Elektronenbeugungsexperimente erlauben uns Bewegungen der Atome des Kristallgitters und strukturelle Änderungen eines Festkörpers auf einer Zeitskala von piko/femto-Sekunden zu untersuchen. Dadurch stellt sich uns doch sofort die Frage, wie schnell laufen diese Veränderungen im Festkörpern ab?

Wenn wir einen Festkörper mit einem Laser anregen, dann kann die Energie des Lasers auf verschiedene Arten absorbiert werden. Welche diese sind hängt stark von dem Festkörper und der Wellenlänge des eingestrahlten Lichtes ab. Hauptsächlich wird Licht von den Elektronen im Festkörper absorbiert. Dieser Vorgang, bei dem ein Elektron von seinem Grundzustand in einen angeregten Zustand höherer Energie übergeht, geschieht innerhalb von Attosekunden und schneller. Dies lässt sich grob aus der Zeit abschätzen, die ein Photon benötigt um an einem Atom vorbeizufiegen. Die Lebensdauer eines angeregten Zustandes kann sehr unterschiedlich sein. Instabile Zustände, mit einem direkten optischen Übergang in einen niedrigeren Zustand, zerfallen durch Emission von Licht innerhalb von weniger als 100 Femtosekunden [1.2 (S. 208)]. Metastabile Zustände, bei denen der direkte Übergang durch die Auswahlregeln verboten ist, können mehr als eine Sekunde lang bestehen bleiben. Zudem können die angeregten Elektronen ihre Energie in andere Quasiteilchen abgeben, wie z.B. Phononen, Molekülschwingungen oder Plasmonen. Von diesen sind Phononen die Hauptursache für Änderungen in der Gitterkonstanten. Die Zeitskala in der Elektronen ihre Energie an das Kristallgitter, das phononische System, abgeben liegt im Bereich von 0,1 bis 5 Pikosekunden. Die Zeitkonstante dieses Energieübertrags für dünne Nickelfilme zu ermitteln ist ein Schwerpunkt dieser Arbeit.

2.2.1 Dynamik in Kristallen, Phononen

Änderungen am Kristallgitter können eine Vielzahl an Ursachen haben. Eine davon sind Phononen. Um genau zu sein spricht man von Phononen, wenn es sich

um quantisierte Gitterschwingungen handelt. Diese haben Auswirkungen auf die thermischen, elektrischen und elastischen Eigenschaften eines Festkörpers. Ein einfaches Modell zur Beschreibung solcher Gitterschwingungen ist die lineare zweiatomige Kette. Damit wir Phononen besser von Materiewellen und elektromagnetischen Wellen unterscheiden können, werden wir den Wellenvektor \vec{K} und die Frequenz $\vec{\Omega}$ mit großen Buchstaben versehen. Die Bewegungsgleichung für eine solche Kette aus 2 Atomen mit den Massen M_1 und M_2 , die mit der Rückstellkraft C aneinander gekoppelt sind, lautet:

$$M_1 \frac{d^2 \xi_{2s+1}}{dt^2} = C \cdot (\xi_{2s} + \xi_{2s+2} - 2\xi_{2s+1}) \quad (2.36)$$

$$M_2 \frac{d^2 \xi_{2s}}{dt^2} = C \cdot (\xi_{2s-1} + \xi_{2s+1} - 2\xi_{2s}) \quad (2.37)$$

In den Bewegungsgleichungen sind die ξ_i die Auslenkungen der Atome aus ihrer Ruhelage. Mit folgendem Lösungsansatz

$$\begin{aligned} \xi_{2s+1} &= A \cdot e^{i\left(\frac{2s+1}{2} \cdot K \cdot x - \Omega \cdot t\right)} \\ \xi_{2s} &= B \cdot e^{i(s \cdot K \cdot x - \Omega \cdot t)} \end{aligned}$$

erhalten wir ein lineares Gleichungssystem in Abhängigkeit von dem Gleichgewichtsabstand x der Atome zu einander.

$$\begin{aligned} (\Omega^2 M_1 - 2C)A + \left(2C \cdot \cos \frac{K \cdot x}{2}\right) B &= 0 \\ \left(2C \cdot \cos \frac{K \cdot x}{2}\right) A + (\Omega^2 M_2 - 2C)B &= 0 \end{aligned} \quad (2.38)$$

Wir lösen dessen Koeffizientendeterminante und setzen diese gleich Null. Auf diese Weise erhalten wir die Amplituden A und B für eine stehende Welle mit der Frequenz Ω .

$$\Omega^2 = C \cdot \left(\frac{1}{M_1} + \frac{1}{M_2}\right) \pm C \sqrt{\left(\frac{1}{M_1} + \frac{1}{M_2}\right)^2 - \frac{4}{M_1 M_2} \sin^2 \frac{K \cdot x}{2}} \quad (2.39)$$

Für kleine Werte von K ($K \ll 1$) erhalten wir als Lösungen, einmal den akustischen Zweig:

$$\Omega_- \approx K \cdot x \sqrt{\frac{C}{2(M_1 + M_2)}} \quad (2.40)$$

Dieser ist linear zum Gleichgewichtsabstand. Das entspricht der Dispersionrelation einer akustischen Welle. Zudem erhalten wir als weitere Lösung den optischen Zweig:

$$\Omega_+ \approx \sqrt{2C \cdot \left(\frac{1}{M_1} + \frac{1}{M_2}\right)} \quad (2.41)$$

Wenn wir nun festlegen, dass $M_2 > M_1$ ist, so erhalten wir für $K = \pm\pi/x$, das dem Rand der ersten Brillouinzone im Festkörper entspricht:

$$\Omega_- = \sqrt{2C/M - 2}, \quad \Omega_+ = \sqrt{2C/M_1} \quad (2.42)$$

Des Weiteren ergibt sich aus dem Amplitudenverhältnis A/B aus Formel (2.38) für den akustischen Zweig:

$$A/B = 1 \quad (2.43)$$

Für den optischen Zweig:

$$A/B = -M_2/M_1 \quad (2.44)$$

Jetzt können wir erkennen, dass für die akustischen Zweige die Atome A und B in Phase schwingen und für die optischen Zweige gegenphasig. Deshalb kann bei den optischen Phononen eine Änderung des Dipolmomentes auftreten. In diesem Fall können sie direkt durch elektromagnetische Strahlung angeregt werden. Wenn wir das Model der linearen Kette auf ein Kristallgitter erweitern, so können die Atome nicht nur in einer Richtung x schwingen, sondern in alle 3 Raumrichtungen (\vec{a} , \vec{b} , \vec{c}). Dadurch kommen noch zwei transversale Moden, zu der longitudinalen der Kette, hinzu. In Abb. (2.9) ist die Dispersionsrelation $\Omega(k)$ und das Amplitudenverhältnis dargestellt.

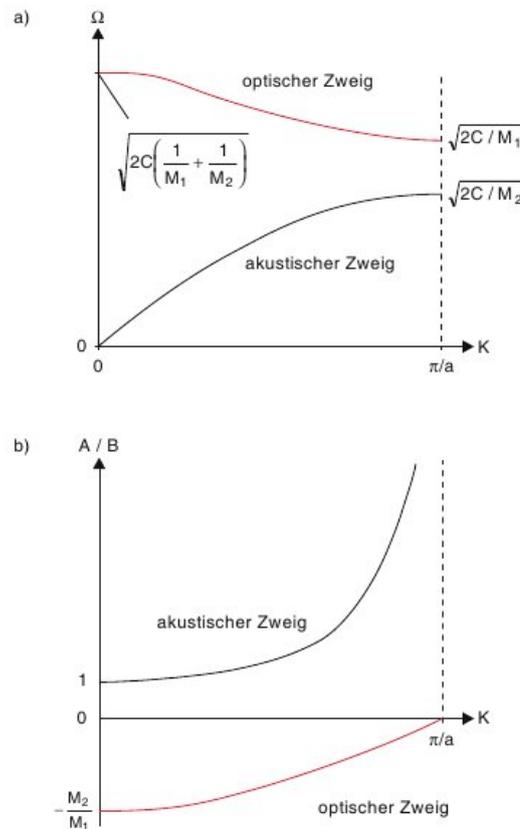


Abbildung 2.9: (a) Dispersionsrelation, (b) Amplitudenverhältnis der Phononen Zweige [a2]

Als Beispiel wird in Abb. (2.10) eine gemessene Dispersionsrelation von Silizium gezeigt, da es im Gegensatz zu Nickel hier auch optische Phononenzweige gibt. Der Nullpunkt der Brillouinzone wird mit Γ bezeichnet, K , X und L sind Punkte hoher Symmetrie auf den Fermiflächen der ersten Brillouinzone. Wir sehen, dass die Frequenzen der Phononen in Silizium im Bereich von $1 - 16 \cdot 10^{12} \frac{1}{s}$ liegen, was einer Schwingungsdauer von Pikosekunden entspricht.

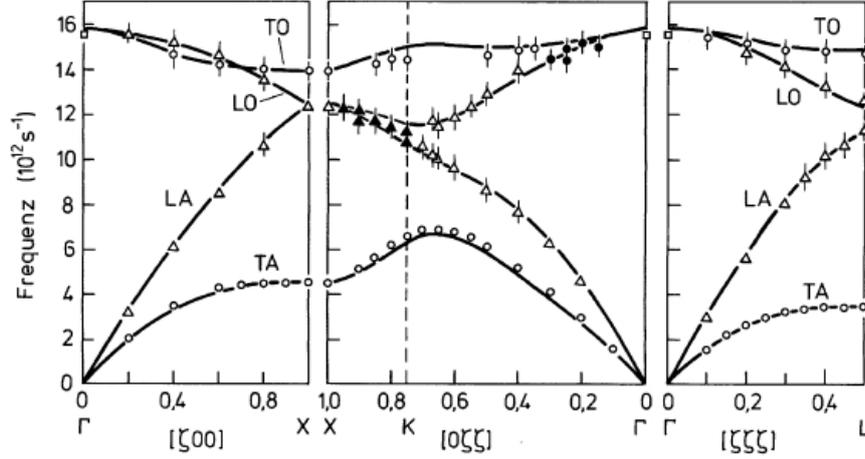


Abbildung 2.10: Dispersionsrelation für Silizium. Die Abzisse ist in vielfachen des reduzierten Wellenvektors unterteilt $\zeta = \frac{K \cdot a}{2\pi}$. [a12]

2.2.2 Debye-Waller-Faktor

Die für diese Arbeit interessante Frage ist nun, wie wirken sich Schwingungen des Gitters auf die Beugung aus. In Abschnitt 2.1 haben wir uns ausführlich mit der Beugung an einem starren Gitter beschäftigt. Die Position der Atome in der Einheitszelle ist über den Strukturfaktor (2.32) mit der Intensität der Beugungsmaxima verknüpft.

$$\begin{aligned}
 I \propto |SF|^2 &= \left| \sum_j f_j \cdot e^{i2\pi \cdot (u_j \cdot h + v_j \cdot k + w_j \cdot l)} \right|^2 = \\
 &= \left| \sum_j f_j \cdot e^{i\Delta\vec{k} \cdot \vec{r}} \right|^2
 \end{aligned}
 \tag{2.45}$$

Bei Raumtemperatur sind in einer Probe immer einige Gitterschwingungen angeregt, wodurch wir den Ortsvektor \vec{r} um eine zeitabhängige Komponente erweitern müssen $\vec{r}(t) = \vec{r}_0 + \Delta\vec{r}(t) = \vec{r}_0 + \vec{u}(t)$. Eine zeitabhängige Positionsänderung $\Delta\vec{r}(t)$ der Atome fassen wir hier als eine Auslenkung aus ihrer Ruhelage $\vec{u}(t)$, als Resultat einer Schwingung, auf. In den durchgeführten Experimenten befand die Probe sich zu Beginn der Messung auf Raumtemperatur und wurde anschließend mit einem kurzem Laserpuls angeregt, dass zu einer Aufheizung der Probe führt. Darum können wir nur eine Änderung der Auslenkung $\Delta\vec{u}(t) = \vec{u}_a - \vec{u}_0$

von der grundsätzlich vorhandenen Auslenkung \vec{u}_0 in der Probe beobachten. So ergibt sich, dass durch die Bewegung der Atome eine zusätzliche Phasendifferenz an den gebeugten Wellen entsteht. Um die Rechnung zu vereinfachen nehmen wir an, es handele sich um einen kubisch primitiven Kristall. Dann erhalten wir im zeitlichen Mittel für die Amplitude $\langle A \rangle$ des Strukturfaktors.

$$\langle A \rangle = A_0 \cdot e^{-i\Delta\vec{k} \cdot \vec{r}_0} \cdot \langle e^{-i\Delta\vec{k} \cdot \Delta\vec{u}} \rangle \quad (2.46)$$

Das zeitliche Mittel der Exponentialfunktion können wir nun in eine Reihe entwickeln:

$$\langle e^{-i\Delta\vec{k} \cdot \Delta\vec{u}} \rangle = 1 - i \cdot \langle \Delta\vec{k} \cdot \Delta\vec{u} \rangle - \frac{1}{2} \langle (\Delta\vec{k} \cdot \Delta\vec{u})^2 \rangle + \dots \quad (2.47)$$

Der lineare Term spiegelt hier den Einfluss der Phononen im Kristall wieder. Er führt zu einer Verschiebung der Beugungsmaxima. Aufgrund der großen Frequenz der Phononen kommt es zu einer Verbreiterung der Intensitätsverteilung. Dies verdeutlichen wir uns auf folgende Weise. Machen wir eine Reihe von Schnappschüssen vom Gitter mit einem zeitliche Abstand der Schwingungsdauer der Angeregten Phononen, so sind die Abstände der Atome zu jedem Schnappschuss dieselben. Was bedeutet, dass die Braggbedingung zu jedem Zeitpunkt scharf erfüllt ist. Daraus folgt, dass die gesamte Intensität in einem Beugungsmaxima sich nicht ändert.

Bei thermischen Gitterschwingungen, die nicht in Phase zueinander sind, gilt $\langle \Delta\vec{k} \cdot \Delta\vec{u} \rangle = 0$. Zu jedem Zeitpunkt ist die Braggbedingung gestört, da sich die Gitterkonstante willkürlich von einem Atom zum nächsten ändert. Daraus ergibt sich, dass der quadratische Term dominiert. Für diesen gilt, da die Auslenkung in alle drei Raumrichtungen gleich wahrscheinlich ist:

$$\langle (\Delta\vec{k} \cdot \Delta\vec{u})^2 \rangle = \Delta k^2 \cdot \langle \Delta u^2 \rangle \langle \cos^2 \Theta \rangle = \frac{1}{3} \Delta k^2 \cdot \langle \Delta u^2 \rangle \quad (2.48)$$

Des Weiteren gilt für die Exponentialfunktion.

$$e^{-\frac{1}{6} \Delta k^2 \cdot \langle \Delta u^2 \rangle} \approx 1 - \frac{1}{6} \Delta k^2 \cdot \langle \Delta u^2 \rangle \quad (2.49)$$

Setzen wir das Ergebnis von (2.48) und (2.47) in Formel (2.49) ein, so erhalten wir:

$$I_t = I_0 \cdot e^{-\frac{1}{3} \bar{G}^2 \cdot \langle \Delta u^2 \rangle} \quad (2.50)$$

Daraus ergibt sich eine Abnahme der Intensität I_t der Beugungsmaxima, wenn die Temperatur erhöht wird. Dies wird als der Debye-Waller-Effekt bezeichnet.

Nun bleibt zu klären, wie sich eine Temperaturänderung auf den Bewegungszustand der Atome im Kristallgitter auswirkt. Dafür ziehen wir die Debye'sche Approximation der spezifischen Wärme hinzu. In dieser Approximation wird angenommen, dass die Zustandsdichte der Phononen durch die stationären Lösungen der Gitterschwingungen in einem Kristall gegeben ist. Dabei wird eine lineare Dispersionsrelation für die Schwingungen vorausgesetzt. Anschließend

wird über alle möglichen Schwingungsmoden integriert, bis zu der materialspezifischen Debyeschen Grenzfrequenz.

$$\Omega_D = \langle v_s \rangle \cdot \sqrt[3]{\frac{6\pi^2 \cdot N}{V}} \quad (2.51)$$

In Formel (2.51) ist $\langle v_s \rangle = \frac{\Omega}{K}$ die Schallgeschwindigkeit, N die Anzahl der Schwingungsmoden und V das Volumen des Kristalls. Über die Debyesche Grenzfrequenz lässt sich dann die Debye Temperatur Θ_D für einen Kristall berechnen.

$$\Theta_D = \frac{\hbar \cdot \Omega_D}{k_B} \quad (2.52)$$

k_B ist die Boltzmann Konstante und \hbar ist die reduzierte Plancksche Konstante und wir erhalten die Zustandsdichte $D(\Omega)$:

$$D(\Omega) = \frac{9N \cdot \Omega}{\Omega_D^3} \quad (2.53)$$

In diesem Model ergibt sich für die mittlere quadratische Auslenkung $\langle u^2 \rangle$ der Atome mit der Atommasse m_{at} :

$$\langle \Delta u^2 \rangle = \frac{9\hbar^2}{k_B \cdot m_{at} \cdot \Theta_D} \left(\frac{T_l}{\Theta_D} \right)^2 \cdot \left(\int_0^{\Theta_D/T_l} \frac{x}{e^x - 1} dx + \frac{1}{4} \right) \quad (2.54)$$

Die Debye Funktion (2.54)

$$\Phi\left(\frac{\Theta_D}{T_l}\right) = \frac{T_l}{\Theta_D} \int_0^{\Theta_D/T_l} \frac{x}{e^x - 1} dx \quad (2.55)$$

lässt sich folgendermaßen Nähern [8]:

$$\Phi\left(\frac{\Theta_D}{T_l}\right) = \begin{cases} 1.624 \frac{T_l}{\Theta_D} + \frac{\Theta_D}{4T_l} & , \frac{\Theta_D}{T_l} > 4.5 \\ 1 - \frac{\Theta_D}{4T_l} + \left(\frac{\Theta_D}{6T_l}\right)^2 - \frac{1}{3600} \left(\frac{\Theta_D}{T_l}\right)^4 & , \frac{\Theta_D}{T_l} < 4.5 \end{cases} \quad (2.56)$$

Es lässt sich nun für nicht allzu kleine Temperaturen ($T_l \approx \Theta_D$) eine Näherung für die Schwingungsänderung $\langle \Delta u^2 \rangle$ machen aus der sich folgendes ergibt:

$$\langle \Delta u^2 \rangle \approx \frac{3\hbar^2}{k_B \cdot m_{at} \Theta_D^2} \Delta T_l \quad (2.57)$$

Setzen wir nun Formel (2.57) in Formel (2.50) ein und nutzen $|\vec{G}| = \frac{2\pi}{d_{hkl}}$, so erhalten wir den Debye Waller Faktor DWF :

$$DWF = \frac{I(\Delta T_l)}{I_0} = \exp\left(-\frac{\hbar^2}{k_B \cdot m_{at} \cdot \Theta_D^2} \frac{\Delta T_l}{d_{hkl}^2}\right) \quad (2.58)$$

Der Debye Waller Faktor gibt also die Abnahme der Intensität $I(\Delta T_l)$ der Beugungsmaxima bei erwärmen eines Kristalls gegenüber der Intensität I_0 im Ausgangszustand an. Dieser Effekt nimmt mit größer werdenden d_{hkl} zu. Durch die inkohärente thermische Schwingung der Atome, ändert sich weder die Position der Beugungsmaxima, noch deren Breite. Die Verluste an Intensität gehen in den Untergrund des Messsignals über.

2.2.3 Erzeugung kurzer Laserpulse

Die Änderungen im Kristallgitter laufen im Bereich von Pikosekunden ab. Deshalb benötigen wir eine Möglichkeit diese schnellen Prozesse, nach der Femtosekunden Laseranregung, messen zu können. Elektrische und mechanische Schaltungen sind dafür viel zu langsam. Ein geeignetes Instrument, um diese Zeitauflösung zu erreichen, ist der Laser. Mit diesen können Lichtpulse erzeugt werden die im Subpikosekundenbereich liegen. Im folgendem werden wir einige Methoden kennenlernen, mit denen man kurze Laserpulse erzeugen kann.

Zu den wichtigsten Komponenten eines Laser gehören:

- Im aktiven Medium findet die stimulierte Emission statt.
- Die Energiepumpe führt dem aktiven Medium Energie zu und erzeugt in diesem eine Besetzungsinversion.
- Im Resonator bauen sich stehende Wellen, des vom aktiven Mediums emittiertem Lichtes, auf. Dadurch wird die Laserleistung auf „wenige“ Moden konzentriert, so dass die induzierte Emission wahrscheinlicher als die spontane wird.

Bei einem Dauerstrichlaser wird das aktive Medium kontinuierlich gepumpt bis die Laserschwelle überschritten wird und ein Gleichgewicht, zwischen der Erzeugung der Besetzungsinversion $\Delta N(t)$ und der stimulierten Emission des Laserlichtes ($h\nu$) entsteht. Bei einem gepulsten Laser werden zeitabhängig die Verluste $\gamma(t)$ im Resonator gesteuert, so dass die Besetzungsinversion nicht durch die stimulierte Emission abgebaut wird. Werden zu einem bestimmten Zeitpunkt T_s die Verluste spontan reduziert, damit die Laserschwelle überschritten wird, so baut sich die Besetzungsinversion lawinenartig ab. So erhält man kurze und intensive Laserpulse. Damit die Besetzungsinversion sich aber nicht durch spontane Emission abbaut, darf das aktive Medium nicht zu lange gepumpt werden, so dass eine Synchronisation zwischen der Energiezufuhr und den Verlusten nötig ist. Die zeitliche Variation der Verluste werden als Resonatorgüte Q_k für die k -te Resonatormode bezeichnet. Daher kommt der Name Güteschaltung für diese Technik.

$$Q_k = \omega \cdot \frac{W_k}{dW_k/dt} = \frac{\omega}{\gamma_k} \cdot T_R \quad (2.59)$$

Die Resonatorgüte entspricht dem Verhältnis der in der k -ten Mode gespeicherten Energie W_k zum Energieverlust pro Schwingungsperiode der Resonatoreigenfrequenz ω . Oder anders Formuliert, die Resonatorgüte ist proportional zu den gesamten Verlusten γ_k pro Umlaufzeit $T_R = 2d/c$ der Lichtwelle im Resonator der Länge d .

Eine Möglichkeit diese Güteschaltung zu realisieren, ist eine Pockelszelle und einen Polarisationsstrahlteiler in den Resonator einzubringen. Geben wir einen kurzen Spannungspuls auf eine Pockelszelle, so wird der Kristall in der Pockelszelle doppelbrechend und dreht die Polarisationsrichtung des Laserlichtes. In

dieser Zeit kann das Licht durch den Strahlteiler hindurch und eine stehende Welle kann sich im Resonator aufbauen. Dadurch lassen sich Laserpulse mit einer Pulsdauer von wenigen Nanosekunden und einer Ausgangsleistung von $10^5 - 10^9 \text{ W}$ [1] erzeugen.

Eine weitere Technik um kurze Pulse zu erzeugen ist die Modenkopplung. Hier werden die Phasen einiger einzelner Moden im Laser durch einen optischen Modulator miteinander gekoppelt. Wodurch diese beim Durchlauf durch das aktive Medium verstärkt werden und sich, aufgrund der festen Phasenbeziehung zueinander, überlagern. Dadurch ergibt sich eine Welle, die in periodischen Abständen, maximale Intensität besitzt und sich ansonsten durch destruktive Interferenz auslöscht. Für die Pulsdauer $\Delta\tau$ einer solchen elektromagnetischen Welle mit der Frequenzbreite $\Delta\nu$ gilt:

$$\Delta\tau = \frac{1}{\Delta\nu} \quad (2.60)$$

Mit der aktiven Modenkopplung, wie sie oben beschrieben ist, lassen sich Pulsdauern von 10^{-12} s [1] erreichen. Da wir für unsere Experimente noch kürzere Pulse benötigen, wenden wir eine weitere Technik an, um die Pulsdauer zu verkürzen. Dieses Verfahren wird Kerr-Linsen-Modenkopplung genannt und ist eine Form der passiven Modenkopplung. Hier wird der Effekt ausgenutzt, dass der Brechungsindex bei hohen Intensitäten von der Intensität der Laserstrahlung abhängt. Dieser besitzt eine gewisse Ähnlichkeit zum Kerr-Effekt, bei dem der Brechungsindex bestimmter Stoffe von einem äußeren elektrischen Feld verändert werden kann. Für einen Laserstrahl mit einem annähernd gaußförmigen Strahlprofil wirkt die Änderung des Brechungsindexes wie eine Linse, deren Fokus von der Intensität des Lasers abhängt. In den Fokus innerhalb des Resonators wird nun eine Blende gestellt, die nur den intensivsten Teil der Laserstrahlung durchlässt. Die Flanken werden abgeschnitten und dadurch verkürzt sich die Pulsdauer von selbst bei jedem Resonatordurchlauf. Dieser Effekt wird auch Selbstfokussierung genannt. Im Idealfall sind dadurch Impulsdauern von einigen Femtosekunden möglich.

2.2.4 Erzeugung kurzer Elektronenpulse

Da wir jetzt wissen, wie wir kurze Laserpulse erzeugen. Stellt sich die Frage, wie wir kurze Elektronenpulse erzeugen?

Bei einer Elektronenquelle zu Erzeugung kurzer Pulse handelt es sich im Prinzip um nicht anderes als einen Plattenkondensator. Die Kathode besteht aus einem für Laserlicht transparentem Material und ist auf der zur Anode gelegenen Seite mit einem Metallfilm überzogen. Trifft ein Laserpuls auf diesen Metallfilm, so werden durch den Photoeffekt aus diesem Elektronen herausgelöst. Diese Elektronen werden in einem elektrischem Feld zur Anode hin beschleunigt und treten dann durch ein kleines Loch in der Anode durch diese hindurch. Dies ist in Abb. (2.11) dargestellt.

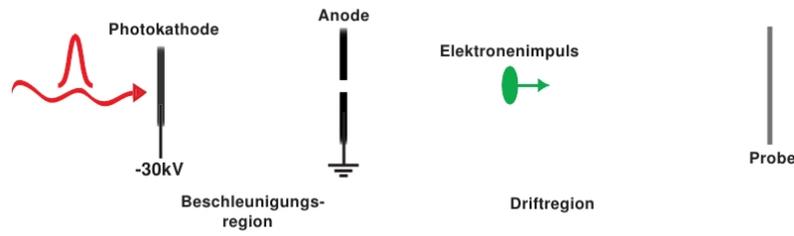


Abbildung 2.11: Schematische Funktionsweise einer gepulsten Elektronenquelle [a11]

Bei dem Photoeffekt treffen Photonen mit der Energie $E_{ph} = h \cdot \nu$ auf eine Metallschicht. Ist die Energie E_{ph} größer als die Austrittsarbeit Φ der Elektronen in der Metallschicht, so werden diese aus ihrem Material herausgelöst und besitzen eine mittlere kinetische Energie $E_0 = E_{ph} - \Phi$. Zum Zeitpunkt der Erzeugung des Elektronenpulses hat dieser eine ähnliche zeitliche und räumliche Ausdehnung wie der Laserpuls, welcher die Elektronen über das Vakuumniveau anhebt. Abhängig von der Wahl der Metallschicht, aus der die Elektronen herausgelöst werden, und der Wellenlänge des Lichtes kommt es beim Erzeugungsvorgang zu einer energetischen Verbreiterung ΔE des Elektronenpulses. Diese wird in Abb. (2.12) gezeigt.

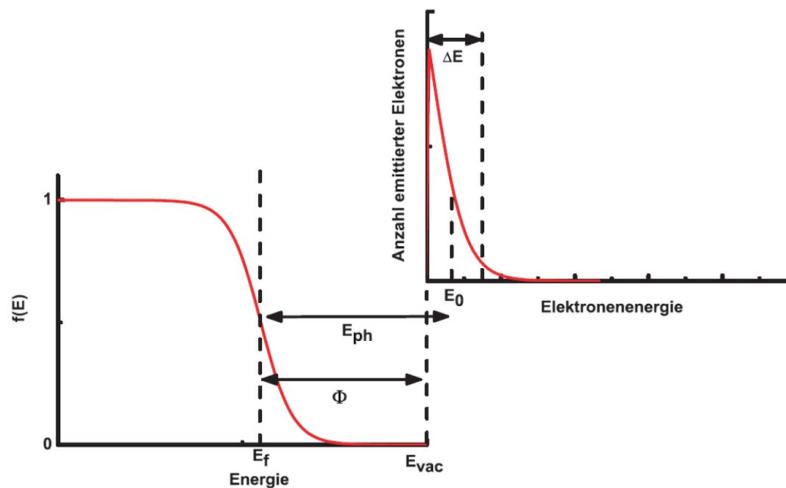


Abbildung 2.12: Energiediagramm für die Photoemission [a11]

Diese anfängliche energetische Verbreiterung führt zu einer Geschwindigkeitsverteilung $\Delta v_{e,0}$ der Elektronen, mit der Masse m_e und der Ladung e .

$$\Delta v_{e,0} = \sqrt{\frac{2e}{m_e}} \left(\sqrt{E_0 + \frac{\Delta E}{2}} - \sqrt{E_0 - \frac{\Delta E}{2}} \right) \quad (2.61)$$

Nachdem die Elektronen die Beschleunigungsregion mit der Länge d durchlaufen haben, hat sich deren Pulsdauer Δt_{acc} , wie folgt erhöht.

$$\Delta t_{acc} = \frac{l}{\bar{v}} = \frac{\Delta v_{e,0} \cdot t}{\bar{v}} = \Delta v_{e,0} \frac{2d}{\bar{v}^2} \quad (2.62)$$

Hier ist $l = \Delta v_{0,e} \cdot t$ die räumliche Länge des Elektronenpulses an der Anode nach der Flugzeit t . Die Flugzeit ist gegeben durch $t = \frac{2d}{\bar{v}}$. $\bar{v} = \sqrt{\frac{2e \cdot U}{m_e}}$ ist die Geschwindigkeit eines Elektrons nach Durchqueren einer Potentialdifferenz U , solange die Geschwindigkeiten der Elektronen deutlich kleiner als die Lichtgeschwindigkeit ist. Setzen wir nun Gleichung (2.62) in (2.61) ein, ergibt sich mit der Feldstärke in der Beschleunigungsregion $E_B = \frac{U}{d}$:

$$\Delta t_{acc} = \sqrt{\frac{2m_e}{e}} \frac{(\sqrt{E_0 + \frac{\Delta E}{2}} - \sqrt{E_0 - \frac{\Delta E}{2}})}{E_B} \quad (2.63)$$

Wenn wir jetzt annehmen, dass für die energetische Breite der Geschwindigkeitsverteilung $\Delta E_0 = 2E_0$ gilt, dann folgt:

$$\Delta t_{acc} = \sqrt{\frac{2m_e \Delta E}{e}} \frac{1}{E_B} \quad (2.64)$$

Hierbei wird nicht berücksichtigt, dass die Elektronen sich gegenseitig aufgrund der Coulombwechselwirkung abstoßen. Die so verursachte Verbreiterung der Elektronenpulse kann mit dem Mean Field Model berechnet werden. Dieses wird in der Arbeit von Siwick [9] ausführlich erklärt, und liefert als Ergebnis eine homogene Differentialgleichung 2-ter Ordnung, die sich numerisch lösen lässt.

$$\frac{d^2 l}{dt^2} = \frac{N e^2}{m_e \epsilon_0 \pi r^2} \left(1 - \frac{l}{\sqrt{l^2 + 4r^2}}\right) \quad (2.65)$$

Im Mean Field Model nimmt man an, dass eine feste Anzahl N an Elektronen gleichmäßig in einem Volumen verteilt sind, welches von einer Kreisscheibe umschlossen werden kann. Die Kreisscheibe hat anfänglich den Radius r und dehnt sich mit der Zeit in Flugrichtung (z -Achse) weiter aus, wodurch ihre Länge l zunimmt. Der Grund dafür ist, dass die Elektronen an der Vorderseite des Pulses von der Coulombwechselwirkung beschleunigt werden und am Ende abgebremst.

3 Der Aufbau des Experiments

Auf den folgenden Seiten widmen wir uns der Messapparatur für die zeitaufgelösten Elektronenbeugungsexperimente und der Präparation der Nickelproben. Dabei lernen wir die Komponenten des Experiments kennen und die nötigen Prozeduren und Vorbereitungen für eine Messung. Zudem werden einige Möglichkeiten, Schwierigkeiten und Grenzen bei diesen Experimenten angesprochen und Methoden zur Überwindung dieser diskutiert. Denn auch wenn wir jetzt wissen, wie die Theorie zur Elektronenbeugung aussieht, so ist die Umsetzung der Theorie im Experiment nicht immer ganz offensichtlich.

3.1 Das Lasersystem

Für die Experimente steht ein „Chirped Pulse Amplifier“ Lasersystem zu Verfügung, welches das Herz der gesamten Anlage darstellt. In Abb. (3.1) sind die einzelnen Elemente dargestellt. Der Titan Saphir Oszillator wird von einem dauerstrich $Nd : YVO_4$ Festkörperlaser mit einer Zentralwellenlänge von 532 nm gepumpt. So wird der Oszillator mit einer Leistung von $3,6 \text{ W}$ gespeist.

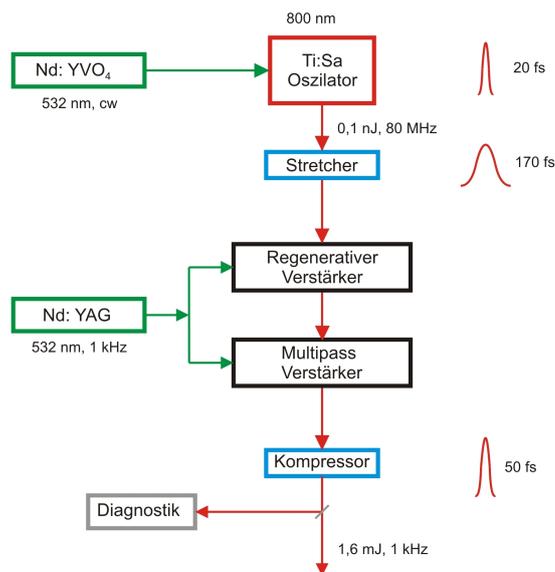


Abbildung 3.1: Schema von den Komponenten des Lasersystems

Der Oszillator emittiert gepulstes Laserlicht auf einer Zentralwellenlänge von 800 nm. Durch die in Abschnitt 2.2.3 erklärte Kerr-Linsen-Modenkopplung wird hier bei einer Repetitionsrate von 80 MHz eine Pulsdauer von 20 fs erreicht. Anschließend werden die Pulse mit einer Energie von 0,1 nJ in einem Stretcher auf 170 ps gedehnt, damit sie die optischen Elemente bei der weiteren Verstärkung nicht zerstören. In 2 Verstärkerstufen, die mit einem zusätzlichen Nd : YAG Laser gepumpt werden, wird die Leistung um das 10^7 fache erhöht. Dadurch wird die Repetitionsrate auf 1 kHz reduziert. Jetzt werden die Pulse in einem Gitterkompressor auf 50 fs komprimiert und mit einer Ausgangsleistung von 1,6 mJ über Strahlteiler zu den verschiedenen Experimentierstationen geschickt. An verschiedenen Stellen werden die wichtigsten Laserdaten aufgenommen. Diese sind die Ausgangsleistung des Oszillators und des fundamentalen, verstärkten Ausgangsstrahles, sowie die Strahlposition, das Strahlprofil und die Pulsdauer am Ausgang des Lasersystems. Zusätzlich werden die Raumtemperatur an verschiedenen Stellen des Labors und die Luftfeuchtigkeit gemessen und gespeichert. Für die meisten Elektronenbeugungsexperimente die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführt wurden, standen 0,5 mJ von dem Lasersystem zur Verfügung.

3.2 Pump-Probe-Setup

Bis jetzt wurde gesagt, dass man mit Hilfe von Lasern kurze Pulse zur zeitaufgelösten Untersuchung atomarer Dynamik erzeugen kann. In diesem Abschnitt erfahren wir, wie dies im Experiment umgesetzt wird.

Wollen wir einen schnellen Vorgang beobachten, so gibt es grundsätzlich zwei Methoden. Bei der ersten werden der Detektor und das zu untersuchende Objekt kontinuierlich beleuchtet und ein Blende steuert die Belichtungszeit. So lässt sich eine Abfolge von Bildern aufnehmen, deren zeitliche Auflösung durch die Schließzeiten der Blende begrenzt ist. Mit dieser Methode erreichen heutzutage Hochgeschwindigkeitskameras eine Zeitauflösung von einer Microsecunde [10]. Die andere Möglichkeit besteht in einer Variante der stroboskopischen Aufnahme. Hierbei befinden sich das Objekt und der Detektor im Dunkeln und werden nur in kurzen periodischen Abständen beleuchtet. Hier hängt die erreichbare Zeitauflösung von der Dauer des Lichtpulses ab, also bis zu einigen Femtosekunden. Diese Technik wird in der zeitaufgelösten Elektronenbeugung verwendet, nur dass wir hier kein Licht verwenden, um die Probe zu beobachten, sondern Elektronen.

Um mit der Elektronenbeugung einen schnellen Prozess beobachten zu können, müssen wir diesen auch hervorrufen können. Dafür benutzen wir ebenfalls einen Laser mit kurzen Pulsen, der die Probe in einem kurzen Zeitintervall anregt. Anschließend zeichnen wir die dadurch hervorgerufenen Änderungen mit den kurzen Elektronenpulsen auf. In Abb. (3.2) ist das Schema eines solchen Pump-Probe (in unserem Fall: Laseranregung-Elektronenabfrage) Setups dargestellt.

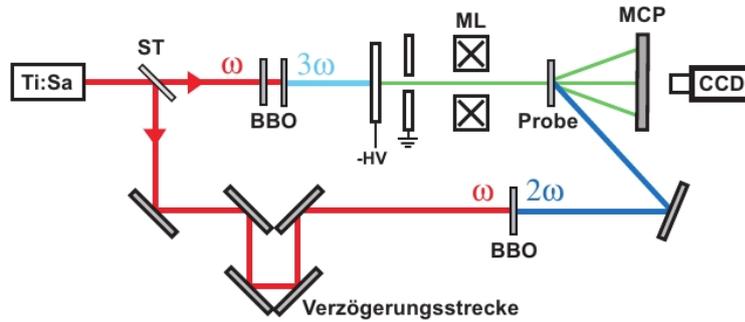


Abbildung 3.2: Pump-Probe Setup [a11]

Eine Schwierigkeit bei solchen Experimenten ist die Synchronisation zwischen dem Pump- und dem Probepuls, da die zu beobachtenden Prozesse innerhalb von einigen Pikosekunden ablaufen. Die Synchronisation kann, unter erheblichen Aufwand, mit zwei separaten Lasersystemen erreicht werden. Wir verwenden hier nur ein Lasersystem und über einen Strahlteiler (ST) spalten wir die einzelnen Pulse in Pump- und Probepulse auf. Dabei geht 70% der Leistung in den Pumpuls und 30% in den Probepuls. Von nun an müssen wir nur noch darauf achten, dass die optischen Wege für beide Pulse gleich lang sind. Wir behalten im Kopf, dass die Elektronen langsamer sind als das Licht, und passen den optischen Weg entsprechend an. Dann erreichen wir automatisch die Synchronisation zwischen den Elektronen- und Laserpulsen. In den Pumpstrahlengang wird eine Verzögerungsstrecke eingebaut. Diese besteht aus einem Linearverschieber und einem darauf montiertem Retroreflektor. Über diese Verzögerungsstrecke kann der optische Weg des Pumpuls verändert werden. Eine Änderung von einem Mikrometer entspricht einer Zeitdifferenz der beiden Pulse von 33,3 Femtosekunden. Das bedeutet, dass die zeitliche Auflösung unserer Experimente tatsächlich durch die Länge unserer Elektronenpulse begrenzt ist. Der nicht-lineare optische Kristall zur Frequenzverdoppelung (BBO: Beta Bariumborat) kann optional in den Strahlengang eingebaut werden, um die Probe wahlweise mit einer Wellenlänge ($\lambda = \frac{c}{2 \cdot \pi \cdot \omega}$) von 400 anstatt 800 nm anzuregen.

Im Probestrahlengang befinden sich zwei BBOs zur Erzeugung der dritten Harmonischen mit einer Wellenlänge von 266 nm. Diese koppeln wir in die Vakuumkammer ein, in der sich die Elektronenquelle befindet. Hier werden die Elektronenpulse erzeugt, mit einer Magnetlinse (ML) fokussiert und auf die Probe geschossen. Das Beugungsbild wird mittels eines Vielkanalplattendetektors (Multichannelplate: MCP) verstärkt. Ein Phosphorschirm hinter dem MCP wandelt die Elektronen durch Lumineszenz in ein von einer CCD Kamera rezeptibles Bild um. Nachdem wir ein Beugungsbild aufgenommen haben, verringern wir den optischen Weg für den Pumpuls und machen eine weitere Aufnahme von der Probe. Dieses Mal ist mehr Zeit zwischen Anregung und Abfrage der Probe vergangen, als bei der vorherigen Aufnahme. Dieser Vorgang wird bis zu 20 mal wiederholt, so dass wir anschließend einen kurzen Film von den Vorgängen in der Probe erstellt haben, welche durch die Anregung verursacht

wurden. Ein wichtiges Kriterium für diese Messungen ist, dass alle Vorgänge in der Probe reversibel ablaufen und die Probe bevor der nächste Probepuls eintrifft (10^{-3} s) in ihren ursprünglichen Zustand zurückgekehrt ist. Diese grobe Beschreibung der Pump-Probe-Technik wird im nächsten Abschnitt im Detail mit den einzelnen Komponenten beschrieben.

3.3 Der Strahlgang

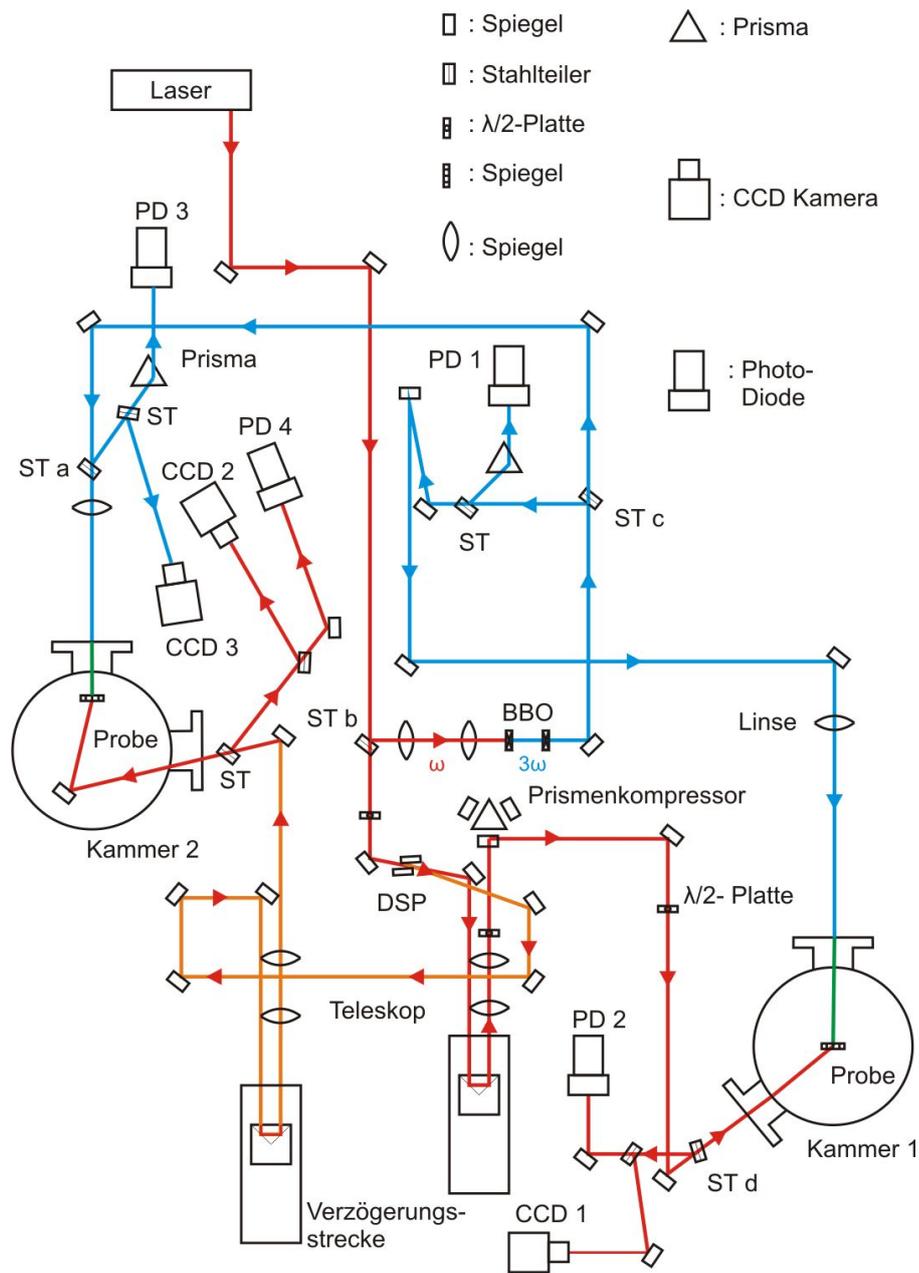


Abbildung 3.3: Detaillierter Strahlgang für die Elektronenbeugung

Im Rahmen dieser Arbeit wurden nicht nur Experimente an Nickel durchgeführt, sondern auch der Strahlengang für eine neue Elektronenbeugungskammer aufgebaut. In Abb. (3.3) ist der Strahlengang mit den wichtigsten Elementen sowohl für die schon bestehende Kammer (Kammer 1), als auch für die neue Kammer (Kammer 2) dargestellt. Kammer 1 und deren Strahlengang auf der rechten Seite wurde im Rahmen von zwei Doktorarbeiten ([11], [12]) aufgebaut. Mit ihr wurden erfolgreich Experimente an dünnen Metallfilmen durchgeführt. In dieser Diplomarbeit und einer früheren [13] wurden Änderungen vorgenommen, um den Aufbau weiter zu optimieren.

Im Lasersystem befindet sich ein Kompressor vor dem optischen Tisch, auf dem die optischen Komponenten für die Elektronenbeugung aufgebaut sind. Dieser Kompressor wird zur Optimierung der Pulsdauer für die Erzeugung der dritten Harmonischen benötigt. Der Tisch misst 1,2 mal 2,4 Meter und ist von drei Seiten zugänglich, um den Strahlengang zu justieren. Hinter den ersten beiden Spiegeln, die zur Grundjustage des Strahlganges verwendet werden, befindet sich ein Strahlteiler (ST). Dieser teilt die Pulse vom Lasersystem, welche auch als die Fundamentale (800 nm) bezeichnet wird, in Pump- und Probestrahlgang auf. Das Intensitätsverhältnis ist hier 70 % in den Pump- und 30% in den Probestrahlgang.

Im Probestrahlgang hinter dem Strahlteiler befindet sich ein Teleskop, die Fokallänge der Linsen beträgt $F_1 = +300 \text{ mm}$ und $F_2 = -100 \text{ mm}$. Damit wird die Strahltaile auf den Durchmesser der folgenden beiden BBOs reduziert, und so die Konversionseffizienz der Fundamentalen zur dritten Harmonischen (THG, 266 nm) optimiert. Im ersten BBO wird die zweite Harmonische der Fundamentalen erzeugt, und im zweiten BBO durch Summenfrequenzgenerierung die THG. Die Spiegel hinter den BBOs sind für die THG hoch reflektierend. Dadurch werden die Fundamentale und die zweite Harmonische von der THG getrennt. Der erste Strahlteiler (ST) hinter der THG Erzeugung trennt diese in zwei Wege für Kammer 1 und 2. Für beide Wege (1 und 2) wird die Intensität der THG mit jeweils einer Photodiode (PD) gemessen. Das Prisma sorgt dafür, dass die Reste der Fundamentalen und zweiten Harmonische aus der THG herausgefiltert werden, so dass nur die THG auf den Detektor trifft. Der Strahlweg 1 führt über einen kleinen Umweg, um die Laufzeit von Pump- und Probestrahl identisch zu halten, zu Kammer 1. Über eine *CaF* Linse mit einem Fokus von 400 mm wird die THG in die Kammer, in der sich die 30 kV Elektronenquelle der ersten Generation befindet, eingekoppelt, in welcher dann die Elektronenpulse generiert werden. Im zweiten Strahlengang befindet sich zusätzlich eine CCD Kamera, um die Position und das Strahlprofil der THG zu überwachen. Diese Kamera ist so aufgestellt, dass der Lichtlaufweg vom Strahlteiler (ST a) zur CCD genauso lang ist, wie der Weg vom Strahlteiler (ST a) zur Elektronenquelle in Kammer 2. Aus technischen Gründen befindet sich die Linse, mit der die THG auf die Elektronenquelle fokussiert wird hinter dem Strahlteiler. Dies ist ungünstig, denn so stimmt das Strahlprofil auf der CCD nicht mit dem in der Quelle überein. Dies sollte noch in einem weiteren Schritt optimiert werden.

Um die Probe mit unterschiedlichen Energiedichten anregen zu können befindet

sich im Pumpstrahlengang eine $\lambda/2$ -Platte, gefolgt von zwei Dünnschichtpolarisatoren (DSP). So können wir die Energiedichte von 0 bis $30 \frac{mJ}{cm^2}$ variieren. Zudem benutzen wir den Dünnschichtpolarisator um die Pumppulse zwischen den beiden Kammern aufzuteilen. Hinter dem DSP verlassen die Pulse für Kammer 1 diesen S-Polarisiert, zur Kammer 2 hingegen P-Polarisiert. Da die Probe in der Kammer senkrecht zur Oberfläche des optischen Tisches fixiert wird, überträgt sich diese Polarisationsrichtung auf die Probe. Hierbei sollte man beachten, dass die Polarisationsrichtung sich beim Durchgang des Lichtes durch optische Medien noch verändern kann.

In beiden Strahlwegen befindet sich hinter dem DSP je eine Verzögerungsstrecke. Diese bestehen aus einem motorisierten Verschiebetisch und einem darauf montiertem Retroreflektor. Für Kammer 2 wurde ein Modell mit einem Verfahrensweg von 500 mm verwendet, bei Kammer 1 nur 350 mm . Die Länge des Verschiebetisches gibt das maximale Zeitintervall von Pump- zu Probepuls vor, die uns im Experiment zur Verfügung steht. Damit wir dieses Zeitintervall voll nutzen können, müssen die Verzögerungsstrecken präzise ausgerichtet sein. Nur wenn der einfallende und reflektierte Puls und die Achse des Verschiebetisches genau parallel zueinander verlaufen, ist die Position der Anregung auf der Probe wohldefiniert. Ansonsten wandern die Pumppulse beim Durchfahren der Verzögerungsstrecke über die Probe und wir fragen mit dem Probepuls nicht einen kontinuierlich angeregten Ort auf der Probe ab. Dies ist aber eine entscheidende Voraussetzung, damit wir eine erfolgreiche Messung aufnehmen können. Aus diesem Grund wird in regelmäßigen Abständen mit einer CCD Kamera überprüft, wie stark sich die Position des Pumpulses beim Durchfahren der Verzögerungsstrecke ändert. Für Kammer 1 gilt, wenn bei einem Verfahrensweg von 60 mm sich die Position auf der CCD um nicht mehr als $70 \mu\text{m}$ ändern, kann mit den Messungen angefangen werden. Ist die Positionsänderung größer, so muss mit Hilfe der Spiegel vor der Verzögerungsstrecke der Strahl nachjustiert werden. Ist die Positionsänderung größer als $700 \mu\text{m}$, so muss der Verschiebetisch neu ausgerichtet werden. Dies sollte nur beim Aufbau eines neuen Strahlganges der Fall sein, oder nach größeren Umbauten eines bestehenden Strahlganges. Unter idealen Bedingungen ist in dieser Kammer eine Positionsänderung von 14 bis $21 \mu\text{m}$ auf 60 mm möglich, bei einer Halbwertsbreite (FWHM) von $700 \mu\text{m}$ der Pumppulse. Bei der zweiten Kammer beträgt die Positionsänderung unter optimalen Bedingungen $30 \mu\text{m}$ auf 200 mm Verfahrensweg.

Auf beiden Strahlwegen befindet sich ein Teleskop hinter der Verzögerungsstrecke. Hiermit wird der Durchmesser der Pumppulse halbiert, von $1,4 \text{ mm}$ auf $0,7 \text{ mm}$. Wenn in dieser Arbeit von Strahl- oder Pulsdurchmesser gesprochen wird, so ist damit die Halbwertsbreite (FWHM: Full Width at Half Maximum) gemeint. Dies ist auf keinem Fall mit der Pulsdauer zu verwechseln. Die Pulsdauer entspricht der räumliche Breite der Puls in Propagationsrichtung. Der Durchmesser (FWHM) gibt die Ausdehnung der Pulse senkrecht zur Ausbreitungsrichtung an. Je nach Justierung des Strahlganges, ist das Strahlprofil mal mehr oder weniger Rund, wie in Abb. (3.4) gezeigt.

Je nach Form des Profils wird es als Ellipse oder Rechteck genähert, um die

Fläche zu bestimmen, die von den Pulsen auf der Probe angeregt wird. Mit dem Teleskop kann die FWHM leicht variiert werden, um das Strahlprofil zu optimieren oder die eingestrahlte Energiedichte auf der Probe anzupassen. Davon wird aber nur Gebrauch gemacht, wenn die Möglichkeiten von $\lambda/2$ -Platte und Dünnschichtpolarisator ausgereizt sind.

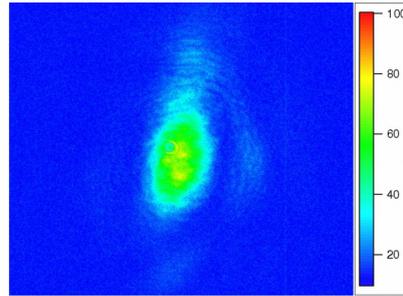


Abbildung 3.4: Falschfarbenbild der Intensitätsverteilung der Pumppulse (Strahlprofil)

Im Pumpstrahlgang von Kammer 1 befindet sich ein Prismenkompressor. Dieser dient dazu die zeitliche Ausdehnung der Pumppulse zu variieren. Auf diese Art ist es möglich die Probe alternativ mit einer Wellenlänge von 400 nm anstatt 800 nm anzuregen, indem wir einen BBO in den Pumpstrahlgang einzubauen, und zudem die Pulslänge möglichst klein zu halten. Dadurch wird die Konversionseffizienz und die Intensitätsschwankung der zweiten Harmonischen verbessert. Zusätzlich können wir über den Prismenkompressor die Pulsdauer der Fundamentalen auf der Probe einstellen. Da die Zeitauflösung unserer Messung von der Dauer der Elektronenpulse abhängt, welche um einen Faktor 20 größer ist als die Pulsdauer der Fundamentalen, ist dies aber nur von geringer Bedeutung. Vor und hinter dem Prismenkompressor befindet sich je eine Lambdahalbeplatte. Mit der Ersten werden die Pulse zur Oberfläche der Prismen P-polarisiert, um Reflexionsverluste zu minimieren. Mit der Zweiten kann die Polarisationsrichtung für die Messung frei eingestellt werden.

Hinter dem Einkoppelspiegel befindet sich bei beiden Kammern ein Strahlteiler, der etwas 1 Prozent der Leistung zur Diagnostik umleitet. Diese besteht in beiden Fällen aus einer CCD Kamera zur Überwachung des Strahlprofils und einer Photodiode zur Messung der Pulsenergie. In Kammer 1 treffen die Pumppulse von hinten auf die Probe unter einem Winkel von ungefähr 40 Grad. Bei Kammer 2 treffen die Pulse ebenfalls von hinten auf die Probe, aber unter einem Winkel von 10 Grad. So wird die Probe zum einen homogener angeregt, und zum anderen ist die Schrägstellung der Pulsfronten geringer. Die Größe des Einfallswinkels vergrößert die effektive Pulsdauer, was dem Zeitraum über den die Probe angeregt wird entspricht.

3.4 Der Aufbau der Elektronenquellen

Nachdem wir nun einen Überblick über den optischen Aufbau und den Strahlengang haben, kommen wir in diesem Abschnitt zu der wohl entscheidendsten Komponente eines Elektronenbeugungsexperimentes, die Elektronenquelle. Im Rahmen dieser Arbeit wurde nicht nur der Strahlengang für die neue Experimentierkammer aufgebaut, sondern auch eine neue Elektronenquelle entworfen und erste Tests vorgenommen. Zuerst werden wir die alte Quelle kennenlernen, die in der alten Kammer eingesetzt ist und dort zuverlässig arbeitet. Die beiden neuen Versionen der Elektronenquelle schauen wir uns in separaten Unterabschnitten an und diskutieren dort ihre Vor- und Nachteile.

Die Elektronenquelle können wir uns grob, wie bereits gesagt, als einen Plattenkondensator vorstellen. Die in der alten Kammer verwendete Kathode ist in Abb. (3.5) gezeigt. Diese besteht aus einem poliertem Edelstahlhalter, der auf der zur Anode hin gelegenen Seite ein Rogowski Profil aufweist. In der Mitte befindet sich ein Loch, durch das die dritte Harmonische eingekoppelt wird und auf ein Saphirplättchen trifft, das mit Leitsilber in eine Senkung der Halterung eingeklebt ist. Saphir ist für die dritte Harmonische (266 nm) transparent. Dieses Saphirplättchen ist in mehreren Lagen beschichtet. Beidseitig ist es mit Wolfram beschichtet, um den elektrischen Kontakt mit der Halterung herzustellen und ein homogenes Potential auf der gesamten Kathode aufzubauen. In der Mitte des Plättchens ist eine freie Stelle, damit das Laserlicht ungehindert passieren kann. Auf der zur Anode zugewandten Seite ist es zusätzlich deckend mit Silber beschichtet (40 nm). In dieser Metallschicht löst die dritte harmonische Photoelektronen heraus, aus denen die Elektronenpulse zum Untersuchen unserer Proben bestehen. Silber wird verwendet, weil seine Austrittsarbeit ($4,26\text{ eV}$; [5]) in der Nähe der Photonenenergie der dritten Harmonischen ($4,66\text{ eV}$) liegt. Die Kathode liegt auf einem negativem Potential von -30 kV . Sie wird von einem Isolator aus Macor gehalten, und wird so gegenüber der Kammer und anderen Komponenten elektrisch isoliert, welche auf Erdungspotential liegen. Mit diesen -30 kV werden die Elektronen zur Anode hin beschleunigt.

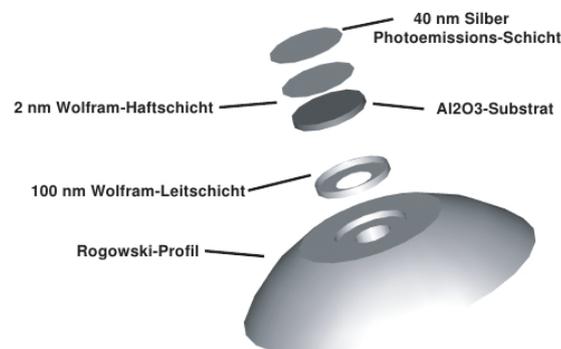


Abbildung 3.5: Schematischer Aufbau der Photokathode

Die Anode ist eine polierte Edelstahlplatte mit einem $100\ \mu\text{m}$ Loch in der Mitte, welches gegenüber der Kathode zentriert ist. Durch dieses Loch, auch als Pinhole bezeichnet, treten die Elektronen hindurch und gelangen zur Magnetlinse, von der sie auf die Probe fokussiert werden. Die Anode befindet sich in einem Abstand von $3\ \text{mm}$ zu Kathode, was der Durchschlagsfestigkeit des Vakuums bei $10^{-8}\ \text{mbar}$ entspricht. Wir gehen hier deshalb an die Grenze des machbaren, da wir so die zeitliche Verbreiterung der Pulse in der Beschleunigungsregion klein halten können. Die Magnetlinse ist an einer separaten Halterung in der Vakuumkammer angebracht, wodurch die Ausrichtung der Magnetlinse zu der Elektronenquelle nicht ganz optimal ist.

3.4.1 Dritte Generation

Bei der Elektronenquelle der dritten Generation handelt es sich um eine modifizierte Version der Ersten. Der grundlegende Aufbau ist derselbe und ist in Abb. (3.6) dargestellt.

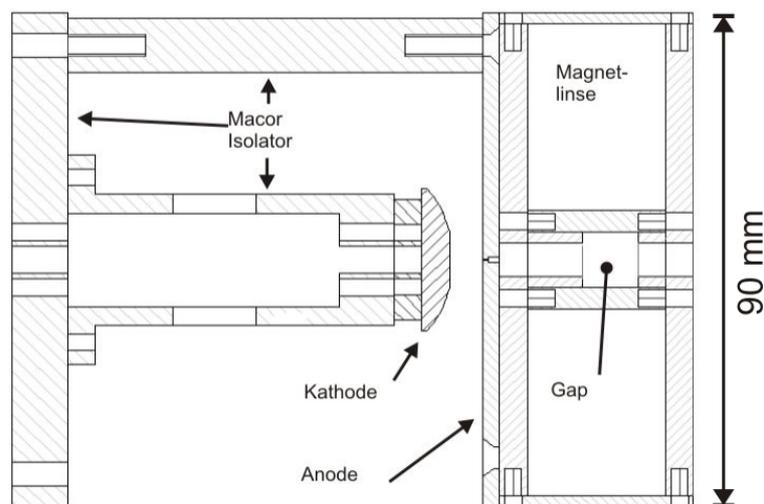


Abbildung 3.6: Elektronenquelle der dritten Generation, technische Zeichnung

Auch wenn das Prinzip das Gleiche ist, so gibt es doch einige wichtige Änderungen. Der Abstand zwischen Anode und Kathode ist größer als im Vorgängermodell, nämlich $6\ \text{mm}$. Dies soll uns ermöglichen größere Beschleunigungsspannungen anzulegen. Dementsprechend sind die Abmessungen der Macorisation angepasst. Die Kathode wurde durch eine monolytische Variante aus Quarz ersetzt. Dies bedeutet, dass der Kathodenkörper aus einem zusammenhängenden Stück gefertigt ist, so entstehen keine Rillen und Vorsprünge an Verbindungsstellen verschiedener Bauteile in der Beschleunigungsregion von der Elektronenquelle.

Quarz ist ebenfalls für die dritte Harmonische transparent. Diese Kathode ist mit Ausnahme von zwei Kreisflächen auf der Vorderseite und Rückseite mit Kupfer beschichte, um den elektrischen Kontakt mit einer polierten Edelstahlplatte, die als Halterung dient, herzustellen. Zur Anode hin ist die monolytische Kathode mit einer 10 nm dünnen Goldschicht überzogen, aus der die Photoelektronen herausgelöst werden. Die Austrittsarbeit von Gold ist größer als die von Silber, 5,1 eV zu 4,25 eV [5]. Diese liegt leicht oberhalb der Photonenenergie, dieser Wert ist jedoch stark von der Beschaffenheit der Oberfläche der Goldschicht abhängig. So erhoffen wir uns das Energieintervall, in dem die Elektronen aus der Goldschicht herausgelöst werden, zu verringern. In der neuen Version ist die Magnetlinse direkt an der Anode befestigt. Auf diesem Wege ist die Achse der Magnetlinse bereits durch die Fertigung parallel zur Bewegungsrichtung der Elektronen ausgerichtet, wodurch Abbildungsfehler minimiert werden. Gehalten wird die Elektronenquelle von einer, mit der Magnetlinse verbunden, Edelstahlhalterung, die auf dem Kammerboden festgeschraubt wird. Diese Methode gibt uns mehr Flexibilität in der Positionierung der Elektronenquelle in der Kammer und einen besseren thermischen Kontakt der Magnetlinse zur Kammer. Doch die Ausrichtung der gesamten Elektronenquelle zum \vec{k} -Vektor der dritten Harmonischen und zum Detektor ist nicht leicht zu optimieren, da dies per Hand gemacht werden muss ohne das Elektronensignal auf dem Detektor sehen zu können.

Eine spätere Modifikation dieses Modells bestand darin die Macor-Isolation an den Kontaktstellen zu den Metallflächen mit einer Graphitschicht zu überziehen, wie in Abb. (3.7) gezeigt. Liegt eine Hochspannung an einem Isolator, so wandern trotzdem Elektronen über dessen Oberfläche dem Potentialgefälle entlang. Diese Elektronen sammeln sich in Ritzen und Vertiefungen in dem Isolator und erzeugen dort so eine Überschussladung. Gerade in der Nähe von geerdeten Metallflächen, kann es so zu leichten lokalen Entladungen kommen. Hierdurch werden die verbleibenden Gasmoleküle ionisiert und es bildet sich ein leitender Kanal im Vakuum. Durch diesen können weitere Ladungsüberschläge an anderen Stellen der Elektronenquelle hervorrufen werden. Auf diesem Wege kann sich lawinenartig die Kathode entladen und bei genügend hohen Spannungen (ab 30 kV), kann die Elektronenquelle beschädigt werden. Diese Beschädigungen gehen von eingebraunten Spuren auf dem Isolator, bis hin zu Metallablagerung auf dem Isolator und Verfärbungen auf der Anode oder Kathode. In den ersten beiden Fällen ist der Isolator höchst wahrscheinlich irreparabel beschädigt, zumindest leidet dessen Spannungsfestigkeit permanent. Schäden an der Kathode sind ebenfalls irreparabel. In einem solchen Fall muss die Kathode ausgetauscht werden. Beschädigungen an der Anode können meistens durch Polieren behoben werden. Die Behandlung mit Graphit führte nicht zum erhofften Erfolg. Vor der Modifikation konnten 35 kV über einen längeren Zeitraum mit nur gelegentlichen Entladungen gehalten werden. Nachher nur noch 18 kV, wodurch wir diesen Weg nicht weiter verfolgt haben. Ein möglicher Grund für diese Verschlechterung kann darin liegen, dass die Graphitschicht nicht gleichmäßig genug aufgetragen wurde. Nach einigen Korrekturen konnten ohne Graphit wieder 30 kV gehalten werden, ohne dass nach einer kurzen Zeit ein messbarer und auch

auf dem Detektor sichtbarer Elektronenstrom floss. Gelegentliche Entladungen, im Mittel alle 15 Minuten, machten eine erfolgreiche Messung aber weiterhin unmöglich. Darum wurde die Elektronenquelle der 4-ten Generation konstruiert.

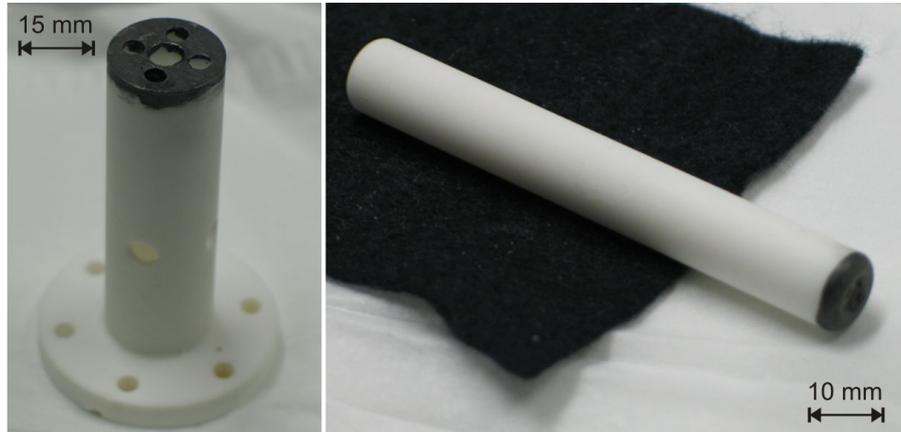


Abbildung 3.7: Mit einer Graphitemulsion überzogene Macorkeramiken

3.4.2 Vierte Generation

Für die Elektronenquelle der 4-ten Generation wurde ein grundlegend neues Konzept erstellt. Denn höhere Beschleunigungsspannungen bringen für die Elektronenbeugung einige Vorteile, weswegen sich dieser erhebliche Aufwand lohnt. Durch eine größere Beschleunigungsspannung erhöht sich zunächst die Geschwindigkeit der Elektronen. Für 60 kV ergibt sich eine Elektronengeschwindigkeit von $v_{el} = 1,34 \cdot 10^8 \frac{\text{m}}{\text{s}}$. Dadurch wird die Geschwindigkeit um 27% gegenüber 30 kV erhöht. Wie wir sehen, werden bei dieser Beschleunigungsspannung relativistische Effekte bedeutend. Die größere Geschwindigkeit verkürzt die Flugzeit der Elektronenpulse, so dass denen weniger Zeit bleibt aufgrund ihrer repulsiven Wechselwirkung auseinander zu driften. Dadurch erhalten wir eine bessere zeitliche Auflösung. Zudem haben Elektronen mit einer größeren kinetischen Energie eine größere Eindringtiefe in Materie. Auf diese Weise wären wir in der Lage dickere Filme zu untersuchen, die sich leichter herstellen lassen. Ein weiterer Vorteil liegt in der kleineren Wellenlänge von $\lambda_{DB} = 4,85\text{ pm}$. Dieser zeigt sich darin, dass die Beugungswinkel kleiner werden. Auf diese Weise können mehr Beugungsmaxima gleichzeitig aufgezeichnet werden.

Die gesamte Quelle mitsamt Hochspannungsdurchführung und Magnetlinse wird hier in einem Bauteil an einen CF100 Flansch der Kammer montiert. Um Probleme an Metal-/Isolatorkontaktstellen zu vermeiden, wird der Isolator direkt an dem Flansch befestigt und besteht nur noch aus einem Stück. Als Material wurde POM (PolyOxyMethylen), wegen seiner guten mechanischen Bearbeitbarkeit und geeigneten elektrischen Eigenschaften verwendet. Dabei wurde besonders auf die Durchschlagfestigkeit (32 kV/mm), Oberflächenwiderstand ($10^{16}\ \Omega$)

und die Kriechstromfestigkeit CTI (600) geachtet [14]. Die Kriechstromfestigkeit wird in einem genormten Verfahren (CTI: Comparative Tracking Index) ermittelt. Das Testverfahren ist etwas kompliziert, aber als grobe Näherung kann man aus diesem Wert ablesen, bis zu welcher Spannung in Volt an 1 mm Material kein messbarer Kriechstrom festzustellen ist. Folglich sollten wir erwarten können, dass 100 mm ausreichen, um die gewünschte Spannung von 60 kV stabil zu halten. Dieser Wert gilt, wenn die Isolatoroberfläche an Atmosphäre liegt. Nach Angaben von Friatec, einer Firma die Hochspannungsvakuumdurchführungen produziert, benötigt man im Vakuum bei einem Druck von 10^{-6} mbar nur ein Drittel der Strecke, um die Kriechstromfestigkeit zu gewährleisten. In Abb. (3.8) ist der Querschnitt des Isolators zu sehen. Vakuumseitig ist der Kriechweg 80 mm lang, was einer Spannungsfestigkeit von 144 kV entspricht. An Atmosphäre ist der Kriechweg 180 mm lang, was für 108 kV ausreicht. Tests haben gezeigt, dass der Isolator 62 kV bei 10^{-7} mbar über 60 Minuten lang aushält ohne eine einzige Entladung oder einen messbaren Strom.

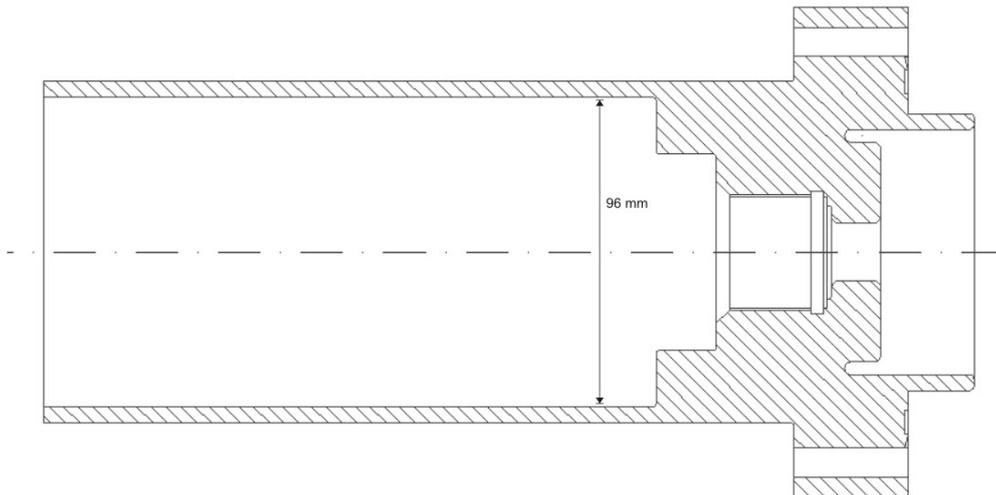


Abbildung 3.8: Skizze vom Isolator der Elektronenquelle

Die Kathode ist wie bei der Elektronenquelle der dritten Generation monolithisch aus Quarz gefertigt. Die Form der Kathode wurde weiter optimiert, um scharfe Kanten und überstehende Ränder zu vermeiden. Auch diese Kathode ist mit einer Goldschicht überzogen aus der die Photoelektronen herausgelöst werden. Die Befestigung der Kathode an der Edelstahlhalterung geschieht mittels Leitsilber, so wird auch der elektrische Kontakt über eine Kupferbeschichtung am Rand und der Rückseite der Kathode zur Goldschicht hergestellt. Die Halterung der Kathode wird von einer Edelstahlschraube in den Isolator eingepresst und mit einem O-Ring wird der Metall-Isolator-Übergang abgedichtet. Ein Loch in der Mitte der Anpressschraube und der Kathodenhalterung erlaubt die Einkopplung des Lasers auf die Kathode. In Abb. (3.9) ist der Querschnitt dieser beiden Elemente zusammen mit der Kathode dargestellt. In der Halterung ist eine zusätzliche Vertiefung in die eine dünne Quarzplatte und ein weiterer O-Ring

eingesetzt werden. Diese Quarzplatte dient als Fenster zur Kathode und wird von der Anpressschraube gegen den O-Ring gedrückt, um die Vakuumdichtigkeit herzustellen.

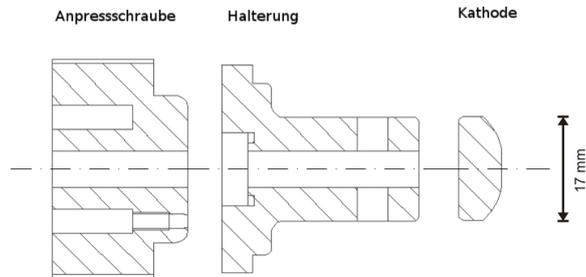


Abbildung 3.9: Skizze für die Kathode, Halterung und Anpressschraube

Da es bei den vorherigen Varianten gelegentlich Schwierigkeiten mit der Hochspannungsdurchführung in die Vakuumkammer gegeben hatte, wurde hier diese direkt in die Quelle integriert. In der Rückseite der Anpressschraube befinden sich 2 Bohrungen, in die ein handelsüblicher Bananenstecker eingesetzt werden kann. Dieser Stecker ist Bestandteil eines eigens für diese Quelle entworfenen Hochspannungssteckers. Der Mantel des Steckers besteht wieder aus POM. Die Hochspannungsleitung ist in dem Stecker eingebettet und über sechs 1 Gigaohm Dünnschichtwiderstände mit dem Bananenstecker verbunden. Das Innere des Steckers ist mit Vergussmasse (Polyurethan, Durchschlagsfestigkeit 25 kV/mm) aufgefüllt. Die verwendete Hochspannungsleitung mit dem Stecker für die Hochspannungsquelle sind kommerzielle Produkte von Heinzinger und für Spannungen bis 65 kV spezifiziert. Bei der Hochspannungsquelle handelt es sich um eine hoch stabilisierte Quelle von Heinzinger (Model: PNCcap-Serie) mit einer angegebenen Spannungsfluktuation kleiner als $0,01\%$ über 8 Stunden.

Die Magnetlinse wird auf der Innenseite eines Distanzflansches befestigt. Dieser Flansch verbindet den Isolator mit der Magnetlinse und der Kammer. Das Joch in der Magnetlinse besitzt eine Lücke, so dass sich zwei Polschuhe gegenüberstehen. So wird eine Inhomogenität im Magnetfeld erzeugt, welche die Elektronenpulse fokussiert. Die Anode wird von der Magnetlinse gehalten. Diese besteht aus Edelstahl und wurde Elektropoliert, um kleinste Unebenheiten zu beseitigen. Zudem wurde Edelstahl gewählt, da es nur schwer magnetisierbar ist, auf diesem Wege vermeiden wir eine unnötige Führung des magnetischen Flusses weg von den Polschuhen und dadurch störende zusätzliche Inhomogenitäten. Alle Kanten und Ecken in Richtung der Kathode sind abgerundet, und die Senkungen für die Schrauben liegen am Rand, damit keine spitzen Winkel in Richtung der Kathode zeigen. So versuchen wir Feldüberhöhungen und Entladungen zu vermeiden. In der Mitte befindet sich auch in dieser Version ein $100 \mu\text{m}$ kleines Pinhole, durch welches die Elektronen hin durchtreten. In Abb. (3.10) ist die Magnetlinse zusammen mit der Anode im Querschnitt dargestellt.

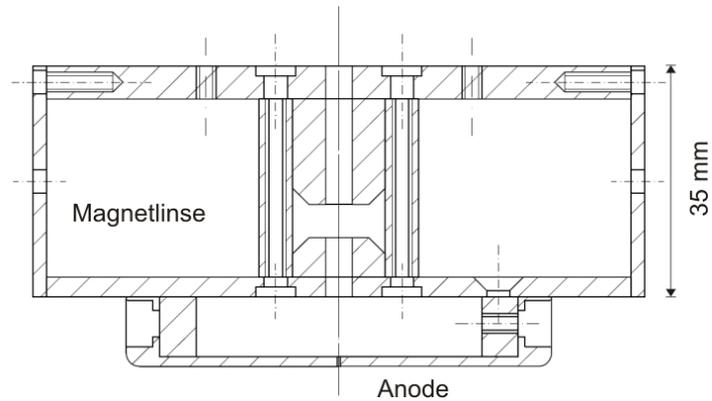


Abbildung 3.10: Skizze der Magnetlinse und der Anode

Die gesamte Elektronenquelle ist von einem geerdetem Aluminiumgehäuse umgeben, um die Spannung im inneren der Quelle abzuschirmen. Dies dient nicht nur zur Sicherheit aller Personen im Labor, sondern auch zum Auffangen von Schockwellen (elektromagnetische Impulse), die bei Entladungen bei hohen Spannungen entstehen. Diese Schockwellen können ansonsten empfindliche elektrische Geräte im Labor beschädigen.

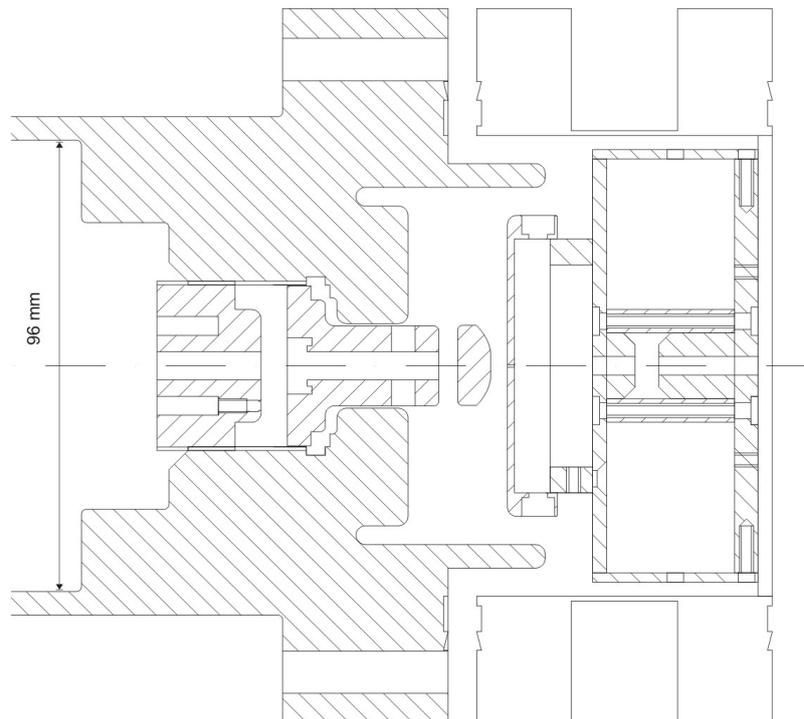


Abbildung 3.11: Skizze für den Zusammenbau der Elektronenquelle der vierten Generation

Abb. (3.11) zeigt alle beschriebenen Teile der Elektronenquelle zusammen. Der Abstand zwischen Kathode und Anode beträgt 7 mm , was nahe der Vakuumdurchschlagsfestigkeit liegt. Dieser Abstand sollte reichen, um die Quelle mit 60

kV zu betreiben. Zudem ist er klein genug, um die Pulsdauer in der Beschleunigungsregion nicht zu stark zu vergrößern. In Abb. (3.12) ist ein Photo von dem Isolator und der Kathode gezeigt.

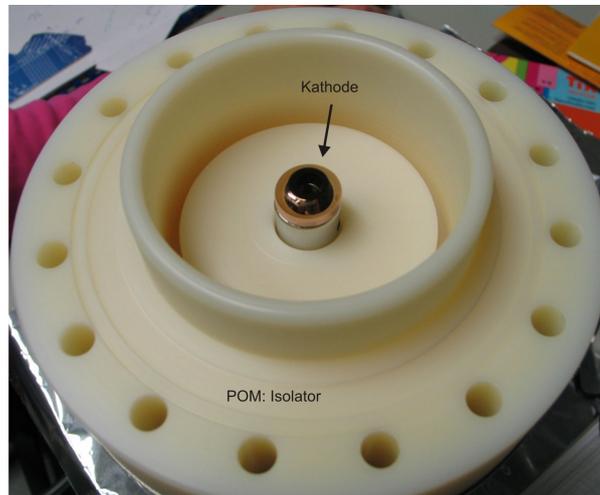


Abbildung 3.12: Photo von der Kathode und dem Isolator

Auch wenn in der neuen Version viele kritische Stellen der Vorläufermodelle überarbeitet und einige Ziele erreicht wurden, wie z.B. die einfachere Installation der Elektronenquelle mitsamt Durchführung an die Kammer. So gibt es weitere Punkte die als Ursache für Entladungen und anschließend einem beständigen Stromfluss in Frage kommen. Im vollständig zusammen gesetzten Zustand konnten leider keine Spannungen über $30 kV$ stabil gehalten werden. Ab $28 kV$ gab es regelmäßig Entladungen in der Quelle. Dies ist im Allgemeinen normal bei einer neuen Quelle, da Staub auf der Kathode und Anode, ebenso wie Verunreinigungen (Wasser, Fett) des Isolators weggebrannt werden. Die hierdurch verursachten Entladungen sollten aber mit ihrer Frequenz und Stärke abnehmen, was im hier beschriebenen Fall nicht eintrat.

Zu den kritischen Stellen gehört besonders der Übergang von der Kathode zur Halterung. Da diese mit Leitsilber festgeklebt ist, kann es nicht verhindert werden, dass eine kleine Menge an Leitsilber aus der Grenzfläche zwischen Kathode und Halterung herausfließt. Diese Reste können spitze Kanten bilden, an denen durch Feldüberhöhungen Elektronen heraussprühen und so eine Quelle von Entladungen sind. Zudem sind die Anforderungen an die Oberflächenbeschaffenheit der Kathode sehr hoch. Besonders der Rand der Kathode kann nur schlecht poliert werden. Dies zeigt sich darin, dass der sichtbare Rand matt und rau nach der Beschichtung mit Kupfer wirkt. Auf einer rauhen Oberfläche befinden sich wieder viele Spitzen und Kanten, die für die Hochspannungsfestigkeit schädlich sind. Eine weitere Problemzone ist der Übergang von der Kupferbeschichtung zum Goldfilm, welcher nach dem Kupfer auf die Kathode aufgedampft wird und sich mit der Kupferschicht überschneidet. Die Goldschicht ist $10 nm$ dick, wohingegen die Kupferschicht $40 nm$ stark ist. Je nach Homogenität dieser Grenzregion, die direkt gegenüber der Anode liegt, können auch hier Stufen oder Kanten

entstehen. In einem späteren Model, sollte nur die Rückseite der Kathode mit Kupfer beschichtet werden, um diesen Übergang zweier Metalle in dem Bereich größter Feldstärke zu vermeiden. Die Kupferschicht ist trotzdem notwendig, da Gold nicht stark genug auf Quarz haftet, um die Kathode an einer mit Gold beschichteten Fläche mit der Halterung zu verbinden. Generell würde es sich empfehlen einen Dummy aus Edelstahl anzufertigen, um einige der mögliche Fehlerquellen zu eliminieren, bevor weitere Test durchgeführt werden.

Abgesehen von der Kathode, kann die Anode zu Schwierigkeiten führen. Hier kommt fast nur das Pinhole als Fehlerquelle infrage. Obwohl die Anode poliert ist, kann an dem Pinhole ein Grat zurückbleiben, wenn bei dem Polieren Materialreste vom Rand des Pinholes in dieses hinein gedrückt werden. Diese Möglichkeit könnte dadurch überprüft werden, indem man die Quelle mit einer Anode ohne Pinhole testet. Die bestehenden Möglichkeiten wurden noch nicht erschöpft und weitere Tests und Variationen werden durchgeführt.

3.5 Die Experimentierkammern

Nachdem wir einen genaueren Blick auf die Elektronenquellen geworfen haben, schauen wir uns nun das Innenleben der Vakuumkammern an, in denen die Experimente durchgeführt werden. Da die beiden Kammern vom Innenleben her recht ähnlich sind, betrachten wir zunächst Kammer 1 an der auch die Experimente durchgeführt wurden, und im Anschluss werden die Unterschiede und Verbesserungen an der neuen Kammer genannt.

Bis jetzt wurde immer nur von Detektor gesprochen, wenn es darum ging das Elektronenbeugungssignal aufzunehmen. Diese Verallgemeinerung wird nun behoben. Gegenüber von der Elektronenquelle, auf der Rückseite der Kammer, ist ein Mehrkanalplattendetektor (MCP, MultiChannelPlatedetector) an einem CF 100 Flansch angebracht. Ein MCP funktioniert recht ähnlich wie ein Channeltron und ist ein Elektronenvervielfacher. Ein MCP besteht aus 2 Platten, die parallel zueinander ausgerichtet sind und einen kleinen Abstand zueinander aufweisen. In jeder Platte sind winzige Löcher, die Kanäle. Eine Potenzialdifferenz von $+1,3 \text{ kV}$ zwischen den Platten dient als Beschleunigungsspannung. Tritt ein Elektron in einen Kanal ein, so wird es durch die Potenzialdifferenz beschleunigt, damit es beim Aufprall auf eine Kanalwand sekundär Elektronen herauslöst. Das hier verwendete MCP benutzt eine Chevron Konfiguration. Das bedeutet, dass die Kanäle leicht (8°) gegenüber der Flächennormalen gekippt sind und der Spalt zwischen den Platten eine Spiegelebene darstellt. Dadurch wird der Verstärkungsfaktor des MCPs erhöht. Hinter den beiden Platten ist ein Phosphorschirm angebracht, an diesem eine weitere Beschleunigungsspannung von $4,8 \text{ kV}$ anliegt. Hier wird durch Lumineszenz Photonen erzeugt. Da sehr viele von diesen Kanälen in dem MCP sind und diese alle denselben Verstärkungsfaktor besitzen, entspricht die Intensitätsverteilung auf dem Phosphorschirm der Elektronenverteilung, die auf das MCP trifft. Über die Beschleunigungsspan-

nung lässt sich die Verstärkung des MCPs regeln. In Abb. (3.13) ist das Schema eines MCPs dargestellt.

Hinter dem MCP, außerhalb der Kammer, befindet sich eine CCD Kamera, mit der das Bild vom Phosphorschirm aufgenommen wird. Diese Kamera besitzt einen hohen dynamischen Bereich, und ihre Wiederholrate lässt sich von $12 \mu s$ bis zu $20 s$ einstellen. Sie wird über ein Labview Programm ausgelesen und die Daten gespeichert. Mit diesem Programm werden auch die Strahlmonitorkameras ausgelesen und die Schrittmotoren in dem Experiment gesteuert.

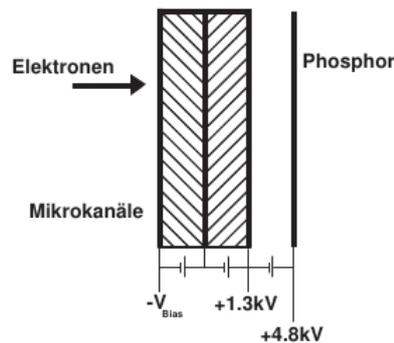


Abbildung 3.13: Schematische Zeichnung einer Multichannelplatte mit Phosphorschirm [a11]

Die Kammer wird über eine Turbomolekularpumpe abgepumpt, dabei wird ein Druck von $8 \cdot 10^{-8} \text{ mbar}$ erreicht. Die Probe wird über zwei Schrittmotoren bewegt (x-Achse und y-Achse). Zudem haben wir die Möglichkeit die Probe um die Vertikale Achse (y-Achse) manuell zu Rotieren.

3.5.1 Überlagerung der Anrege- und Abfragepulse

Eine der großen Herausforderungen in der zeitaufgelösten Elektronenbeugung besteht darin die Anrege- und Abfragepulse räumlich und zeitlich zu überlagern. Die Elektronen können wir nur mit dem MCP detektieren, deshalb ist eine direkte Beobachtung der Elektronenpulse auf dem Probenhalter nicht möglich. Damit wir die Position der Elektronen auf dem Probenhalter verfolgen können, befinden sich im Probenhalter mehrere Löcher an wohlbekannten Orten mit unterschiedlichem Durchmesser. Auf dem MCP betrachten wir nun das Elektronensignal und können anhand des Schattenbildes dieser Löcher die Position der Elektronenpulse markieren. Anschließend richten wir die Elektronenpulse auf das kleinste Loch (100 bis $200 \mu m$) aus und sehen dabei, dass die Pulse räumlich eingeschränkt werde. Dadurch lässt sich der Durchmesser der Elektronenpulse auf der Probe auf etwa $400 \mu m$ abschätzen. Mit einer weiteren CCD Kamera beobachten wir den Probenhalter und achten auf das Streulicht der Abfragepulse auf diesem. Die Kamera liefert aber nur ein recht unscharfes Bild des Probenhalters und das Loch mit dem wir die Überlappung verifizieren, ist nur

schwer zu erkennen. Decken sich die Anregepulse mit dem Loch, so nimmt die Intensität des Streulichtes zu, da das Licht an den Rändern der Öffnung stärker gestreut wird. Dieser Effekt führt aber nicht zu einer gleichmäßig verteilten Intensität. So können wir die Struktur des Loches in der Intensitätsverteilung nur erahnen. Deshalb justieren wir die Pumppulse so, dass ein lokales Minimum im Zentrum der Intensität des Streulichtes auftritt. Dieser Punkt ist der Ausgangspunkt für die Justierung. Anschließend beobachten wir den Schwerpunkt der Elektronenpulse. Überlappen sich Elektronen- und Laserpulse, so kann man eine kleine Verschiebung des Schwerpunktes beobachten, um etwa 0,1 Pixel. Diese Änderung liegt in der Größenordnung, oder unterhalb, der statistischen Schwankungen des Messsignals. Darum lässt sich diese Änderung oft nur durch mehrfache Mittlung und direktem Vergleich zwischen dem Signal vor und nach der zeitlichen Überlappung erkennen. So benötigt es ein sehr geübtes Auge, um diesen Effekt zur Optimierung der Überlappung zu nutzen, und selbst das reicht oft nicht aus. Hier sollte noch erwähnt werden, dass der Bereich in dem sich die Pulse Überlagern müssen kleiner als 1 mm ist. Die Anregepulse haben nur einen Durchmesser von etwa 700 μm .

Nachdem wir die Pulse zur räumlichen Überlappung gebracht haben, suchen wir die zeitliche Überlagerung von Pump- und Probepulsen, auch Nulldelay genannt. Auch wenn der Strahlengang für Pump- und Probepulse einen nahezu gleichen optische Weg haben und sorgfältig aufgebaut sind, so treffen die Pulse nicht automatisch zur gleichen Zeit auf die Probe. Diesen Zeitpunkt finden wir dadurch, dass wir die Verzögerungstrecke über einen weiten Bereich verschieben und während dessen die Änderung des Schwerpunktes der Elektronenpulse betrachten. Bei diesem Vorgang treffen die Elektronenpulse immer noch auf des oben erwähnte Loch im Probenhalter. Die Intensität der Pumppulse muss möglichst groß sein. Bei 20 mJ/cm^2 können wir die genannte Änderung des Schwerpunktes von 0,1 Pixel erkennen. Dieser Wert hängt zudem von dem Durchmesser des verwendeten Loches ab, was wir bei der Verwendung von unterschiedlichen Probenhaltern bedenken müssen. Generell gilt, je größer das Loch, desto kleiner der Effekt. Diese Signaländerung wird dadurch hervorgerufen, dass die Pumppulse durch Mehrphotonenemission auf dem Probenhalter eine lokale Raumladung erzeugen, die unsere Probepulse ablenkt. Dabei werden an den Kanten des Loches mehr Photoelektronen generiert als an der planen Fläche des Probenhalters. Um diesen Effekt zuverlässig sehen zu können, verfahren wir die Verzögerungstrecke mehrfach über den selben Bereich und mitteln die Auslenkung des Schwerpunktes über die verschiedenen Durchläufe. Ein Durchlauf wird als ein Scan bezeichnet und nach drei bis sieben Scans sollte die Änderung sichtbar werden, falls die Pulse sich tatsächlich räumlich überlappen. Eine solche Messung ist in Abb. (3.14) dargestellt. Nachdem die räumliche und zeitliche Überlagerung gefunden wurde, wird erst die Intensität des Anregestrahls reduziert und dieser anschließend blockiert, damit wir nicht versehentlich die Probe beschädigen. Anschließend bewegen wir den Probenhalter, so dass die Elektronenpulse auf die Probe treffen und suchen eine Stelle auf der Probe, die ein möglichst gleichmäßiges und deutliches Beugungsbild liefert. Zu diesem Zeitpunkt haben wir alle Vorbereitungen abgeschlossen, um eine Messung starten

zu können. Wir stellen die Verzögerung zwischen Anrege- und Abfragepuls so ein, dass der Anregepuls nach dem Abfragepuls auf die Probe trifft. Die Messung läuft dann nach dem Rapid-Scanning Verfahren ab. Für eine feste Position der Verzögerungsstrecke nehmen wir ein Beugungsbild auf, mit einer festen Belichtungszeit für die CCD-Kamera. Die Belichtungszeit, typisch sind 0,5 bis 2 Sekunden, daher der Name Rapid-Scanning, wird während der Messung nicht mehr verändert. In dieser Zeit wird die Intensität des Beugungsbildes aufintegriert und abgespeichert. Anschließend wird die Verzögerungsstrecke um eine feste Distanz verkürzt, welche unsere Schrittweite im Zeitintervall der Messung festlegt. Danach wird ein weiteres Bild aufgenommen. Dieses Abfolge wird einige male wiederholt, bis wir eine festgelegt Anzahl von Aufnahmen gemacht haben. Eine solche Messung beinhaltet über 100 Schritte. Die Anzahl der Schritte und die zurückgelegte Distanz zwischen diesen entspricht der Länge des Zeitintervalls für die Messung. Danach fährt die Verzögerungsstrecke auf ihre Ausgangsposition zurück und der Vorgang startet von neuem. Dieses mal werden die Bilder von jedem Schritt mit dem vom vorherigen Durchgang gemittelt und das gemittelte Bild wird abgespeichert. Zum Schluss haben wir eine Reihe von Beugungsbildern aufgenommen, bei denen der Pumpuls immer früher im Vergleich zum Probe-puls auf die Probe trifft. Am Anfang der aufgenommenen Serie ist die Probe also nicht angeregt, da der Pumpuls zu spät ankommt, und im Verlauf der Messung treffen beide Pulse zum selben Zeitpunkt ein. Anschließend wird der zeitliche Abstand wieder größer und wir beobachten die zeitliche Entwicklung des Beugungsbildes nachdem die Probe angeregt wurde. Bei dieser Messmethode ist eine wichtige Voraussetzung, dass die Anregung eine reversible Änderung in der Probe auslöst. Zudem muss die Probe innerhalb von 10^{-4} s wieder in ihren Grundzustand zurück gekehrt sein.

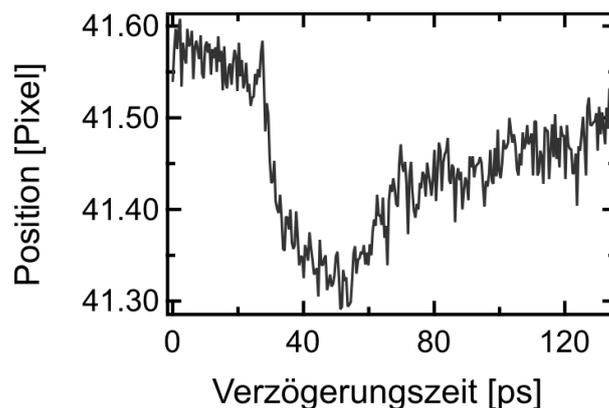


Abbildung 3.14: Gezeigt ist der zeitliche Verlauf der Position des Elektronensignals auf dem MCP. So wird nach der zeitlichen Überlagerung vom Elektronen- und Laserpuls in der alten Kammer gesucht. Ein Pixel entspricht $50 \mu m$ und einer Winkeländerung der Elektronen von $1,7 \cdot 10^{-4} rad$

3.5.2 Die neue Kammer

In der neuen Kammer wird die räumliche Überlappung nach einem ähnlichem Verfahren gefunden. Die Elektronenpulse werden auch hier durch ein kleines Loch gefädelt. Mit einer CCD Kamera betrachten wir den Probenhalter und gleichzeitig die Rückseite der Magnetlinse, die sich direkt hinter dem Probenhalter befindet. Eine Aufnahme des Probenhalters ist in Abb. (3.15) zu sehen.

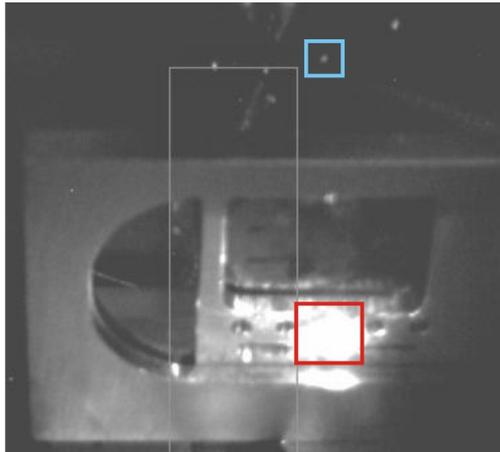


Abbildung 3.15: Aufnahme des Probenhalters in der neuen Kammer. Knapp außerhalb des grünen Kästchens, an der rechten oberen Ecke, sieht man das transmittierte Streulicht des Pumpstrahls. Die anderen Reflexionen stammen von verschiedenen Löchern im Probenhalter und von Streulicht.

Zunächst schauen wir uns wieder das Streulicht der Pumppulse auf dem Probenhalter an (rotes Kästchen), bis diese mit dem Loch, durch welches die Elektronen treten, überlappt. Danach lässt sich das transmittierte Licht, dass durch das Loch im Probenhalter hindurchstrahlt auf der Magnetlinse sehen (blaues Kästchen). Dieses Signal lässt sich leicht nach maximaler Intensität optimieren. Diese Methode ist in der neuen Kammer möglich, da hier die Pumppulse in einem Winkel von 10° auf den Probenhalter treffen anstelle von 40° . Zudem haben wir hier mehrere Möglichkeiten die Kamera so zu positionieren, das wir in einem geeignetem Winkel den Probenhalter und die Magnetlinse beobachten können. Bei der alten Kammer wird das transmittierte Licht einfach vom Probenhalter verdeckt.

In Abb. (3.16) ist eine Messung zur Bestimmung der zeitlichen Überlagerung dargestellt. Im Vergleich mit Abb. (3.14) gibt es einige Unterschiede zu beachten. Als erstes fällt uns auf, das in Abb. (3.14) der Signalunterschied vor und nach der zeitlichen Überlagerung nur 0,2 Pixel bei 30 kV Beschleunigungsspannung beträgt. In Abb. (3.16) beträgt dieser 0,6 Pixel bei 20 kV. Die Messung aus Kammer 1 wurde zudem über 40 mal gemittelt, was zu der geringen Schwankung des Signals führt, wohingegen die zweite Messung nur sieben mal gemittelt

wurde. Als letztes sollte noch auf das drei mal größere abgescannte Zeitintervall aufmerksam gemacht werden in Abb. (3.16).

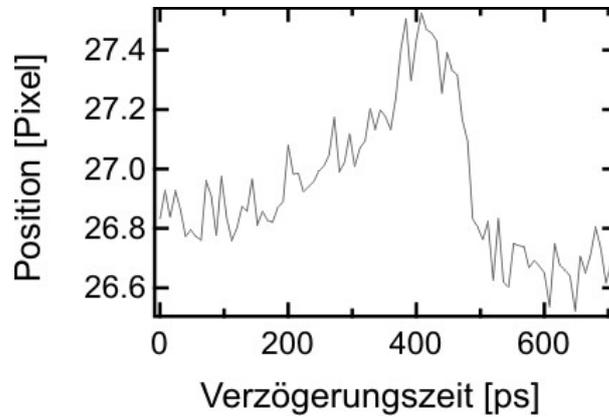


Abbildung 3.16: Gezeigt ist der zeitliche Verlauf der Position des Elektronensignals auf dem MCP. Im Vergleich zu Abb. (3.14) ist zu beachten, dass hier die Zeitachse größer skaliert ist.

Ein weiterer Vorteil der neuen Kammer ist die Möglichkeit die Probe zusätzlich um die beiden Translationsachsen (x- und y-Achse) definiert rotieren zu können. Auf diese Weise können wir das Verhalten der Probe in Abhängigkeit vom Einfallswinkel der Elektronen zur Probe untersuchen.

3.6 Die Probenpräparation

Bis jetzt wissen wir wie die Messung durchgeführt wird, wie die einzelnen Komponenten im Experiment arbeiten und was wir für Messergebnisse erwarten können. In dieser Arbeit wurden Elektronenbeugungsexperimente an Nickel durchgeführt, und aus diesem Grund beschäftigen wir uns jetzt mit der Herstellung und Präparation der Nickelproben. An diese werden spezielle Anforderungen gestellt.

Da die Experimente in Transmissionsgeometrie durchgeführt werden, müssen unsere Proben zum einem als dünne Filme vorliegen, zum anderem darf sich kein Substrat hinter dem Film befinden. Selbst wenn dieses Substrat dünn genug wäre, um für die Elektronen transparent zu sein, so würden wir eine Überlagerung von den Beugungsbildern der Probe und dem Substrat aufnehmen. Eine weitere Anforderung an die Probe bestand darin, dass wir monokristalline Nickelfilme untersuchen wollten. In voraus gegangenen Messungen an Bismut wurde ein anisotropes Verhalten der verschiedenen Beugungsmaxima in monokristallinen Bismutfilmen beobachtet (siehe [12] und [13]). Daher stellt sich die Frage, ob dieses anisotrope Verhalten auch in anderen Materialien zu beobachten ist?

Die Proben wurden von T. Payer aus der AG Horn von Hoegen im Molekularstrahlepitaxie (MBE: Molecular-Beam-Epitaxy) Verfahren hergestellt [15]. Bei

diesem wird mit einem Elektronenstrahl das Rohmaterial stark erhitzt und zum Verdampfen gebracht. Dieser Dampf, in unserem Fall Nickel, wird dann innerhalb der Ultrahochvakuumkammer auf das Substrat abgeschieden. So lassen sich dünne Filme wachsen. Um die Dicke der Filme zu bestimmen, befindet sich neben dem Probenhalter ein Schwingquarz, der mit bedampft wird. Durch die zunehmende Masse während des Bedampfen, ändert sich die Eigenschwingung des Quarzes. So kann in-situ die Schichtdicke bestimmt werden. Für Nickel entspricht eine Frequenzänderung von $\Delta\nu = 991 \text{ Hz}$ einer Filmdicke von 16 nm . Zur Kalibrierung des Schwingquarzes wurde ein Film hergestellt und die Frequenzänderung notiert. Anschließend wurde der Film mit einem Skalpell, bis zur Oberfläche des Substrats, geritzt und daraufhin mit einem AFM untersucht. So wurde der Höhenunterschied von Substrat und Film gemessen, was unserer Filmdicke entspricht. Als Substrat wurde NaCl gewählt, da bereits Erfahrung im Bedampfen von NaCl Kristallen vorhanden war. Die Gitterkonstante von NaCl beträgt 562 pm die von Nickel 352 pm , was ungefähr einem Faktor von 1,6 entspricht. Zudem kristallisieren beide Stoff in der fcc-Struktur, so dass ein epitaktisches wachsen der Nickelfilme bevorzugt wird. Des Weiteren wurden bereits monokristalline Nickelfilme auf NaCl von anderen Arbeitsgruppen hergestellt [15]. Die NaCl Substrate sind polierte, 1 mm dünne und 13 mm durchmessende Scheiben, die ursprünglich als Grundlage für Kristalloptiken vorgesehen sind. Diese besitzen eine Oberflächenrauigkeit von $\Delta_{rms} = 50 \text{ nm}$. Die Substrate werden einer speziellen Behandlung unterzogen, bevor sie in die Ultrahochvakuumkammer transferiert werden. Zuerst wird ein Kristall in eine Halterung eingespannt, so dass die zu bedampfende Seite nach oben zeigt. Daraufhin wird die Probe um ihre Oberflächennormale mit 5000 U/min gedreht. Nun wird das Substrat mit einigen Tropfen Wasser überzogen, welches sofort durch die schnelle Rotation von dieser entfernt wird. Im Anschluss werden einige Tropfen Propanol aufgetragen, um das verbleibende Wasser und den restlichen Schmutz von der Oberfläche des Substrats zu entfernen. Zum Schluss wird mit Druckluft das Substrat von dem restlichen Propanol gesäubert und so schnell wie möglich in die Kammer übergeben. So kann die Oberfläche für den Aufdampfungsprozess verbessert werden.

Der erste Nickelfilm wurde bei Raumtemperatur gewachsen, und ist 20 nm dünn. Abb. (3.17) zeigt das Elektronenbeugungsbild des Filmes in Transmission. Wir sehen die, für eine polykristaline Probe, typischen Debye-Scherrer Ringe. In der Abb. (3.17) sind die Millerschen Indizes für die ersten 5 deutlich sichtbaren Beugungsringe eingetragen. Ebenso ist als Skalierung die Länge des reziproken Gittervektors für den ersten Ringe notiert und in grün der Radius r der ersten Beugungsordnung auf dem MCP in mm eingetragen. Nickel kristallisiert in der fcc Struktur, für die nur Beugungsmaxima auftreten, wenn h , k und l entweder alle ungerade oder alle gerade sind. Zudem gilt für die Netzebenenabstände d_{hkl} in Kristalle, mit einer kubischen Einheitszelle mit der Gitterkonstanten a :

$$d_{hkl} = \frac{a}{\sqrt{h^2 + k^2 + l^2}} \quad (3.1)$$

Der Abstand b der Probe vom MCP beträgt 230 mm und r ist der Radius des

jeweiligen Beugungsringes, so dass wir für den Beugungswinkel Θ

$$\tan \Theta = \frac{r}{b} = \frac{7,6}{230} = 0,033^\circ$$

erhalten. Benutzen wir nun Formel (2.19) so erhalten wir den Netzebenenabstand d_{hkl} und den reziproken Gittervektor G_{hkl} . Es wird die de-Broglie-Wellenlänge λ für 30 keV Elektronen verwendet. Zudem wurde die Abschätzung $\sin \Theta \propto \Theta$ genutzt. Der Faktor 2 entfällt, da wir in Transmissionsgeometrie messen.

$$d_{hkl} = d_{111} = \frac{\lambda}{\Theta} = \frac{6,96 \cdot 10^{-12} \text{ m}}{0,033^\circ} = 2,11 \cdot 10^{-10} \text{ m}$$

$$G_{hkl} = \frac{2\pi}{d_{hkl}} = 29,8 \frac{1}{\text{nm}}$$

In Abb. (3.17) ist $G_{111}^t = 31 \frac{1}{\text{nm}}$ aus den Literaturwerten [4] für Nickel $d_{100}^t = 352,4 \text{ pm} \Rightarrow d_{111}^t = 203,5 \text{ pm}$ eingezeichnet. Dies passt sehr gut zur fcc Struktur von Nickel. In der Tabelle (3.1) sind die gemessenen und die berechneten Netzebenenabstände eingetragen.

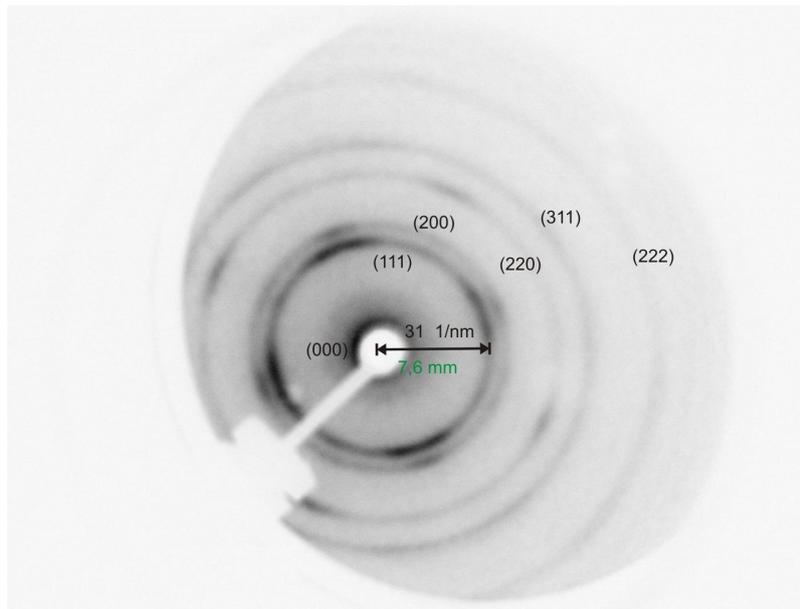


Abbildung 3.17: Zu sehen ist ein Beugungsbild von einer polykristallinen Nickelprobe 30 keV Elektronen. In grün ist die Skalierung für das MCP eingetragen, in schwarz als reziproker Gittervektor des Nickel (111) Beugungsmaxima.

Wir sehen, dass mit Ausnahme der (222) Ordnung die gemessenen und berechneten Werte sehr gut übereinstimmen. Es ist möglich, dass wir den (222) Ring gar nicht sehen können, da dieser sehr dicht bei dem (311) Ring liegt und stattdessen das (400) Maximum beobachten. Zu diesem passt der gemessene Wert für

(hkl)	d_{hkl} [Å] (gem)	d_{hkl} [Å] (ber)	Abweichung [%]
(111)	$2,11 \pm 0,05$	2,08	1,4
(200)	$1,82 \pm 0,04$	1,81	0,5
(220)	$1,25 \pm 0,03$	1,28	2,3
(311)	$1,07 \pm 0,03$	1,09	1,8
(222)	$0,85 \pm 0,08$	1,04	18,3
(400)		0,90	5,6

Tabelle 3.1: Vergleich von gemessenen und berechneten Netzebenenabständen

d_{hkl} deutlich besser überein. Ebenfalls ist in Abb. (3.17) gut zu erkennen, dass in den Debye-Scherrer-Ringen eine gewisse Strukturierung vorhanden ist. Diese lässt darauf schließen, dass in dieser Probe zum Teil kleine Bereiche vorhanden sind, die epitaktisch gewachsen sind.

In einem zweiten Versuch wurde der Nickelfilm bei einer Substrattemperatur von 350°C gewachsen, was nach [16] zu einem monokristallinen Film führt. Ein typisches Beugungsbild des zweiten Filmes ist in Abb. (3.18) zu sehen. Dieser ist wieder 20 nm dick. Es lassen sich deutlich die einzelnen Beugungsmaxima erkennen, bei einem Durchmesser der Elektronenpulse von etwa $400\ \mu\text{m}$ auf der Probe. Auf vielen Bereichen des Filmes lassen sich ganz ähnliche Beugungsbilder aufnehmen. Die Struktur ist dabei meistens die gleiche, lediglich der Kontrast zwischen den Maxima und dem Untergrund variiert.

In Tabelle (3.2) werden wieder die gemessenen d_{hkl} mit den berechneten verglichen. Die Indizierung ergibt sich unter der Annahme, dass der \vec{k} -Vektor der Elektronenpulse parallel zur (001)-Richtung des Kristallgitters eingestrahlt wird. Anhand der Abweichung erkennen wir, dass diese Annahme gerechtfertigt ist.

Damit wir die oben gezeigten Aufnahmen machen können, müssen die Nickelproben frei schwebend gehalten werden. Dafür müssen wir die Filme von dem NaCl-Substrat auf ein feinmaschiges Nickelnetz, mit einer Maschengröße von $0,2\text{ mm}$ übertragen. Im ersten Schritt spannen wir das Netz über eine Öffnung

(hkl)	d_{hkl} [Å] (gem)	d_{hkl} [Å] (ber)	Abweichung [%]
(200)	$1,84 \pm 0,09$	1,81	1,7
(220)	$1,31 \pm 0,07$	1,28	2,3
(400)	$0,91 \pm 0,05$	0,90	1,1
(420)	$0,82 \pm 0,05$	0,81	1,2
(440)	$0,66 \pm 0,05$	0,64	3,1
(600)	$0,62 \pm 0,06$	0,60	3,3
(620)	$0,58 \pm 0,06$	0,57	1,8

Tabelle 3.2: Vergleich von gemessenen und berechneten Netzebenenabständen für die monokristalline Probe

im Probenhalter und fixieren dieses mit Leitsilber. Die Größe der Öffnung variiert von einem Probenhalter zum Anderem, ist aber immer größer als 1 cm^2 . Anschließend füllen wir eine Wanne mit destilliertem Wasser, bis der Probenhalter ungefähr zu 2 mm mit Wasser überdeckt ist. Im nächsten Schritt wird die Probe vorsichtig mit dem Substrat nach unten auf die Wasseroberfläche, über dem Probenhalter, gelegt und losgelassen. Zuerst schwimmt das Substrat für eine Sekunde auf der Wasseroberfläche bis es anschließend absinkt. Dabei löst sich der Nickelfilm von seinem Substrat aufgrund der Oberflächenspannung des Wassers. Das Substrat fällt auf den Probenhalter und durch den kurzen Weg durchs Wasser werden so kaum Wellen oder Wirbel hervorgerufen, die den Film beschädigen könnten. Das Substrat löst sich nun im Wasser auf. Anschließend kann der Film mit dem Netz auf dem Probenhalter aus dem Wasser gehoben werden. Es hat sich gezeigt, dass es günstig ist, den Film so schnell wie möglich abzulösen, nachdem dieser gewachsen wurde. Ältere Filme neigen dazu sich beim Ablösevorgang in viele kleine Bruchstücke zu zerteilen, die sich nur schlecht auffangen lassen.

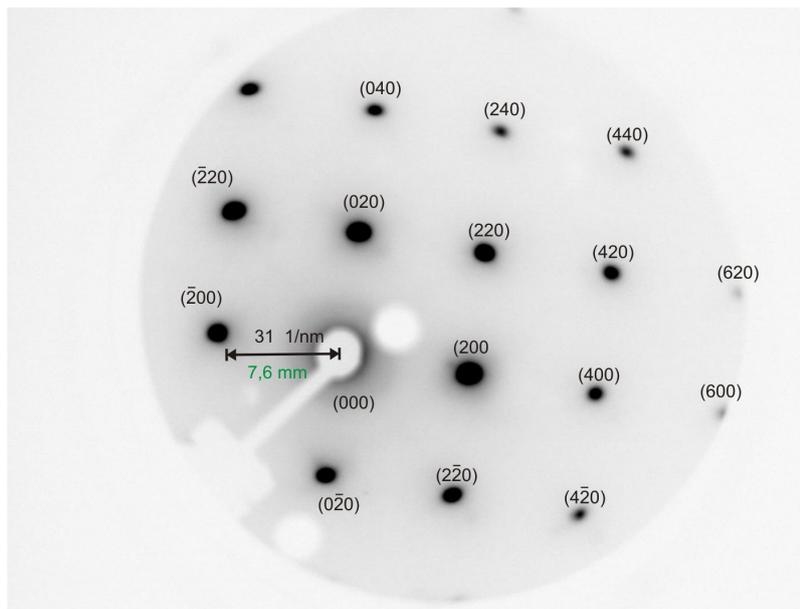


Abbildung 3.18: Zu sehen ist ein Beugungsbild von einer monokristallinen Nickelprobe mit 30 kV Elektronen. Die bei 350°C Substrattemperatur gewachsen wurde.

Da das Netz auf dem der Film liegt nicht ganz eben ist, kann sich die Struktur des Beugungsbildes deutlich mit dem untersuchtem Ort auf der Probe ändern. Diese Änderung ist vergleichbar mit einer Drehung der Probe im Bezug zum \vec{k} -Vektor der Elektronen. In Abb. (3.19) wird ein Beugungsbild für eine solch schräggestellte Probe gezeigt. Es wurden nur die Beugungsmaxima beschriftet, deren Millersche Indexe bestimmt wurden.

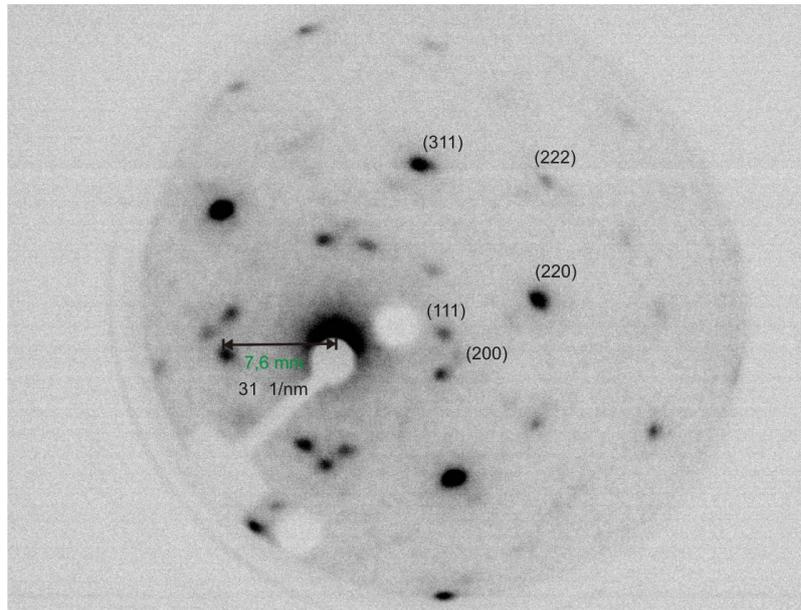


Abbildung 3.19: Zu sehen ist ein Beugungsbild von derselben monokristallinen Nickelprobe wie in Abb. (3.18), dieses mal um etwa 10° gegen den \vec{k} -Vektor der Elektronen verdreht.

4 Zeitaufgelöste Elektronenbeugung an Nickel

Nachdem wir in den vorherigen Kapitel die Theorie und den Aufbau zur zeitaufgelösten Transmissionselektronenbeugung kennengelernt haben, kommen wir nun zu dem Punkt an dem wir uns die Ergebnisse der Messungen betrachten und auswerten. Im Rahmen dieser Arbeit wurden ausgiebige Untersuchungen an dünnen Nickelfilmen durchgeführt. Dabei wurden zwei monokristalline Proben mit einer Dicke von 20 und 25 nm zeitaufgelöst untersucht, wobei die Messungen an der 20 nm Probe deutlich aussagekräftigere Ergebnisse lieferten. Da eine Reihe von verschiedenen Schritten nötig ist, um die aufgenommenen Daten auszuwerten, wird im ersten Abschnitt dieser Prozess transparent dargestellt.

4.1 Die Bearbeitung der Daten

Ein typisches Beugungsbild wurde in Abb. (3.18) gezeigt. Für jedes Inkrement der Verzögerungsstrecke wird ein solches Bild mit der CCD-Kamera aufgenommen. Die Auswertung wird mit einem Labview Programm durchgeführt, in dem die Serie an Bildern, die zu einer Messung gehören, geladen wird. In diesem Programm können wir dann wahlweise einen rechteckigen Bereich oder ein Kreissegment auswählen, innerhalb dessen die Intensität aufintegriert wird. Diesen Bereich nennen wir ROI für „Region Of Interest“. Den ersten ROI legen wir mittig über unser Beugungsmaximum, und wählen ihn groß genug, dass man die Flanken des Beugungsmaximums erkennen kann. Als eine weitere Bedingung für dieses ROI beachten wir, dass in diesem keine Intensität von benachbarten Beugungsmaxima liegen darf. Anschließend werden zwei weitere ROIs platziert, die als Referenz dienen, deren Abmessungen nicht so entscheidend sind. Diese dürfen lediglich nicht zu groß sein, damit innerhalb dieser keine Intensität von anderen Maxima oder Quellen von Streulicht liegen. Die Größe spielt keine bedeutende Rolle, da nur die gemittelte Intensität innerhalb dieser ROIs für die Auswertung verwendet wird. Zudem sollte beachtet werden, dass der Untergrund nicht gleichmäßig über die Fläche des MCPs verteilt ist. Von den transmittierten Elektronenpulsen, dem (000) Signal, aus nimmt der Untergrund antiproportional mit dem Radius $\frac{1}{r}$ ab. Die ROIs für die Referenz sollten dicht an dem für das Messsignal liegen. Entweder liegen beide auf derselben radialen Achse oder auf demselben Radius wie das ROI des Messsignals. In Abb. (4.1) sind in einem Beugungsbild die ROIs für das (200) Beugungsmaximum als Rechteck und für

das (400) Maximum als Segment markiert. Die in Abb. (4.1) verwendete falschfarbene Farbskala ist diejenige, die während den Messungen verwendet wurde, da sich so die Intensitätsverteilung der einzelnen Beugungsmaxima besser erkennen lässt. Die Unterschiede in den Abb. (3.18) und Abb. (4.1) kommen dadurch zustande, dass es sich um Aufnahmen an unterschiedlichen Orten derselben Probe handelt. Im Allgemeinen können wir daran sehen, dass die Probe sehr gleichmäßig gewachsen ist. Auf diese Art und Weise, können wir die Änderung der Intensität des Beugungssignals, dessen Schwerpunkt (Position der maximalen Intensität) und die Halbwertsbreite über das gemessene Zeitintervall ermitteln. Zusätzlich haben wir die Möglichkeit die Intensitätsverteilung mit einer Gaußschen Kurve zu fitten. Darüber erhalten wir die Amplitude, die Halbwertsbreite und den Schwerpunkt der Gaußschen Kurve, welche wir mit den Daten über die aufintegrierte Intensität vergleichen können. Die so gewonnenen Daten werden als Textdatei gespeichert, welche mit Igor Pro, oder einem ähnlichem Datenanalyseprogramm weiter verarbeitet werden können.

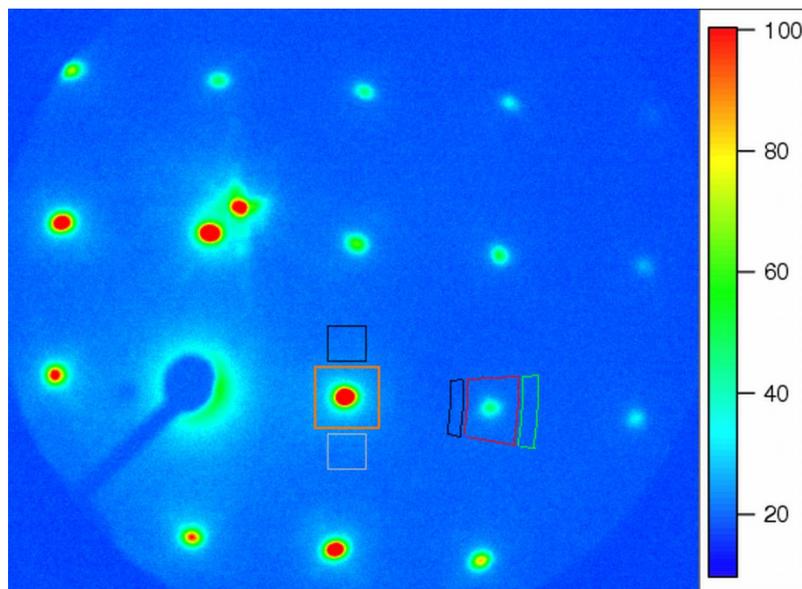


Abbildung 4.1: Gezeigt ist ein falschfarben Beugungsbild einer Nickelprobe mit 30 kV Elektronen. Die farbigen Rahmen sind die Bereiche über welche die Intensität aufintegriert wird.

4.2 Die Auswertung der Messungen

4.2.1 Auswertung der Intensitätsänderung

Gemessen wurde der Verlauf der Intensität über die Verzögerungszeit zwischen Pump- und Probepulsen für jedes Maximum. In der oberen linken Ecke von

Abb. (4.2) sehen wir ein Beugungsbild zu dieser Messung. Die wichtigsten Beugungsmaxima sind mit ihren zugehörigen Millerschen Indexen beschriftet. Eine vollständige Beschriftung der Maxima findet sich in Abb. (3.18).

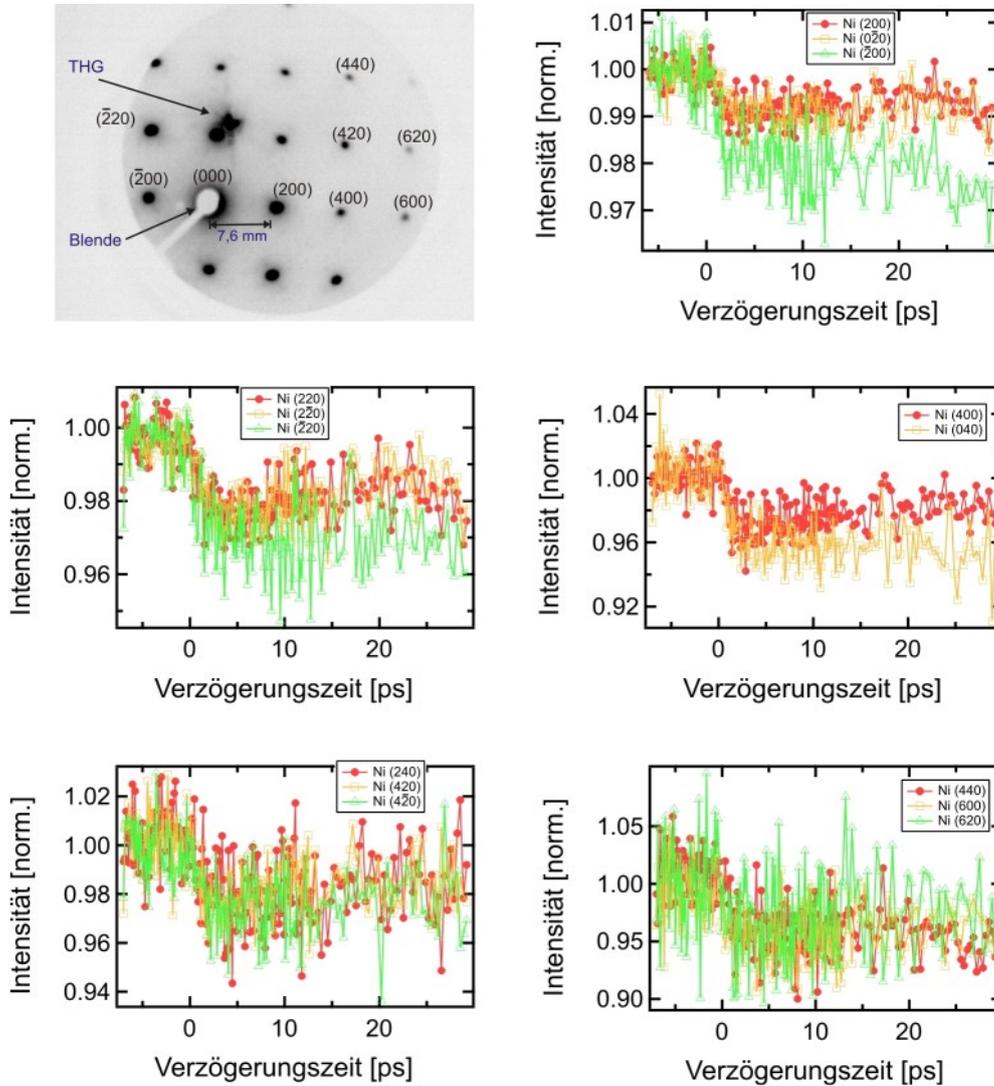


Abbildung 4.2: Datensatz einer Messung an Nickel, 20 nm Filmdicke. Gezeigt sind die normierten Rohdaten der einzelnen Beugungsmaxima.

Die ersten vier Graphen zeigen dann die Änderung der Intensität über die Zeit für Beugungsmaxima mit demselben d_{hkl} , aber in verschiedenen Richtungen. Im letzten Graphen sind die Signale für $(hkl)=(440)$, (600) und (620) gemeinsam abgebildet, da von diesem jeweils nur ein Maximum mit demselben d_{hkl} zu beobachten war. Die Messung wurde mit 45° -polarisierter Laserstrahlung bei einer eingestrahlten Energiedichte von $5,5 \frac{mJ}{cm^2}$ durchgeführt. Die zentrale Wellenlänge der Anregepulse betrug 800 nm , und traf unter einem Einfallswinkel von 40° zur Oberflächennormalen der Probe auf diese. Einige Signale, die zu nah am

Rand des MCPs detektiert wurden, konnten nicht mehr zuverlässig ausgewertet werden. Ebenso fehlt das (020) Signal in der Auswertung, da dieses von der transmittierten dritten Harmonischen (THG) überstrahlt wird. Die direkt transmittierten Elektronenpulse werden von einer Blende blockiert, um das MCP zu schützen. Dies ist der helle Bereich links unten im Beugungsbild. An Hand von Abb. (4.2) können wir bereits folgendes erkennen. Die Intensität $I(t)$ aller Beugungsmaxima nimmt nach der Anregung ($t = 0$) ab und nach 5 ps schwankt sie um einem asymptotischen Wert I_{asym} . Zudem können wir bereits erkennen, das die Stufe im Intensitätsverlauf für Beugungsmaxima mit kleinerem d_{hkl} größer wird. Dieses Verhalten wird nach dem Debye-Waller-Effekt auch erwartet.

Generell ist die Schwankung der Intensität doch recht groß, besonders für kleine d_{hkl} . So lässt sich weder das zeitliche Verhalten noch der asymptotische Grenzwert der Intensität erkennen. Da während der Messung bereits über die einzelnen Durchläufe der Messungen gemittelt wird, und für einen Messpunkt nur das gemittelte Bild abgespeichert wird, stehen uns nicht die nötigen Informationen zur Verfügung, um die Abweichung oder die Schwankung der Messpunkte zu ermitteln. Aus diesem Grund berechnen wir die Schwankung des Signals über die Varianz der benachbarten Datenpunkte. Dies kombinieren wir mit einer Glättung unserer Daten. Dafür bilden wir das arithmetische Mittel \hat{x} aus einer festgelegten Anzahl n an aufeinander folgenden Datenpunkten x_i , und berechnen daraus die Standardabweichung σ der Messpunkte, siehe Formel (4.1). Dieser gemittelte Datenpunkt wird dann in dem Graphen dargestellt. Dieses Verfahren wird im folgenden mit Binning bezeichnet. Dabei wird der generelle Verlauf der Intensität nicht beeinflusst. Mit der Standardabweichung des Mittelwertes σ_{mi} wird die Schwankung der Messwerte im asymptotischen Fall berechnet. Dies gilt für den Grenzwert des Intensitätseinbruches I_{asym} und des Anstiegs der Gittertemperatur ΔT_l , die einem konstantem Wert anstreben. Hier ist $p = m \cdot n$ die Anzahl aller Messpunkt im konstanten Bereich und m die Anzahl der gebinneten Messpunkt. $\hat{\sigma}$ ist das arithmetische Mittel der Standardabweichungen aller m gebinneten Datenpunkte im konstanten Bereich.

$$\begin{aligned}\hat{x} &= \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n x_i \\ \sigma &= \sqrt{\frac{\sum (\hat{x} - x_i)^2}{n - 1}} \\ \sigma_{mi} &= \frac{1}{\sqrt{p}} \hat{\sigma}\end{aligned}\tag{4.1}$$

Dieselbe Messung aus Abb. (4.2) wird diesem so genanntem Binning-Verfahren mit $n = 5$ unterzogen und in Abb. (4.3) dargestellt. Die eingezeichneten Fehlerbalken sind durch das Binning gewonnen worden. Der Verlauf der Intensität mit der Zeit ist nun deutlicher zu erkennen, ebenso lassen sich die Unterschiede in den einzelnen Signalen leichter vergleichen.

Als ein Beispiel rechnen wir σ_{mi} für einen Messwerte des (200) Maximums aus. Die Daten wurden mit einem Faktor von 5 gebinnt, darum ist $n = 5$. Für die

Intensität I_o vor der Anregung, stehen uns 10 gebinnte Messpunkt zur Verfügung, wie wir Abb. (4.3) entnehmen können, so ist $p = 50$, und wir haben einen Messwert von 1550 [w.E.]. Für $\hat{\sigma}$ erhalten wir durchs Binning eine mittlere Abweichung von 21 %. Damit ergibt sich eine Schwankung des Messwertes I_o von 3 % oder 46 [w.E.].

(hkl)	I_o [w.E]	Elektronen	I_{asym}^*	$\hat{\sigma}$ [%]	τ [ps]
(200)	1550 ± 46	$110 \pm 3,3$	$0,99 \pm 0,002$	21	$0,65 \pm 0,43$
(220)	912 ± 31	$65 \pm 2,2$	$0,98 \pm 0,004$	24	$0,76 \pm 0,45$
(400)	318 ± 16	$23 \pm 1,2$	$0,97 \pm 0,009$	36	$0,83 \pm 0,29$
(420)	229 ± 18	$16 \pm 1,2$	$0,98 \pm 0,009$	55	$0,92 \pm 0,31$
(440)	76 ± 7	$5 \pm 0,5$	$0,95 \pm 0,029$	69	$1,01 \pm 0,22$
(600)	79 ± 8	$6 \pm 0,6$	$0,96 \pm 0,024$	70	$0,34 \pm 0,68$
(620)	40 ± 11	$3 \pm 0,8$	$0,97 \pm 0,051$	200	$0,27 \pm 0,59$

Tabelle 4.1: Intensität der Beugungsmaxima vor der Anregung I_o , Anzahl der Elektronen pro Puls, auf I_o normierte Signalabnahme ΔI^* und die Standardabweichung der gemessenen Beugungssignale σ . Zudem ist die Zeitkonstante τ der Anpassungsfunktion für die Intensitätsabnahme eingetragen.

Ein weiterer Effekt wird dadurch deutlich, wenn wir die Punkt zu Punkt Schwankung in Abb. (4.2) mit den Fehlerbalken aus Abb. (4.3) vergleichen. So ist es leicht zu erkennen. Die Schwankung ist in den unmodifizierten Daten riesig, doch nach dem Binning für die Maxima bis zur dritten Ordnung durchaus akzeptabel mit 21 bis 36 Prozent. Leider nimmt die Schwankung für die höheren Beugungsordnungen merklich zu, was an dem schlechteren Signal zu Rausch Verhältnis liegt. Um die Zeitabhängigkeit des Signals im Detail zu untersuchen, beschränken wir uns auf die in Tabelle (4.1) eingetragenen Beugungsmaxima in einer Richtung vom (000) zum (600) Maximum, was mehrere Gründe hat.

Zum einen können wir in dieser Richtung die meisten Beugungsmaxima beobachten, was durch die Geometrie des Versuchsaufbaus und die Größe des MCPs gegeben ist. Mit Hilfe von 4 Permanentmagneten können wir die Elektronenpulse auf jede beliebige Stelle des MCPs richten, doch dabei ändert sich auch die Position der Pulse auf der Probe, wodurch wir die Überlappung von Pump- und Probepulsen neu einstellen müssen. Ebenso wird so ein anderer Bereich der Probe abgescannt. Dadurch gelten nicht dieselben Bedingungen für Messungen vor und nach der Positionsänderung, denn das Netz von dem der Nickelfilm gehalten wird, ist nicht glatt. Zudem führt die Prozedur mit jener der Film auf das Netz aufgebracht wird, zu einer ungleichmäßigen Verteilung des Films. Bereits das Beugungsbild ohne Anregung kann von der untersuchten Position auf dem Film abhängen. Um Ergebnisse miteinander vergleichen zu können sollten daher alle Messungen an demselben Tag durchgeführt und die untersuchte Stelle nicht geändert werden. Zudem kann die Blende, um das (000) Signal abzublocken nur linear verschoben werden. Dadurch können wir die Elektronenpulse ebenfalls nur in dieser Richtung versetzen.

Ein weiterer Grund liegt darin, dass die Signale in dieser Richtung sich sowohl innerhalb der ersten 5 ps als auch auf längeren Zeitskalen ähnlich verhalten. Wir beobachten ein ähnlich schnelles Absinken der Intensität innerhalb von 1 bis 2 ps, und einen geringen Anstieg des Signals innerhalb der nächsten 5 ps.

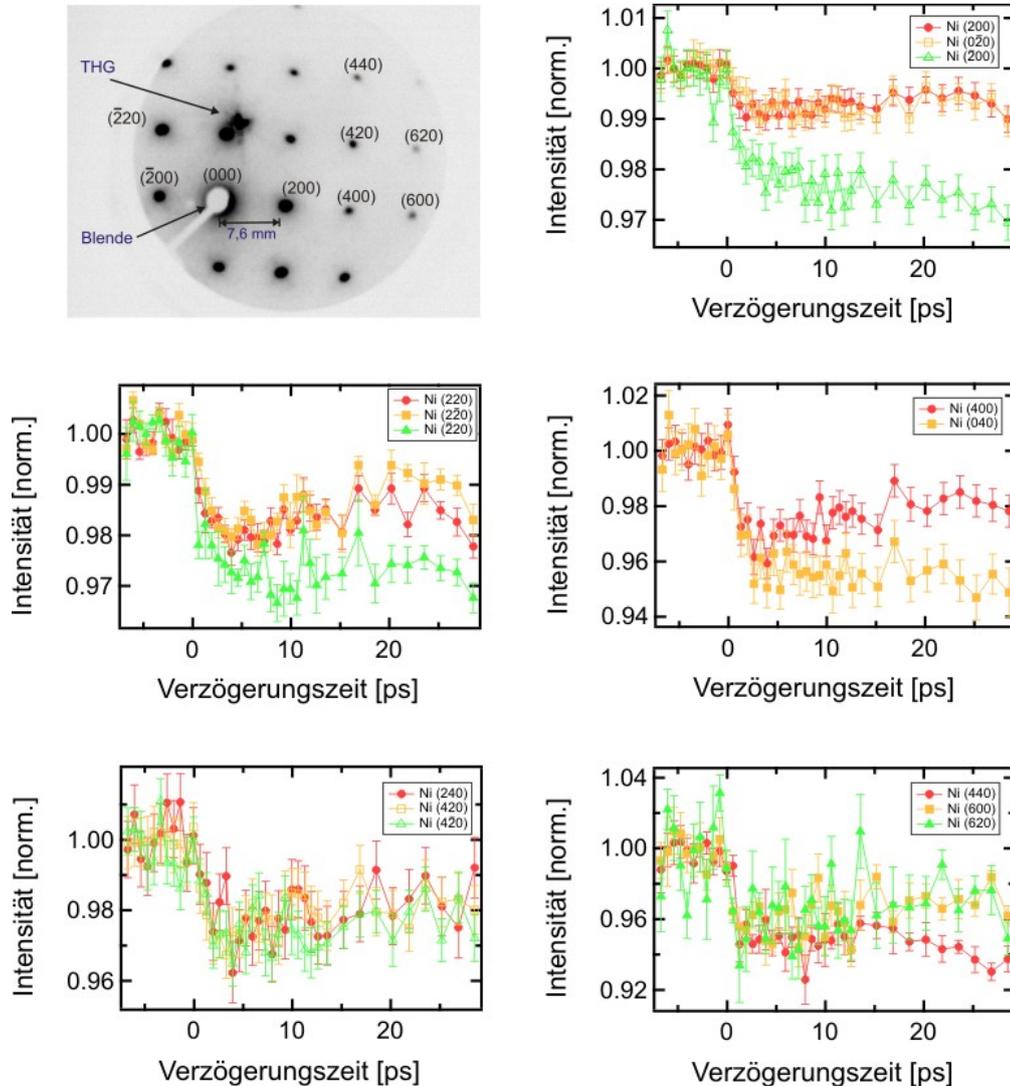


Abbildung 4.3: Datensatz einer Messung an Nickel, mit einer Filmdicke von 20 nm. Die Daten wurden 5-fach gebinnt. Die eingestrahelte Energiedichte beträgt $5,5 \frac{mJ}{cm^2}$, die Polarisation ist 45° , bei einer Wellenlänge von $\lambda = 800 \text{ nm}$.

Die Beugungsmaxima mit $(hkl)=(\bar{2}00)$ und $(\bar{2}20)$ verhalten sich anders als die restlichen Signale mit demselben Netzebenenabstand. Zum einen ist ihre Intensitätsabnahme größer, zum anderen ist auch die Schwankung größer. Dieser Trend ist im (040) Signal ebenfalls zu beobachten, aber nicht so ausgeprägt. Dieses Verhalten ist nach dem DWE nicht zu erwarten, weswegen von einer Mittelung

alle Beugungsmaxima mit demselben Netzebenenabstand d_{hkl} abgesehen wurde. Dadurch vermeiden wir den Einfluss von eventuellen richtungsabhängigen Effekten im Beugungssignal, die wir zu diesem Zeitpunkt weder ausschließen noch bestätigen können. Auch wenn es Hinweise darauf gibt, stehen uns zu wenige auswertbare Beugungssignale zur Verfügung um eine aussagekräftige Schlussfolgerung zu ziehen.

In Abb. (4.4) sind die mit $n=5$ gebinneten Beugungsintensitäten über die Verzögerungszeit aufgetragen. Diese wurden mit einer einfach exponentiell fallenden Funktion (4.2) gefittet, um sowohl den asymptotischen Intensitätswert I_{asym} des Signalabfalls, als auch die Zeitkonstante τ zu ermitteln. Hier ist $I_0 = 1$, da die Daten bereits normiert sind. t_0 ist der Punkt der zeitliche Koinzidenz zwischen Pump- und Probepulsen. Dieser ist gleich Null gesetzt.

$$I(t) = \begin{cases} I_0 & , t < t_0 \\ (I_0 - I_{asym}^*) \exp\left(\frac{t_0-t}{\tau}\right) + I_{asym}^* & , t \geq t_0 \end{cases} \quad (4.2)$$

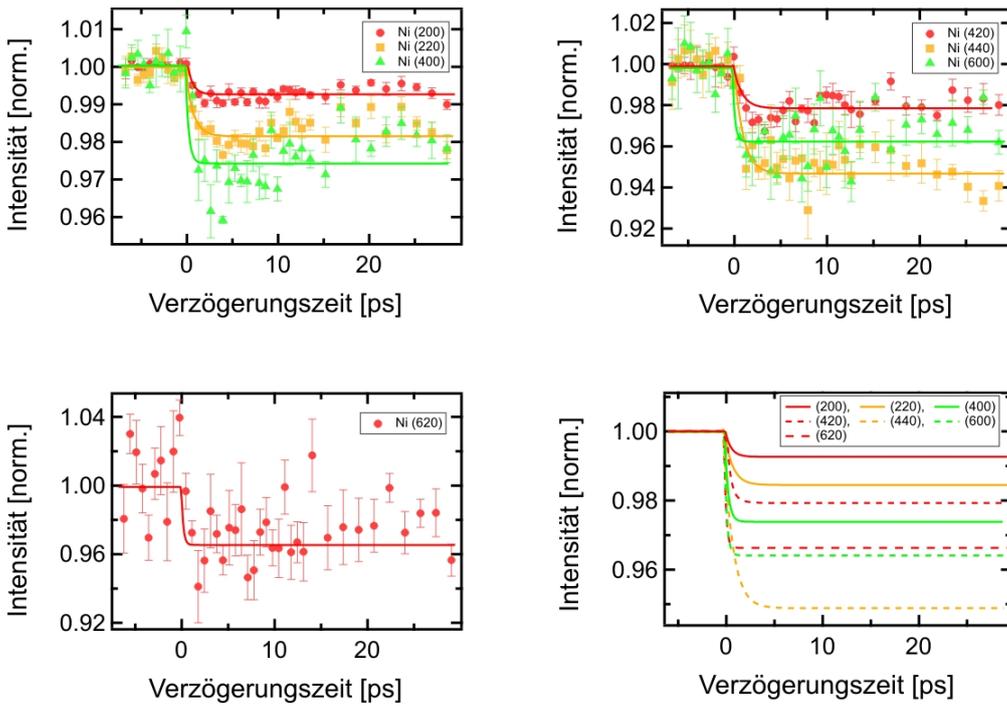


Abbildung 4.4: Vergleich der zeitlichen Änderung der einzelnen Beugungsintensitäten, zur Ermittlung der Intensitätsabnahme I_{asym} und der Zeitkonstante τ .

Die so gewonnenen Daten sind in Tabelle (4.1) eingetragen. Durch dem Debye-Waller-Effekt erwarten wir nach Formel (2.58), dass die Intensitätsabnahme I_{asym} nach der Anregung mit zunehmendem Netzebenenabstand d_{hkl} größer wird und innerhalb der nächsten 10 bis 100 Pikosekunden nahezu konstant bleibt. Wir sehen, dass die Intensität nach der Anregung abnimmt und sich dann

einem konstantem Wert annähert, den wir mit I_{asym} bezeichnen. Da in den Graphen bereits die normierte Intensität aufgetragen ist, erhalten wir auch sofort den normierten Intensitätsabfall I_{asym}^* , welcher gleich dem Debye-Waller-Faktor $DWF = I_{asym}^*$ ist. Dieser Signaleinbruch ist auch für die meisten Beugungsmaxima zu sehen, auch wenn die (420), (600) und (620) Signale nicht ganz dieser Regel folgen. Die größte Abweichung zeigt das (620) Signal, welches auch die größte Schwankung in seinen Messwerten aufweist. Da die Anzahl der Elektronen pro Puls mit zunehmendem d_{hkl} stark abnimmt und die Standardabweichung σ steigt, werden die Signale mit größerem d_{hkl} immer unzuverlässiger. Wir müssen also mit einem großen Fehler bei den weiteren Auswertungen rechnen. Dieses Verhalten lässt sich auch bei der Bestimmung der Zeitkonstanten τ erkennen. Diese ist ebenfalls für die einzelnen Beugungsmaxima sehr unterschiedlich, doch liegt diese für $(hkl) \leq (440)$ nahe an dem von X. Wang ermittelten Wert von $1,17 \pm 0,074 \text{ ps}$ [18]. Dies gilt besonders für das (440) Maximum welches mit $1,01 \text{ ps}$ nur um 14 Prozent abweicht. Bleibt die Frage, warum τ für die ersten vier (hkl) ansteigt? Dies lässt sich durch keinen mir bekannten physikalischen Effekt erklären. Stattdessen liegt es nahe, dass die Fitfunktion präziser an die Daten angepasst werden kann, je stärker der Signaleinbruch ist. Bei den Maxima mit $(hkl) = (600)$ und (620) ist dagegen die Schwankung der Werte einfach zu groß, um genaue Resultate zu erhalten.

Wenn wir annehmen, dass der Signaleinbruch nur durch den Debye-Waller-Effekt verursacht wird, so können wir durch diesen direkt auf eine Zunahme des mittleren Schwankungsquadrats $\langle \Delta u^2 \rangle$ der Position der Atome im Kristall zurück schließen und so den Temperaturanstieg des Gitters ΔT_l der Probe bestimmen. Dafür benutzen wir die Formeln (2.51) und (2.58) aus Kapitel 2.2.2, und erhalten:

$$\langle \Delta u^2 \rangle = -\ln(DWF) \cdot \frac{3}{G_{hkl}^2} = -\ln(DWF) \cdot \frac{3 \cdot d_{hkl}^2}{4\pi^2} \quad (4.3)$$

$$\Delta T_l = -\ln(DWF) \cdot \frac{k_B \cdot \Theta_D^2 \cdot d_{hkl}^2}{h^2} \quad (4.4)$$

Aus diesem Grund ist in Abb. (4.5) der negative, natürliche Logarithmus vom Debye-Waller-Faktor über $1/d_{hkl}^2$ für die sieben untersuchten Beugungsmaxima aufgetragen. Der Netzebenenabstand wurde aus der Gitterkonstante $a = 3,52 \text{ \AA}$ [4] für Nickel und Formel (3.1) berechnet. Der Debye-Waller-Effekt sagt aus, dass die Datenpunkte linear ansteigen und den Nullpunkt schneiden sollten. Darum wurden die Daten mit einer linearen Funktion $f(x) = a + b \cdot x$ gefittet und der Fit bis zum Nullpunkt extrapoliert. Die Fehlerbalken entsprechen dem prozentualen Fehler der Signalschwankung aus Tabelle (4.1).

Für die Steigung b erhalten wir den Wert $1,14 \pm 0,37 [1/\text{Å}^2]$. Dies entspricht einer mittleren quadratischen Auslenkung von $\langle \Delta u^2 \rangle = 8,7 \pm 2,8 \text{ pm}^2$. Verwenden wir die in Tabelle (4.2) aufgeführten Konstanten, so erhalten wir für den Temperaturanstieg der Probe:

$$\Delta T_l = 72 \pm 23 \text{ K}.$$

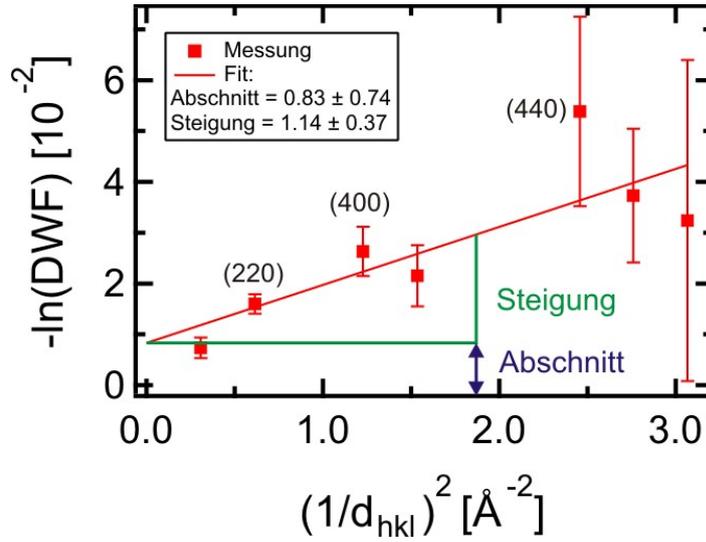


Abbildung 4.5: Die Datenpunkte entsprechen dem Logarithmus von I_{asym}^* und wurden aus Tabelle (4.1) entnommen. Im semilogarithmischen Plot des Intensitätseinbruchs über den inversen Netzebenenabstand, können wir die lineare Steigung gemäß des Debye-Waller-Effektes beobachten.

Den Temperaturanstieg der Probe können wir ebenfalls aus der eingestrahnten Energiedichte berechnen und mit unserer Messung vergleichen. Dafür betrachten wir eine ganz grobe Näherung. Der Pumpstrahl besitzt eine Energiedichte von $w = 5,5 \frac{mJ}{cm^2}$ bei einer zentralen Wellenlänge von $\lambda_0 = 800 \text{ nm}$ und einem Durchmesser $d_p = 0,7 \text{ mm}$. Daraus erhalten wir für die eingestrahlte Energie, mit der bestrahlten Probenfläche A :

$$E_i = w \cdot A = w \cdot \frac{\pi}{4} \cdot d_p^2 = 2,1 \cdot 10^{-2} \text{ mJ} \quad (4.5)$$

Für Nickel finden wir die folgende Materialparameter in [4] und [19]. Die Dichte ρ_{Ni} beträgt $8,91 \frac{g}{cm^3}$ bei 20°C , welche wir hier als konstant annehmen. Die spezifische Wärmekapazität C_p ist gleich $0,444 \frac{J}{gK}$. Des Weiteren ist der komplexe Brechungsindex bei $\lambda = 800 \text{ nm}$ mit $n' = n + i \cdot \kappa = 2,37 + i \cdot 4,21$ und das Reflexionsvermögen mit $R = 0,64$ angegeben. Daraus ergibt sich eine transmittierte Energie E_t durch die erste Grenzfläche von

$$E_t = E_i \cdot (1 - R) = 7,6 \cdot 10^{-3} \text{ mJ} \quad (4.6)$$

$\hbar [\frac{J}{s}]$	$k_B [\frac{J}{K}]$	$m_{Ni} [kg]$	$\Theta_D [K]$
$1,055 \cdot 10^{-34}$	$1,381 \cdot 10^{-23}$	$9,749 \cdot 10^{-26}$	450

Tabelle 4.2: Die für die Berechnung der Temperatur benötigten Konstanten, reduzierte planksche Konstante \hbar , Boltzmannkonstante k_B , atomare Masse von Nickel m_{Ni} und die Debye-Temperatur Θ_D . [4]

Davon wird nach dem Beerschen Absorptionsgesetz folgender Anteil von dem Nickelfilm mit einer Dicke von $\Delta z = 20 \text{ nm}$ absorbiert. Wobei $\alpha = \frac{4\pi \cdot \kappa}{\lambda_0} = 6,61 \cdot 10^7 \frac{1}{\text{m}}$ der Absorptionskoeffizient ist.

$$\begin{aligned} E_a &= E_t(1 - \exp(-\alpha \cdot \Delta z)) \\ &= 7,6 \cdot 0,74 \cdot 10^{-3} \text{ mJ} = 5,6 \cdot 10^{-3} \text{ mJ} \end{aligned} \quad (4.7)$$

Für die Temperaturerhöhung ΔT des Nickelfilms ergibt sich mit einer erwärmten Masse von $m_{Ni} = \rho_{Ni} \cdot V = \rho_{Ni} \cdot \Delta z \cdot A = 8,7 \cdot 10^{-8} \text{ g}$:

$$\Delta T = \frac{E_a}{m_{Ni} \cdot C_p} = 144 \text{ K} \quad (4.8)$$

Selbst durch diese grobe Abschätzung, die weder die Mehrfachreflexion der Pumppulse in der Nickelprobe, noch irgend welche Temperaturabhängigkeiten von C_p , Δz , ρ_{Ni} oder R berücksichtigt, erwarten wir eine deutlich größere Temperaturerhöhung der Nickelprobe, als durch den Debye-Waller-Faktor ermittelt wurde. Ebenfalls wurde hier nicht berücksichtigt, dass die Wärme der angeregten Stelle in das umgebende Probenmaterial diffundiert. Dies sollte aber auch keine große Rolle spielen, da zum einen die zeitlich Ausdehnung der Elektronenpulse und das abgescannte Zeitfenster von 40 ps sehr kurz im Vergleich zur Wärmediffusion ist. Zum anderen die Wärmeleitung von der Schichtdicke abhängt, so dass bei einem Film von 20 nm Dicke nur wenig Wärme ins benachbarte Material hinein diffundiert. Die größte Fehlerquelle liegt aber in der Bestimmung der absorbierten Energiedichte an dem Ort der Probe, welcher von unseren Elektronenpulsen abgefragt wird. Bisher haben wir angenommen, dass wir eine perfekte Überlappung von Pump- und Probepulsen haben. Davon können wir aber nicht mit Sicherheit ausgehen. Es ist durchaus möglich und sehr wahrscheinlich, dass es einen räumlichen Versatz zwischen angeregtem und abgefragtem Probenmaterial gibt. Dieser Umstand wurde bereits in Kapitel 3.5 beschrieben. So ist es nicht allzu überraschend, dass die Abweichung zwischen der gemessenen und berechneten Temperaturerhöhung 50% beträgt. Damit können wir folgern, dass die tatsächliche Temperaturerhöhung deutlich oberhalb unseres gemessenen Wertes liegt.

Wir sehen aber auch, dass die Ausgleichsgrade nicht durch den Nullpunkt verläuft, sondern die Ordinatenachse im Punkt $a = 0,83 \pm 0,74$, im weiteren als Achsenabschnitt bezeichnet, schneidet. Der Fehler bei der Bestimmung dieses Wertes ist erheblich, doch wir können darüber abschätzen, dass nicht der Debye-Waller-Effekt alleine für unsere Signaländerung verantwortlich ist. Um zu überprüfen, welche anderen Effekte eine Rolle spielen, betrachten wir die Änderung der Halbwertsbreite (FWHM) und der Position Δx des Schwerpunktes der Beugungsmaxima in den Abbildungen (4.6) und (4.7). Wenn wir uns die Änderung der Halbwertsbreite (FWHM) anschauen, so können wir keine eindeutige Zu- oder Abnahme erkennen, was mit dem Debye-Waller-Effekt übereinstimmt.

Für die Untersuchung des Schwerpunktes ist die Änderung der Position Δx des Schwerpunktes über die Zeit aufgetragen, wobei Δx in μm auf dem MCP angegeben ist. Wir sehen bei allen Beugungsmaxima eine Verschiebung in dieselbe

Richtung, zum rechten Rand des MCPs hin. Die Verschiebung erfolgt viel langsamer als die Intensitätsabnahme und ist sehr klein ($4 \mu\text{m}$). Die Verschiebung entspricht etwa 0,1 Promille vom Abstand des Beugungsmaximums vom Zentrum, welche das abgeblendete (000)-Signal ist. Dies äquivalent zu 0,1 Pixel auf der CCD Kamera, was in derselben Größenordnung liegt wie die Positionsänderung bei der Suche nach der Überlagerung von Pump- und Probepulsen. Dies lässt den Schluss zu, dass diese Änderung durch die Emission von Photoelektronen an der Nickeloberfläche hervorgerufen wird. Dieser Effekt ist aber sehr gering und wirkt sich nicht merkbar auf die Intensitätsabnahme aus.

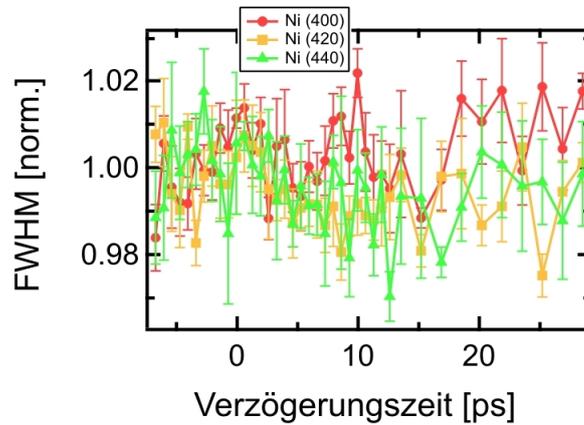


Abbildung 4.6: Vergleich der Änderung der Halbwertsbreite (FWHM) von 3 ausgewählten Beugungsmaxima, und zwar (400), (420) und (440).

Im nächsten Schritt versuchen wir die Temperaturabhängigkeit genauer zu untersuchen, besonders das zeitliche Verhalten dieser. Dies betrachten wir im nächsten Abschnitt.

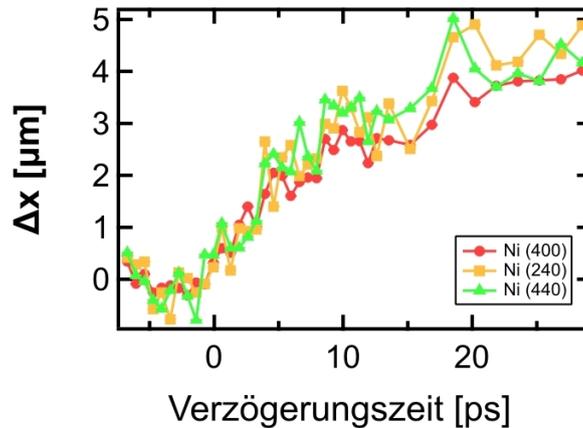


Abbildung 4.7: Vergleich der Änderung der Schwerpunktsposition Δx für dieselben Beugungsmaxima wie in Abb. (4.6).

4.2.2 Zeitverhalten der Temperatur

In einem weiteren Schritt bei der Analyse der Messdaten, untersuchen wir die Änderung der Temperatur ΔT_l des Gitters der Nickelprobe mit der Verzögerungszeit t und der Änderung der mittleren quadratischen Auslenkung $\langle \Delta u^2 \rangle$ der Nickelatome aus ihrer Ruhelage.

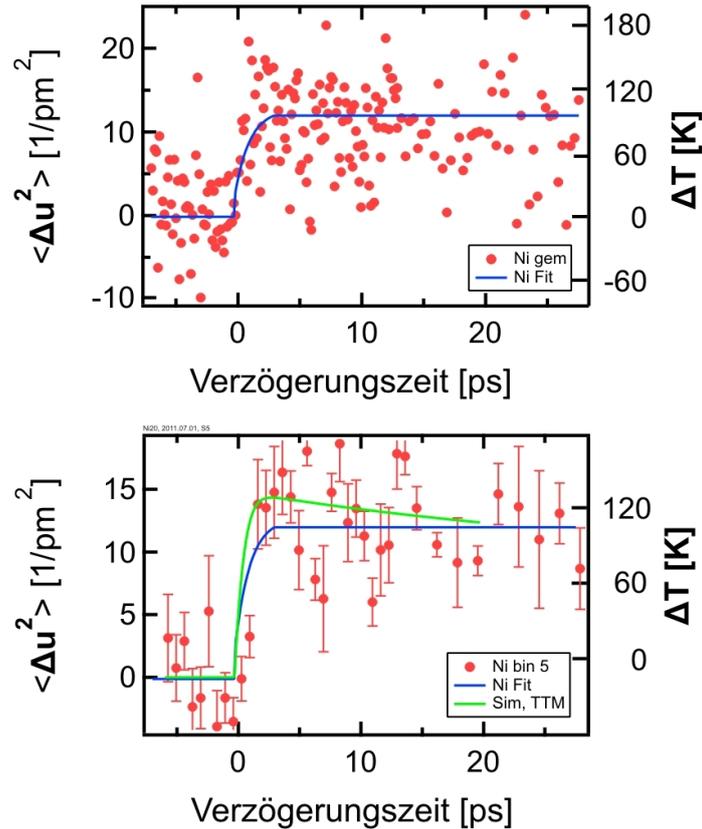


Abbildung 4.8: Dargestellt ist die Zeitabhängigkeit der Temperaturänderung ΔT und der Auslenkung $\langle \Delta u^2 \rangle$. Die blaue durchgezogene Linie ist eine angepasste exponentielle Funktion mit einer Zeitkonstanten $\tau = 1,28 \text{ ps}$. Die grüne Linie ist eine Simulation mit dem TTM.

Um die Zeitabhängigkeit zu untersuchen, ermitteln wir die Steigung der Ausgleichsgeraden aus Abb. (4.5) für jeden gemessenen Zeitschritt. Dafür mitteln wir die Intensität der ersten Datenpunkte bis zum Zeitpunkt $t = 0$ und bestimmen die Differenz $I_0 - I(t)$, wobei I_0 der normierte Mittelwert aus den Daten ist und somit gleich 1. Diese Differenz ist in Abb. (4.8) über die Verzögerungszeit t aufgetragen, und mittels der Formeln (4.3) und (4.4) wurde anschließend $\langle \Delta u^2 \rangle$ und ΔT_l berechnet. In dem oberen Graphen sind die unbehandelten Daten gezeigt, an den eine exponentielle Funktion angepasst wurde. Diese Funktion wird dann im unteren Graphen zusammen mit den gebinnten ($N = 5$) Daten

und den aus dem Binning gewonnenen Fehlerbalken gezeigt. Dadurch lässt sich der zeitliche Verlauf der Datenpunkte besser mit der Exponentialfunktion und der mit Hilfe des Zwei-Temperatur-Modells berechneten Kurve vergleichen. Wir können erkennen, dass nach 5 ps die Temperatur sich einem konstantem Wert annähert. Aus der so angepassten Exponentialfunktion erhalten wir die Zeitkonstante und die asymptotischen Werte für $\langle \Delta u^2 \rangle_{asym}$ und $\Delta T_{l,asym}$. Da an

$$\begin{array}{c|c|c} \tau [ps] & \langle \Delta u^2 \rangle_{asym} [pm^2] & \Delta T_{l,asym} [K] \\ \hline 1,28 \pm 0,7 & 12,1 \pm 4 & 95,4 \pm 29 \end{array}$$

Tabelle 4.3: Dies sind die aus der Messung unter 45° Polarisation ermittelten Werte für die Zeitkonstante τ der exponentiellen Anpassungskurve, der die mittlere quadratische Auslenkung $\langle \Delta u^2 \rangle_{asym}$ und der Temperatur $\Delta T_{l,asym}$

der Florida State University ähnliche Experimente an polykristaliniem Nickel durchgeführt wurden, können wir diese Messdaten miteinander vergleichen. Bei einer eingestrahnten Energiedichte w_i von $0,8 \frac{mJ}{cm^2}$ ermittelte die Arbeitsgruppe von Prof. Cao ein τ von $1,17 \pm 0,017 ps$ und eine Temperaturerhöhung von $\Delta T_l = 35 K$. Bei w_i gleich $2,4 \frac{mJ}{cm^2}$ wurde eine Temperaturerhöhung von $85 K$ gemessen. Die von uns nach dieser Methode bestimmte Zeitkonstante weicht um nur noch 9 % ab. Zu der Abweichung der Zeitkonstanten lässt sich noch anmerken, dass bei den Messungen die in der Gruppe von Prof. J. Cao durchgeführt wurden, die Probe vorgeheizt wurde (500 bis 700 K), um in den Bereich der Curie Temperatur zu gelangen. Dabei wurde eine Abhängigkeit der Zeitkonstanten von der anfänglichen Temperatur der Probe beobachtet. Unsere Messung wurde bei einer Proben temperatur von 300 K durchgeführt. Was eine der Ursachen für die Abweichung ist.

4.2.3 Vergleich mit dem Zweitemperaturmodell

Zur weiteren Auswertung unserer Messungen, simulieren wir den zeitlichen Verlauf der Gittertemperatur mit dem Zweitemperaturmodell (TTM: Two Temperature Model). Das TTM stellt eine starke Vereinfachung der Realität dar, da hier nur der Energietransfer zwischen den Elektronen und den Phononen des Festkörpers berücksichtigt wird. Eine vollständige Beschreibung der mikroskopischen Vorgänge in Materie innerhalb einer Picosekunden Zeitskala nach Energiezufuhr ist zur Zeit noch nicht möglich.

Bei dem TTM wird ein System von 2 gekoppelten Differentialgleichungen gelöst um die Temperatur des Elektronensystems und des Phononensystems zu ermitteln.

$$\begin{aligned} c_e(T_e) \frac{\partial T_e}{\partial t} &= \nabla(\kappa_e(T_e, T_l) \nabla T_e) - g(T_e - T_l) + S(\vec{r}, t) \\ c_l(T_l) \frac{\partial T_l}{\partial t} &= \nabla(\kappa_l(T_l) \nabla T_l) + g(T_e - T_l) \end{aligned} \quad (4.9)$$

Die erste Gleichung bezieht sich auf das Elektronensystem des Kristalls, dem durch die Laserstrahlung Energie zugeführt wird. Dies wird durch den so genannten Quellterm $S(\vec{r}, t)$ implementiert. Die resultierende Temperaturerhöhung $\frac{\partial T_e}{\partial t}$, wird durch die spezifische Wärmekapazität c_e der Elektronen, die Wärmeleitfähigkeit $\kappa_e(T_e, T_l)$ und der Elektronen-Phononen Kopplungskonstanten $g(T_e - T_l)$ bestimmt. Der zweite Term beschreibt die zeitlichen Temperaturänderung $\frac{\partial T_l}{\partial t}$ des Gitters. Die Größen c_l und κ_l nehmen die äquivalente Rolle wie ihrer Pendanten vom Elektronensystem ein. Das positive Vorzeichen bei der Kopplungskonstante $g(T_e - T_l)$ sagt aus, dass dem Gitter Energie von den Elektronen zugeführt wird, wohingegen diese dem Gitter Energie abgeben. In unserem Fall betrachten wir dünne Filme mit einer Stärke von 20 nm , die über einen Laserpuls angeregt werden, welcher die Proben durchdringt. Darum können wir annehmen, dass die Probe parallel zur Flächennormalen homogen angeregt wird und eine einheitliche Temperatur besitzt. Zudem ist das Zeitintervall der Messung mit 40 ps sehr kurz. Aus diesen Gründen ist $\nabla(\kappa_e(T_e T_l) \nabla T_e)$ und $\nabla(\kappa_l(T_l) \nabla T_l)$ gleich Null, denn diese Terme beschreiben den räumlichen Temperaturtransport in der Probe. Die Wärmekapazitäten können für das Gitter als konstant $c_l(T_l) = c_l$ und für die Elektronen als linear abhängig von der Temperatur $c_e(T_e) = A_e \cdot T_e$ angenommen werden, mit dem Sommerfeld-Parameter $A_e [\frac{J}{m^3 K^2}]$. Des Weiteren schätzen wir den Quellterm durch die absorbierte Laserenergie E_a ab. So lässt sich das TTM deutlich vereinfachen und aus Formel (4.9) folgt:

$$\begin{aligned} A_e \cdot T_e \frac{\partial T_e}{\partial t} &= -g(T_e - T_l) + E_a \\ c_l \frac{\partial T_l}{\partial t} &= g(T_e - T_l) \end{aligned} \quad (4.10)$$

Die verbleibenden Parameter wurden aus [20] und [4] entnommen und sind in Tabelle (4.4) zusammengefasst. Der Simulierte Temperaturverlauf ist mit diesen Parametern in dem unterem Bild von Abb. (4.8) eingetragen.

$A_e [10^3 \frac{J}{m^3 K^2}]$	$c_l [10^{-6} \frac{J}{m^3 K}]$	$g [10^{17} \frac{W}{m^3 K}]$	$E_a [10^{-6} J]$	$w [\frac{mJ}{cm^2}]$
1,1	444	8	3,1	3

Tabelle 4.4: Parameter für die Simulation mit dem TTM.

In Abb. (4.9) sind die simulierten Temperaturen über einen für unsere Messungen typischen Zeitraum dargestellt. Wir sehen, dass die Temperatur der Elektronen deutlich größer ist als die des Gitters, was auch nicht anders zu erwarten war. Zur besseren Übersicht wurde deshalb nur die Gittertemperatur T_l in dem unteren Graphen in Abb. (4.8) eingezeichnet. Die mit dem Zwei-Temperatur-Modell simulierte Kurve gibt den Verlauf der gemessenen Daten besser wieder, als die einfach exponentielle Kurve. So lässt sich erkennen, dass die gemessene Temperaturänderung nach 5 ps ein Maximum annimmt und anschließend langsam abfällt. Die Zeitkonstante des TTMs für den Anstieg der Temperaturänderung beträgt $0,84 \text{ ps}$. Damit ist die Zeitkonstante wohl merklich kleiner als die der angepassten exponentiellen Kurve, doch das lässt sich dadurch erklären,

dass im TTM die Temperatur nach einigen Picosekunden wieder sinkt. Um die Abnahme der Temperatur nach 5 ps zu verifizieren, sind die Messdaten zu ungenau. Qualitativ lässt sich eine Abnahme der Temperatur erkennen, doch eine lineare Ausgleichsgerade lieferte eine Steigung von Null. Das würde bedeuten, dass die Temperatur in dem beobachteten Zeitintervall nicht sinkt.

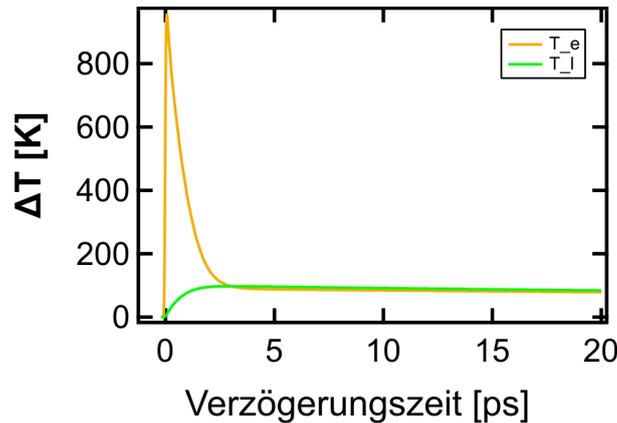


Abbildung 4.9: Gezeigt wird der mit dem TTM simulierte Temperaturanstieg $\Delta T_{e,l}$ der Elektronen und des Gitters in unserer Nickelprobe

In diesem Abschnitt haben wir gezeigt, dass wir in der Lage sind einen Temperaturanstieg $\Delta T_{l,asym}$ von 91 K nach Laserinduzierter Anregung in unserer Nickelprobe zu ermitteln. Dabei erhalten wir mit der zeitaufgelösten Elektronenbeugung auch Informationen über das zeitliche Verhalten dieser Temperaturerhöhung. Ein Vorteil von monokristallinen Proben gegenüber polykristallinen ist, dass wir einzelne definierte Punkte als Beugungsmaxima beobachten. Dies ermöglicht uns die Reaktion der einzelnen Beugungsmaxima auf unterschiedliche Anregungsbedingungen, wie zum Beispiel unterschiedliche Polarisationsrichtungen der anregenden Laserpulse, zu studieren. Genau darum werden wir uns im nächsten Abschnitt kümmern.

4.2.4 Polarisationsabhängigkeit

Im letztem Abschnitt 4.2 wurde im Detail die Reaktion der Nickelprobe auf die laserinduzierte Anregung untersucht. Dabei hatte es sich um Laserpulse mit einer Polarisationsrichtung von 45° gehandelt. Jetzt betrachten wir die Änderung der Intensität von ausgewählten Beugungsmaxima und der Temperatur für S- und P-polarisiertes Laserlicht und vergleichen die Ergebnisse mit der Messung aus dem vorherigem Abschnitt.

Zuerst vergleichen wir die Intensität der Beugungsmaxima mit $(hkl) = (200)$, $(0\bar{2}0)$ und $(\bar{2}00)$ von P- und S-polarisierten Anregepulsen in Abb. (4.10). Auch wenn die Signalschwankungen sich anders verhalten, so können wir einen ähnlichen Verlauf der Intensität über die Zeit feststellen. Das (020) Maxima lässt

sich nicht zuverlässig auswerten, da es wieder von der Dritten Harmonischen überstrahlt wird.

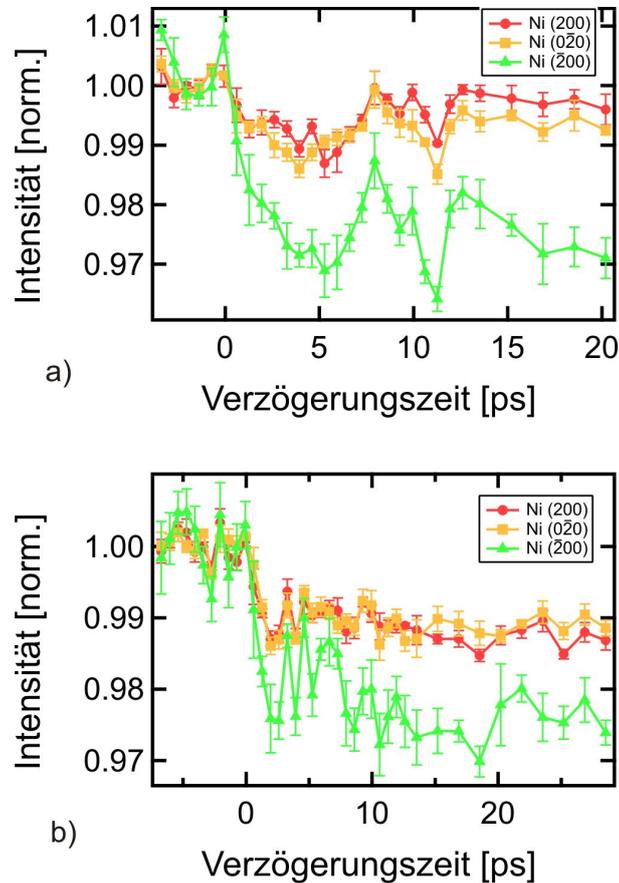


Abbildung 4.10: Intensitätsänderung der Beugungsmaxima über die Zeit bei a) P-polarisierten und b) S-polarisierten Laserpulsen. Erste Ordnung.

Nun betrachten wir in Abb. (4.11) die Maxima mit $(hkl) = (220)$, $(2\bar{2}0)$ und $(\bar{2}\bar{2}0)$ für P- und S-polarisierte Laserpulse. Das $(\bar{2}\bar{2}0)$ Maximum wird von der Blende verdeckt und kann nicht ausgewertet werden. Auch in diesem Fall lässt sich eine kleine Änderung in Verhalten der Intensität feststellen. Auffällig ist der Anstieg der Intensität nach 5 *ps* bei P-polarisierten Pulsen, welcher bei S-Polarisation nicht zu beobachten ist. Ebenso ist der Intensitätseinbruch beim (220) Signal stärker bei S-Polarisation. Doch es bleibt als Resultat, dass am generellem Verlauf im Rahmen der Messgenauigkeit keine signifikanten Änderungen auftreten. Die Daten wurden mit einem Faktor von 5 gebinnt.

Nun betrachten wir den Temperaturverlauf über die Verzögerungszeit. Die Temperaturänderung ΔT_l wird wie zuvor im Abschnitt 4.2.2 ermittelt und in Abb. (4.12) aufgetragen. In Graph a) waren die Pulse P-polarisiert und in Graph b) S-polarisiert. Die eingestrahelte Energiedichte w ist wie im Abschnitt (4.2.1)

$w = 5,5 \frac{mJ}{cm^2}$. Alle anderen Parameter der Pumppulse sind ebenfalls dieselben wie in 4.2.1.

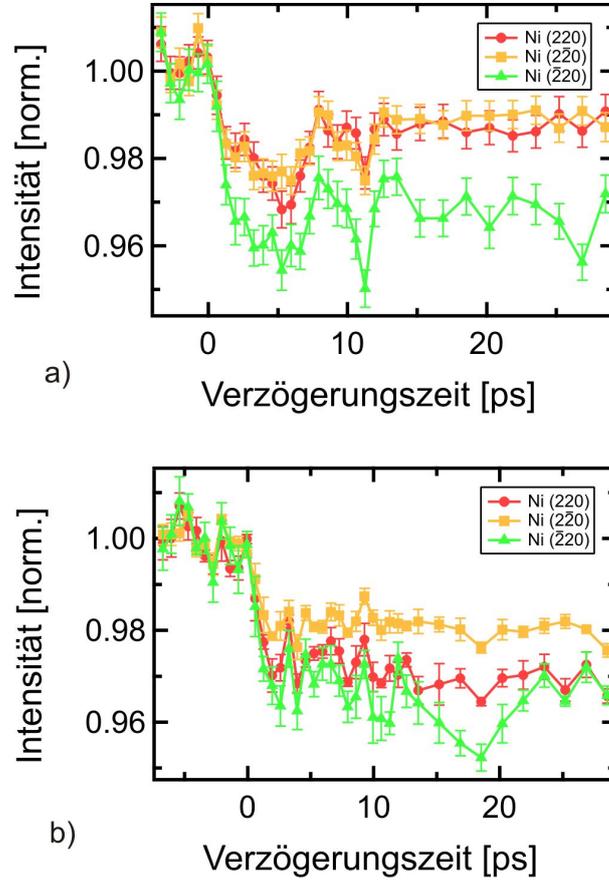


Abbildung 4.11: Intensitätsänderung der Beugungsmaxima über die Zeit bei a) P-polarisierten und b) S-polarisierten Laserpulsen. Zweite Ordnung.

Diese drei Messungen wurden am selben Tag, in direkter Abfolge aufeinander, und auf derselben Stelle der Probe durchgeführt. In Tabelle (4.5) werden die Ergebnisse aus der Messung zusammenfassend präsentiert. So lässt sich die

Polarisation	$\Delta T_l [K]$	$\tau [ps]$	$\hat{\sigma} [\%]$	$w_{TTM} [\frac{mJ}{cm^2}]$
S-Pol	$57 \pm 1,6$	$0,96 \pm 0,3$	15	2,0
P-Pol	$99 \pm 2,4$	$1,42 \pm 0,4$	14	3,5
45°	$95,4 \pm 4,6$	$1,28 \pm 0,7$	28	3,0

Tabelle 4.5: Ergebnisse aus den Messungen für unterschiedliche Polarisationsrichtungen. Aufgelistet sind die Temperaturänderung ΔT_l , die Zeitkonstante τ , die Schwankung der Temperaturmessung $\hat{\sigma}$ und die eingestrahelte Energiedichte w_{TTM} für das TTM.

Temperaturerhöhung des Gitters ΔT_l und die Zeitkonstante τ , die über die exponentielle Anpassungsfunktion ermittelt wurde, leicht vergleichen. Zusätzlich ist die Schwankung der Messwerte σ in Prozent von ΔT_l angegeben, welche aus dem Binning gewonnen wurde. Die Messungen wurden mit einer Simulation des TTM verglichen. Die in der Simulation benutzte eingestrahelte Energiedichte w_{TTM} ist ebenfalls eingetragen.

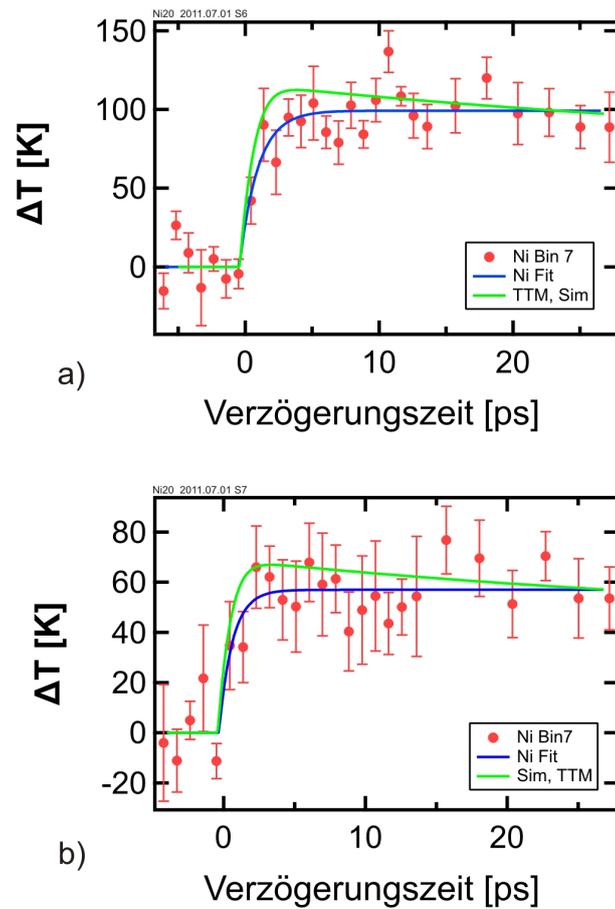


Abbildung 4.12: Temperaturänderung ΔT_l der Beugungsmaxima über die Zeit bei a) P-polarisierten und b) S-polarisierten Laserpulsen

Auffällig ist die große Temperaturdifferenz zwischen S- und P-polarisierter Laserstrahlung von 42 Prozent. Dagegen ist der Temperaturanstieg bei P- und 45°-polarisierten Pulsen sehr ähnlich, mit einer Abweichung von 3,6 Prozent. Aber auch hier ist ΔT_l für 45°-Polarisation kleiner. Dies lässt sich zum Teil durch die unterschiedlichen Reflexions- und Transmissionskoeffizienten $\rho_{s,p}$ erklären. Diese lassen sich durch die Fresnel-Formeln für unterschiedliche Einfallswinkel α und Brechungswinkel β , sowie den Brechungsindizes $n_{1,2}$ für die optischen

Medien 1 und 2 berechnen.

$$\begin{aligned}\varrho_s &= \frac{n'_1 \cos \alpha - n'_2 \cos \beta}{n'_1 \cos \alpha + n'_2 \cos \beta} = -\frac{\sin(\alpha - \beta)}{\sin(\alpha + \beta)} \\ \varrho_p &= \frac{n'_2 \cos \alpha - n'_1 \cos \beta}{n'_2 \cos \alpha + n'_1 \cos \beta} = -\frac{\tan(\alpha - \beta)}{\tan(\alpha + \beta)}\end{aligned}\quad (4.11)$$

Mit Hilfe des komplexen Brechungsindex $n'_2 = n_2 + i \cdot \kappa_2 = 2.37 + i \cdot 4.21$ für Nickel bei einer Lichtwellenlänge von $\lambda=800 \text{ nm}$ und einem Einfallswinkel von $\alpha=40^\circ$ lässt sich nun der Brechungswinkel β für die Grenzfläche zwischen Vakuum $n'_1 = 1$ und Nickel berechnen. Hierfür benutzen wir das Snelliussche Brechungsgesetz:

$$\sin \beta = \frac{n'_1}{n'_2} \sin \alpha \quad (4.12)$$

Da wir hier den komplexen Brechungsindex benutzten, greifen wir auf einen Trick zurück. Es gilt:

$$\sqrt{1 - \sin^2 \beta} = \cos \beta \quad (4.13)$$

und

$$\sqrt{n_2'^2 - \sin^2 \alpha} = n'_2 \cos \beta = \eta \cdot e^{-i\gamma} = \eta(\cos \gamma - i \cdot \sin \gamma) \quad (4.14)$$

Formel (4.14) werden wir nun quadrieren und vergleichen anschließend Realteil und Imaginärteil miteinander.

$$\begin{aligned}n_2^2 - \kappa_2^2 - \sin^2 \alpha &= \eta^2 \cos(2 \cdot \gamma) \\ 2 \cdot n_2 \cdot \kappa_2 &= \eta^2 \sin(2\gamma)\end{aligned}\quad (4.15)$$

Mit Formel (4.15) und (4.14) können wir das Snelliussche Brechungsgesetz jetzt ein wenig umschreiben:

$$\sin \beta = \frac{\sin \alpha}{\sqrt{\sin^2 \alpha + \eta^2 \cos^2 \gamma}} \quad (4.16)$$

Die Größen η und γ erhalten wir ebenfalls aus Formel (4.14):

$$\eta^2 = \sqrt{(n_2^2 - \kappa_2^2 - \sin^2 \alpha)^2 + 4 \cdot n_2^2 \cdot \kappa_2^2} \quad (4.17)$$

und

$$\gamma = \frac{1}{2} \arcsin \left(\frac{2 \cdot n_2 \cdot \kappa_2}{\eta^2} \right) \quad (4.18)$$

So erhalten wir, wenn wir die entsprechenden Parameter einsetzen, ein Reflexionsvermögen $R_s = \varrho_s \cdot \varrho_s^*$ von 73,4% für S-Polarisation und 60,7% für P-Polarisation. Der Verlauf des Reflexionsvermögens für Nickel über den Einfallswinkel ist in Abb. (4.13) dargestellt. Mit den Formeln (4.5) bis (4.8) gewinnen wir das Transmissionsvermögen Tr , die absorbierte Energie E_a und die berechnete Temperaturerhöhung ΔT_b für die drei unterschiedlichen Polarisationsrichtungen. Die Daten für 45° Polarisation wurden für den Einfallswinkel von 40° korrigiert, was in Abschnitt 4.2.1 nicht berücksichtigt wurde. Diese werden in Tabelle (4.6) gezeigt.

Pol.	ΔT_b [K]	Tr [%]	E_a [μJ]	ΔT_V [K]	$\Delta T_l/\Delta T_b$	ΔT_l
S-Pol	138	26,6	5,5	80	0,41	$57 \pm 1,6$
P-Pol	213	39,3	8,1	114	0,46	$99 \pm 2,4$
45°	171	32,9	6,8	76,5	0,56	$95,4 \pm 4,6$

Tabelle 4.6: Vergleich der berechneten Temperaturerhöhung ΔT_b für S-, P- und 45° polarisiertes Licht. Zudem sind das Transmissionsvermögen Tr , die absorbierte Energie E_a , die Differenz ΔT_V aus $\Delta T_b - \Delta T_l$ und der Quotient aus $\Delta T_l/\Delta T_b$ aufgelistet.

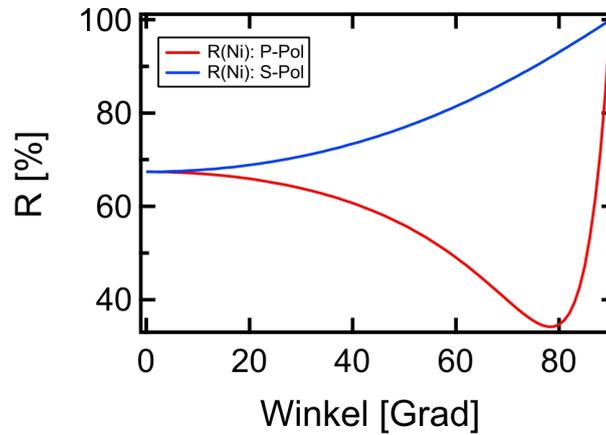


Abbildung 4.13: Simulation des Reflexionsvermögens von einer Nickel-Vakuum Grenzschrift für S- und P-polarisiertes Licht.

Wir erkennen einen deutlichen Unterschied in der Temperaturerhöhung ΔT_b zwischen S- und P-Polarisation von 32 %, was schon recht nahe an den gemessenen Unterschied von 42 % herankommt. Die verbleibende Abweichung von 10 % liegt völlig im Rahmen der Messgenauigkeit. Zu beachten ist der erhebliche Unterschied zwischen berechnetem Temperaturanstieg ΔT_b und gemessenem ΔT_l . Die Differenz $\Delta T_V = \Delta T_b - \Delta T_l$ und der Quotient $\Delta T_l/\Delta T_b$ sind ebenfalls in Tabelle (4.6) aufgeführt. Eine solche Abweichung lässt darauf schließen, dass die Überlappung von Pump- und Probepulsen nur zum Teil hergestellt wurde.

4.2.5 Abweichung vom Debye-Waller-Effekt: Der Achsenabschnitt

In Abb. (4.5) hatten wir bei der Auswertung des asymptotischen Debye-Waller-Effektes gesehen, dass es neben der Steigung, die proportional zum Temperaturanstieg ΔT_l ist, noch einen weiteren Effekt gibt. Die Ausgleichsgerade schnitt nicht den Nullpunkt der Temperaturachse, sondern bei dem Achsen-Abschnitt ($-\ln(DWF) = 0,83$). Nach dem Debye-Waller-Effekt sollte die Gerade durch Null gehen. Diese Abweichung wurde bereits in einer früheren Arbeit beobachtet [11], und wurde mit der Zunahme der inelastischen Streuung der Elektronen bei größeren Temperaturen begründet.

Die Zeitabhängigkeit wird in Abb. (4.14) mit der Steigung verglichen. Dabei können wir sehen, dass sich die Kurven im Rahmen der Schwankung sehr ähnlich verhalten. Beide zeigen zum Zeitpunkt $t = 0$ einen deutlichen Sprung und nehmen anschließend einen nahezu konstanten Wert an. Die Daten in Abb. (4.14) wurden mit einem Faktor von 3 gebinnt.

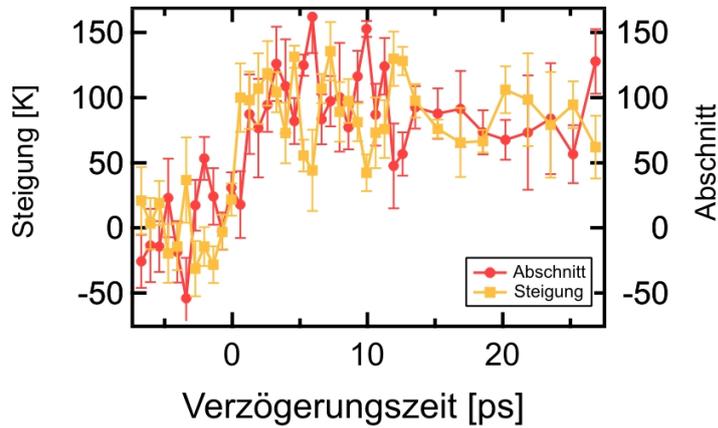


Abbildung 4.14: Vergleich des zeitlichen Verhaltens der Steigung und des Achsenabschnittes aus Abb. (4.5)

Ein ähnliches Verhalten können wir auch bei den anderen Polarisationsrichtungen, in den Abbildungen (4.15) für P-Polarisation und (4.16) für S-Polarisation, erkennen.

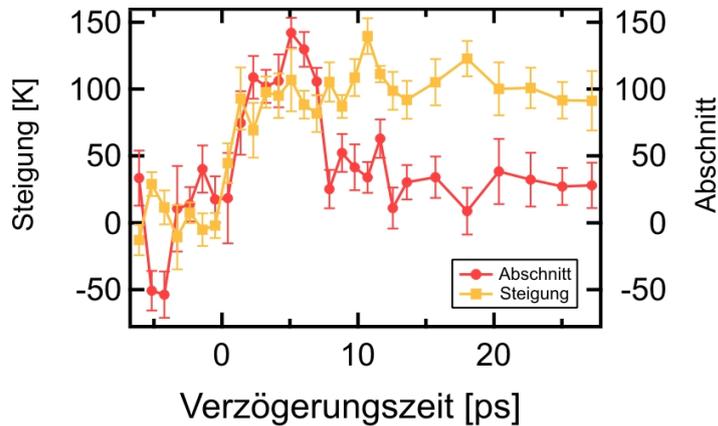


Abbildung 4.15: Vergleich der Steigung und des Achsenabschnittes bei P-polarisierten Anregepulsen. Die Daten der beiden Kurven wurden mit demselben Faktor für die Umrechnung auf den Temperaturanstieg multipliziert, wodurch die Skalierung der Ordinate festgelegt wurde.

In beiden Fällen sehen wir zuerst eine sprunghafte Zunahme des Achsenabschnittes, doch dann weicht der Verlauf der Kurven für den Achsenabschnitt (rot) und

Steigung (gelb) ab. Besonders das Verhalten auf großen Zeitskalen ($t > 5 \text{ ps}$) lässt keinen Zusammenhang erkennen. Bei P-Polarisation sinkt der Achsenabschnitt nach 5 ps rapide, wohingegen dieser für 45° - und S-Polarisation leicht steigt oder konstant bleibt. Auch die Relation zur Steigung variiert in allen Fällen. Für 45° verhält sich Abschnitt und Steigung ähnlich, bei P-Polarisation bleibt die Steigung nach 5 ps konstant im Gegensatz zum Abschnitt und für S-Polarisation wird der Unterschied mit der Zeit immer größer. Die einzige Gemeinsamkeit liegt darin, dass innerhalb der ersten 5 ps nach der Anregung für alle drei Polarisationsrichtungen der Abschnitt auf einen Wert von 100 ansteigt. Dieser Wert ist in willkürlichen Einheiten angegeben, da der Abschnitt keine Einheit hat und aufgrund unvollständigen theoretischen Grundlagen auch keiner Größe direkt zugeordnet werden kann. Ansonsten wurde der Abschnitt mit demselben Umrechnungsfaktor für die Temperatur versehen wie die Steigung, so dass ein besserer Vergleich von beiden möglich ist. Wenn wir uns nochmal Abbildungen (4.10) a), (4.11) a) anschauen und mit Abbildung (4.15) vergleichen, so stellen wir fest, dass sowohl die Intensität als auch der Achsenabschnitt nach 5 ps eine ähnliche Änderung zeigen. Diese Zunahme der Intensität in den Beugungsmaxima spiegelt sich entgegen der Erwartung nicht in der Steigung, welche proportional zur Gittertemperatur ist, wieder. Einen vergleichbaren Zusammenhang wurde bei 45° und S-Polarisation nicht beobachtet. Ob sich hierbei um eine Artefakt handelt oder das Gitter auf P-polarisiertes Licht anders reagiert, kann jetzt noch nicht mit Sicherheit gesagt werden.

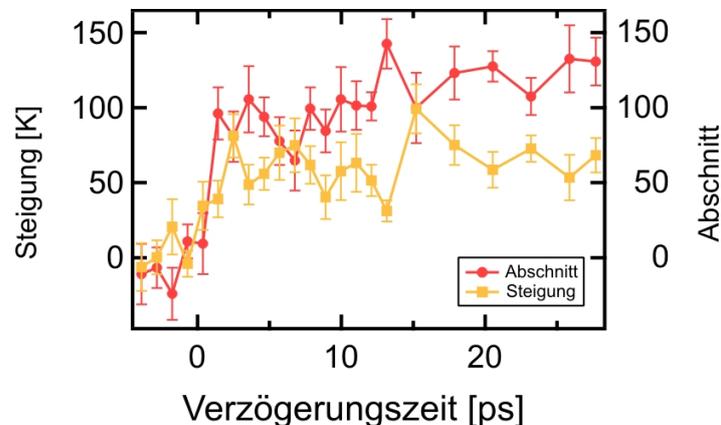


Abbildung 4.16: Vergleich der Steigung und des Achsenabschnitts bei S-polarisierten Anregepulsen.

4.3 Fluenzabhängigkeit

Im vorherigen Abschnitt haben wir gesehen, dass die Polarisation nur aufgrund des unterschiedlichen Absorptionsvermögens von Nickel Auswirkungen auf die Beugungsmaxima hat. In diesem Abschnitt widmen wir uns der Untersuchung des Beugungssignals für unterschiedliche eingestrahlte Energiedichten,

bei S-polarisierten Anregepulsen. Ansonsten bleiben die restlichen Parameter wie Wellenlänge, Pulsdauer und Form dieselben, wie in den vorherigen Messungen.

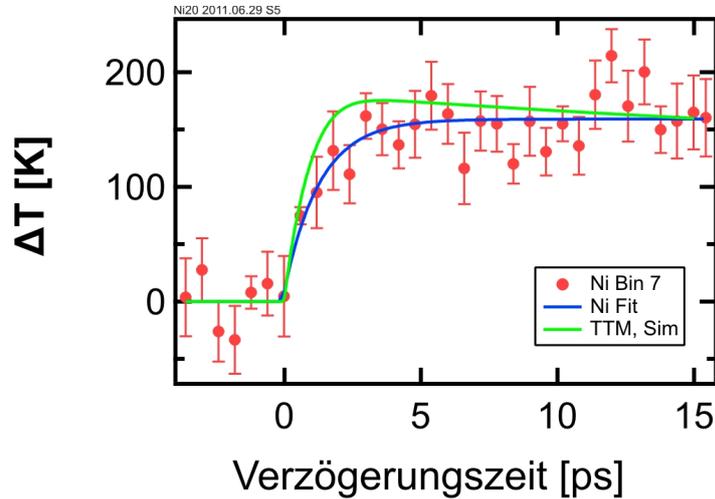


Abbildung 4.17: Temperaturänderung ΔT_l des Gitters über die Zeit bei einer eingestrahlten Energiedichte w_i von $5 \frac{mJ}{cm^2}$.

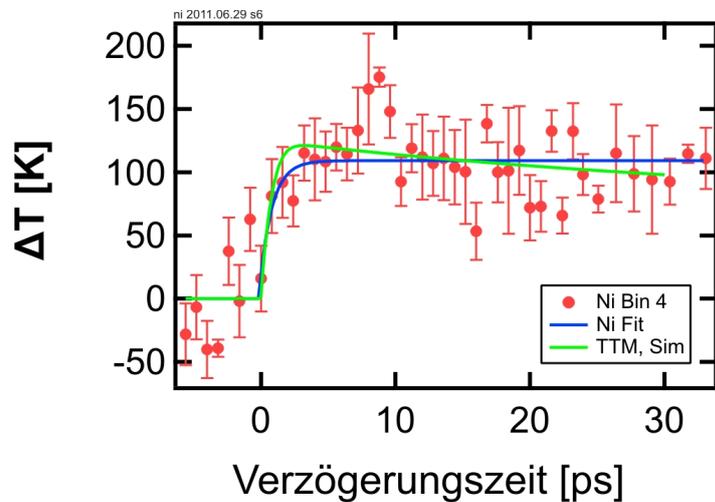


Abbildung 4.18: Temperaturänderung ΔT_l des Gitters über die Zeit bei einer eingestrahlten Energiedichte w_i von $3 \frac{mJ}{cm^2}$.

Als erstes ermitteln wir die Änderung der Gittertemperatur ΔT_l in Abhängigkeit von der Verzögerungszeit t zwischen Anrege- und Abfragepulsen. Dabei vergleichen wir die Daten mit der durchs TTM simulierten Temperaturänderung ΔT_s und der für die Simulation verwendeten eingestrahlten Energiedichte $w_{i,s}$. Die Datenpunkte wurden mit einer einfach exponentiellen Funktion angepasst, um die Zeitkonstante τ für die Temperaturänderung zu ermitteln. Diese Daten werden in den Graphen (4.17), (4.18), (4.19) und (4.20) gezeigt, wobei Abb. (4.20)

eine Zusammenfassung der ersten drei Graphen darstellt. So können die Datensätze zu den unterschiedlichen w_i von 5, 3 und $2 \frac{mJ}{cm^2}$ besser verglichen werden. Wie in den vorherigen Abschnitten wurde auch hier der Fehlerbalken über das Binning ermittelt, und kann nur als eine Abschätzung für die Schwankung der Messwerte angesehen werden. Der Faktor mit dem die jeweiligen Daten gebinnt wurden, ist in den zugehörigen Graphen angegeben, z.B. Ni Bin 7 bedeutet das sieben Datenpunkt zu einem zusammengefasst und gemittelt wurden.

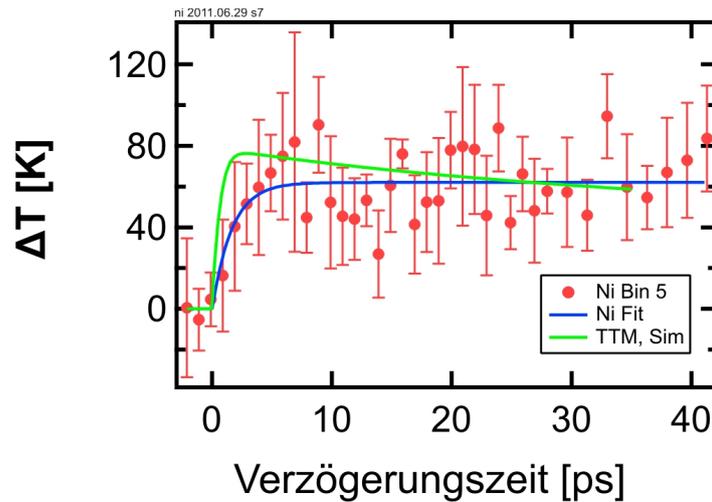


Abbildung 4.19: Temperaturänderung ΔT_i des Gitters über die Zeit bei einer eingestrahelten Energiedichte w_i von $2 \frac{mJ}{cm^2}$.

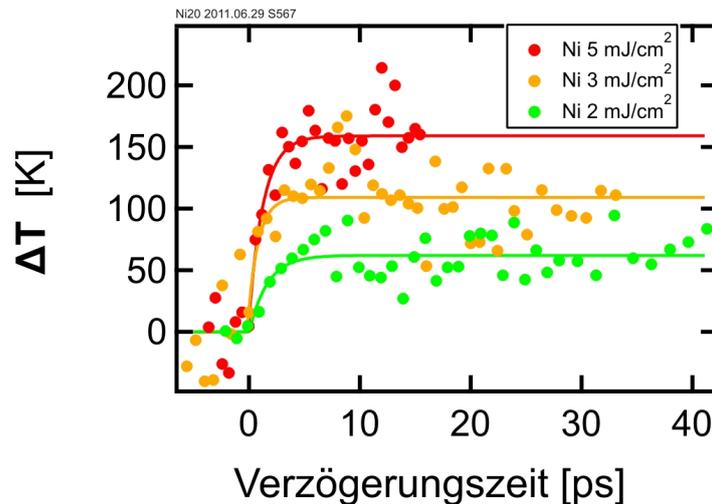


Abbildung 4.20: Vergleich der Temperaturänderung ΔT_i des Gitters für eine eingestrahelte Energiedichte w_i von 5, 3 und $2 \frac{mJ}{cm^2}$. Die exponentielle Anpassungskurven wurden für 5 und $3 \frac{mJ}{cm^2}$ als konstant extrapoliert.

In Tabelle (4.7) sind die aus den Messungen gewonnenen Werte aufgelistet. Als erstes fällt uns auf, dass die Temperaturdifferenz etwa 50 Kelvin beträgt für die unterschiedlichen Energiedichten. Ein linearer Zusammenhang ist nicht so deutlich erkennbar, was aber bei konstant angenommener Wärmekapazität der Fall sein sollte. Dies lässt sich deutlich in Abb. (4.20) erkennen. Hier sind die Messpunkte ohne Fehlerbalken und die zugehörigen exponentiellen Anpassungskurven dargestellt. Für 5 und 3 $\frac{mJ}{cm^2}$ sind die Anpassungskurven nach dem letzten Messpunkt als konstant extrapoliert worden, da diese Messungen über ein kürzeres Zeitintervall verliefen als die bei 2 $\frac{mJ}{cm^2}$. Hier sehen wir leicht die Temperaturdifferenz von 50 Kelvin zwischen den drei Anpassungskurven für große Zeiten. Die Simulation ergibt ein vergleichbares Ergebnis wie die Messung. Dies kann darüber begründet werden, dass die Simulation keinen konstanten Wert für die Wärmekapazität c_p verwendet, sondern die spezifische Wärmekapazität nach dem Debye-Model berechnet und den Literaturwert von $c_{p,lit} = 0,444 \frac{J}{g \cdot K}$ als einen Fixpunkt bei 20°C benutzt. In Abb. (4.21) ist die spezifische Wärmekapazität $c_p(T)$ für Nickel bei hohen Temperaturen T (250 bis 700 K) aufgetragen. Die Daten für die spezifische Wärme wurden von P. J. Meschter et al [21] mit Hilfe der Pulskalorimetrie gewonnen. Die Daten für $c_p(T)$ wurden mit einer Genauigkeit von 2% angegeben. Es lässt sich eine starke Abweichung von $c_p(T)$ in der Nähe der Curie-Temperatur T_C vom Debye-Modell erkennen, dass für hohe Temperaturen dem Dulong-Petitsches Gesetz entsprechen sollte. Eine solche Singularität würde dazu führen, dass ein Teil der deponierten Energie nicht zur Temperaturerhöhung beiträgt.

Nun schätzen wir ab, wie viel Energie in diesen Sprung der Wärmekapazität eingetragen werden kann. Wir Straten mit einer ganz groben Annahme, das $c_p(T_1) = Konst_1$ bei der Temperatur T_1 den konstanten Wert $Konst_1$ annimmt und für T_2 den Wert $c_p(T_2) = Konst_2$. Solange c_p konstant ist, gilt für die inneren Energie U :

$$U(T) = c_p(T) \cdot m_{Ni} \cdot T \quad (4.19)$$

m_{Ni} ist die Masse unserer erwärmten Probe und wurde bereits für Formel (4.8) zu $8,7 \cdot 10^{-8} g$ bestimmt. Aus [21] entnehmen wir die Werte $c_p(633 K) =$

$w_i [\frac{mJ}{cm^2}]$	$\Delta T_l [K]$	$\tau [ps]$	$\hat{\sigma} [\%]$	$\Delta T_s [K]$	$\tau_s [ps]$	$w_s [\frac{mJ}{cm^2}]$
$5,0 \pm 1$	$158 \pm 4,5$	$1,5 \pm 0,4$	20	170	0,9	5,8
$3,1 \pm 0,6$	$108 \pm 5,1$	$0,93 \pm 0,5$	23	125	0,8	3,8
$2,1 \pm 0,4$	$61 \pm 9,3$	$1,6 \pm 0,9$	48	79	0,6	2,3

Tabelle 4.7: Ergebnisse aus den Messungen für unterschiedliche Energiedichten w_i . Aufgelistet sind die Temperaturänderung ΔT_l , die Zeitkonstante τ und die Schwankung der Temperaturmessung $\hat{\sigma}$. Ebenso sind die Daten für die Simulation mit dem TTM aufgelistet, darunter sind die eingestrahelte Energiedichte w_s , die Zeitkonstante τ_s und die maximale Temperaturerhöhung ΔT_s .

$0,702 \frac{J}{g \cdot K}$ und $c_p(635 K) = 0,57 \frac{J}{g \cdot K}$. So können wir nun die Differenz der inneren Energie $\Delta U = U(T_1) - U(T_2)$ für diese beiden Temperaturen berechnen, und erhalten:

$$\Delta U = 7,01 \cdot 10^{-3} mJ$$

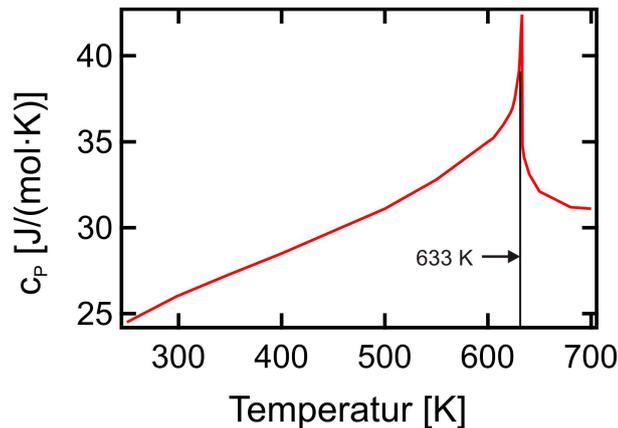


Abbildung 4.21: Wärmekapazität c_p von Nickel über die Temperatur T . Die Daten wurden [21] entnommen

In Abschnitt (4.2.1) hatten wir mit Formel (4.7) die vom Film absorbierte Energie auf $5,6 \cdot 10^{-3} mJ$ bestimmt, bei einer eingestrahnten Energiedichte von $5,5 \frac{mJ}{cm^2}$. Wir sehen, dass nach dieser einfachen Abschätzung ein erheblicher Teil der absorbierten Energie in diesen Sprung der Wärmekapazität gehen könnte. Nach der von uns berechneten Temperaturerhöhung gelangen wir aber nicht in die Nähe dieser Singularität. Doch es muss bedacht werden, dass sowohl die Bestimmung der eingestrahnten Energiedichte, als auch der Temperaturanstieg einer großen Ungenauigkeit unterliegt. Anhand der gemessenen Temperaturerhöhungen bei drei unterschiedlichen Energiedichten lässt sich leider kein hinreichender Vergleich mit den Messungen der Wärmekapazität herstellen. Um diesen Zusammenhang nachzuvollziehen, würde es sich anbieten mehrere Messungen bei verschiedenen Energiedichten durchzuführen. Zudem könnte es sich lohnen die Probe vorzuheizen, damit wir bereits in der Nähe der Curie-Temperatur die Messung starten. Ansonsten könnte die benötigte Energiedichte, um die Probe stark genug anzuregen, so groß werden, dass die Probe zerstört wird. Des Weiteren sollte noch bemerkt werden, dass die ermittelte Kurve aus Abb. (4.21) aus einer statischen Messung im thermodynamischen Gleichgewicht gewonnen wurde. Wie sich dieser Effekt auf der Picosekunden Zeitskala auswirkt ist nicht bekannt.

Im Anschluss wird nochmal die Steigung und der Achsenabschnitt miteinander verglichen. In Abb. (4.22) ist dieser über die Verzögerungszeit für die Messung bei $3,1 \frac{mJ}{cm^2}$ aufgetragen. Aufgrund der hier extrem großen Schwankung sind diese Daten kaum miteinander Vergleichbar. Auch die Messungen bei 2,1 und 5

$\frac{mJ}{cm^2}$ ergaben kein besseres Ergebnis. Die einzige Aussage hier ist, dass kein gemeinsames Verhalten zwischen Achsenabschnitt und Steigung bestätigt werden kann.

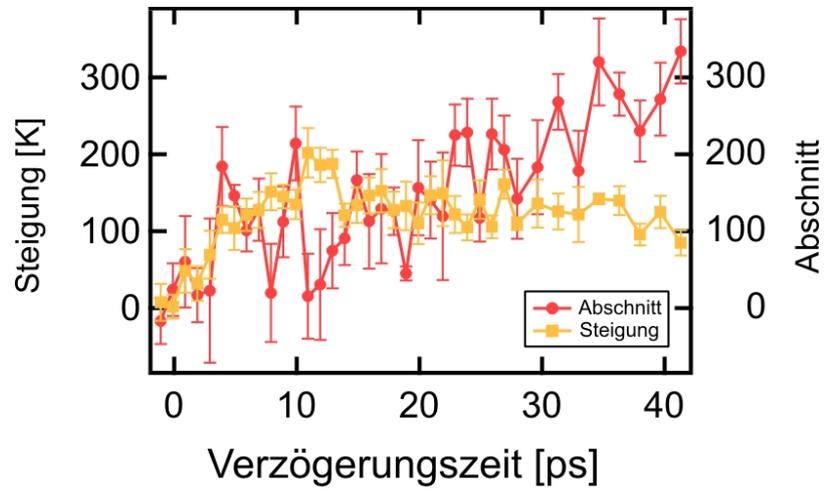


Abbildung 4.22: Vergleich der Steigung und des Achsenabschnitt bei $3,1 \frac{mJ}{cm^2}$.

5 Resultate und Ausblick

Langsam kommen wir zum Ende dieser Arbeit, darum wird es Zeit einen Blick auf die erreichten Ziele und Erfolge zu werfen. Dies beinhaltet auch eine Reflexion und Beurteilung der Ergebnisse unserer Experimente. Auf diese Weise fassen wir die gewonnenen Erkenntnisse zusammen und erstellen einen Ausblick auf weiterführende Aufgaben, um unser Wissen über die Vorgänge in Festkörpern, die innerhalb weniger Picosekunden ablaufen, zu erweitern. Dabei bleibt es nicht aus die Messergebnisse kritisch zu betrachten und Vorschläge zur Optimierung des bestehenden Aufbaus anzusprechen.

5.1 Ergebnisse der Messungen

Im Verlauf der Messungen in dieser Arbeit wurde gezeigt, dass die Intensität der Beugungsmaxima nach Anregung der Probe mittels eines intensiven, kurzen Laserpulses abnahm. Dieses Verhalten wird durch den Debye-Waller-Faktor (DWF) beschrieben, und im Rahmen der Messgenauigkeit sind die Ergebnisse vergleichbar mit früheren Messungen an anderen Metallfilmen (Gold, Kupfer und Bismut [11]). Ebenso konnten Messungen von der Cao Gruppe in Florida [18] an Nickel bestätigt werden. Zudem konnte eine signifikante Abweichung des Aufheizverhalten vom Debye-Waller-Faktor gezeigt werden. Diese besteht zum einen in der Messung deutlich zu niedrig bestimmten Temperatur des Nickelfilmes. Zum anderem schneidet die Ausgleichsgerade für die Temperaturbestimmung nicht den Nullpunkt der Ordinate. Nach dem DWE wird der ungebeugte Elektronenpuls, das (000) Intensitätsmaximum, nicht durch die Temperaturerhöhung des Gitters beeinflusst. Dieses (000) Maximum würde auf der Abszisse von Abb. (4.5) im Nullpunkt liegen. Auch wenn nicht bei allen Messungen, die Abweichung des Achsenabschnittes von der Theorie, nachgewiesen werden konnte, so zeigt sich bei den meisten Messungen dieses ungewöhnliche Verhalten. Diese Abweichung von der Theorie wurde bereits bei Gold, Kupfer und Bismut beobachtet [22]. Dabei haben die Messungen des (000) Maximums gezeigt, dass es einen Zusammenhang in dem Verhalten der Intensität des (000) Maximums und dem Achsenabschnitt gibt. Es bleibt weiterhin zu klären, wodurch dieser Effekt zustande kommt und welche Auswirkungen dieser auf unsere Messergebnisse hat.

In Abschnitt (4.2.4) haben wir gesehen, dass die Polarisation der Anregungspulse sich auf unsere gemessene Intensitätsänderung auswirkt. Diese Änderung kann durch das unterschiedliche Reflexions- und Absorptionsvermögen für die

verschiedenen Polarisationsrichtungen hinreichend genau erklärt werden. Ein anisotropes Verhalten der einzelnen Beugungsmaxima ließ sich nicht eindeutig nachweisen. Für denselben Netzebenenabstand verhalten sich die meisten Beugungsmaxima gleich und zeigen auch keine Abhängigkeit von der Polarisationsrichtung. Im Falle eines anisotropen Verhaltens von Nickel wäre zu erwarten, dass die Beugungsmaxima die zum selben d_{hkl} gehören unterschiedlich auf verschiedene Polarisationsrichtungen reagieren [13]. Dennoch gibt es vereinzelte Beugungsmaxima, mit einem andersartigem Intensitätsverhalten, so dass es nicht Sinnvoll ist über alle zusammengehörigen Signale zu mitteln, um die Messgenauigkeit zu verbessern. Dadurch würde die Messung an sich verfälscht werden, denn nicht für alle Netzebenenabstände, für die Beugungsmaxima beobachtete wurden, konnten alle zu dem jeweiligem Netzebenenabstand gehörigen Signale aufgezeichnet werden.

In der Messung der Abhängigkeit des Beugungssignales von der eingestrahlten Energiedichte, können wir ein unerwartetes Verhalten der Temperatur beobachten. Nach dem Debye-Waller-Effekt (DWE) erwarten wir einen linearen Anstieg der Gittertemperatur mit der eingestrahlten Energiedichte. Wir beobachten aber eine Abweichung von diesem Verhalten. Bei hinreichend hoher Energiedichte, ist der Temperaturanstieg kleiner als nach dem DWE erwartet. In der Berechnung der Temperatur nach dem DWE wurde aber eine konstanten Wärmekapazität angenommen, so wie es bei Gold, Kupfer und Bismut gemacht wurde, was aber hier nicht gilt. In der Tat gibt es eine Anomalie der Wärmekapazität in Nickel bei der Curie-Temperatur T_C , die sich in einem Sprung bei 633 Kelvin zeigt. Auch wenn die ermittelte Temperatur der angeregten Nickelprobe die Curie-Temperatur T_C nicht erreicht, so ist es vorstellbar, dass der starke Anstieg der Wärmekapazität vor T_C die Bestimmung der Temperatur bereits beeinflusst. Zudem ist zu bedenken, dass die ermittelte Temperatur einen Durchschnittswert über das gesamte Zeitintervall, welches nach 5 ps gemessen wurde, darstellt. So können Details im Zeitverhalten verloren gehen. Besonders da in der Nähe der Curie-Temperatur Nickel einige Besonderheiten aufweist, neben dem Phasenübergang von dem ferro- zu paramagnetischen Zustand. Zum einen macht die Wärmekapazität hier einen Sprung, der nicht durch den magnetischen Phasenübergang zweiter Ordnung erklärt werden kann. Zum anderem zeigt der Nickel-film, der bei 650 K gewachsen wurde ein deutliches monokristallines Beugungsmuster, wohingegen der Film bei Raumtemperatur polykristallin gewachsen ist. Bei Raumtemperatur kann Nickel sowohl in der ferromagnetischen fcc Struktur, als auch in der paramagnetischen hcp Struktur kristallisieren. Bei 550 K [23] wandelt sich die hcp in die fcc Struktur um. Dieser Prozess ist nicht reversible. Diese Vorgänge können interessante Effekte innerhalb kurzer Zeitskalen hervorrufen, welche eine genauere Untersuchung verlangen.

Damit die oben genannten Messungen erfolgreich durchgeführt werden können, gibt es mehrere Dinge zu beachten. Zum einen sollten wir die Messung bei unterschiedlichem Einfallswinkel der Elektronenpulse zur Probenoberfläche durchführen, da wir so eine vollständigere Strukturanalyse erstellen können. Denn die hier ausgewerteten Messungen wurden unter senkrechtem Einfallswin-

kel aufgezeichnet, so dass wir nur die Netzebenen senkrecht zum \vec{k} -Vektor der Elektronen untersuchen können. Dafür ist es nötig die Probe in Relation zu den Elektronenstrahlen drehen zu können. In Abb. (3.19) wurde bereits gezeigt, dass wir durch eine Drehung der Probe um 10° fast alle Beugungsmaxima die nach dem Strukturfaktor erlaubt sind, sichtbar machen können. Dafür sollte aber die Elektronenpuls- und Laserpulsfronten optimal angepasst werden, damit eine Verlängerung der Pulsdauer vermieden werden kann.

Zum anderem muss die Stabilität der Intensität der Elektronenpulse optimiert werden. Ein erster Schritt wäre eine Strahlagestabilisierung aufzubauen. So könnte das langsame zeitliche Driften des Lasers unterbunden werden. Zur Zeit sind Messungen von mehr als einer Stunde kaum möglich, da in dieser Zeit die dritte Harmonische ihre Position um einige Micrometer auf der Kathode ändert. Diese kleine Änderung reicht aus, damit nicht mehr genügend Elektronen für ein detektierbares Beugungssignal erzeugt werden. Zudem wirken sich einige Faktoren negativ auf die Positionsstabilität des Lasers aus. Zum einen wird die Temperatur im Labor durch über die Belüftung reguliert. Die Schwankung der Temperatur kann während der Messung beträgt mehr als $\pm 0,5^\circ\text{C}$. Da die Laserpulse über einen Tisch mit einer Länge von zwei Metern geführt werden. Für Eisen mit einem linearen Ausdehnungskoeffizienten ζ_l von $12 \cdot 10^{-6} \text{ 1/K}$ ([1], Band 1, S.: 274) beträgt bei dieser Temperaturdifferenz die Längenänderung $24 \mu\text{m}$. Dies ist ein viertel des Durchmessers von dem Nadelloch, in welches die dritte Harmonische eingekoppelt werden muss. Auch wenn die Stahlplatte des optischen Tisches einen kleineres ζ_l besitzt, so lässt sich daraus abschätzen, dass diese Temperaturschwankungen sich deutlich auf die Genauigkeit der Messungen auswirken. Im Verlauf des Umbaus vom Labor wurden mehrere Kontrolleinheiten zur Regulierung der klimatischen Raumbedingungen unwirksam. Diese Einheiten müssen an eine andere Stelle verlegt werden, damit das Wartungspersonal wieder Zugang zu diesen erhält und diese die Raumdaten erfassen können. Ein weiterer Schritt in der Optimierung der Stabilität des Elektronensignals, sollte auf die neue Kammer verwiesen werden, die im Abschnitt (5.2) genauer diskutiert wird, denn bei dieser ist die Stabilität bereits deutlich verbessert.

Als einen weiteren Punkt, um die Zuverlässigkeit der Messung zu erhöhen, sollte die Methode zur Überschneidung von Elektronen- und Laserpulsen optimiert werden. Die Methodik wurde in Kapitel (3.5) ausführlich besprochen. Hier gibt es zwei Aufgaben. Die Erste besteht darin die Abbildung des Probenhalters weiter zu optimieren. Mit einer schärferen und detailreicheren Abbildung, wäre die Lokalisierung der Laserpulse auf dem Probenhalter einfacher und zuverlässiger. Das wäre ein großer Fortschritt und würde den Prozess der Datengewinnung erheblich verbessern. Als Zweites wäre es sinnvoll verschiedenen Formen und Durchmessern des Nadelloches, an dem die Pulse Überlagert werden, zu testen, wie sich dieses auf die Positionsänderung des Schwerpunktes auswirkt. Damit diese Test durchgeführt werden können, wurde bereits ein Probenhalter mit entsprechenden Öffnungen angefertigt. Dieser ist in Abb. (5.1) gezeigt. Die spezielle Form der Öffnungen könnte ebenfalls helfen den Durchmesser der Elektronen-

pulse an der Probe genauer zu bestimmen.

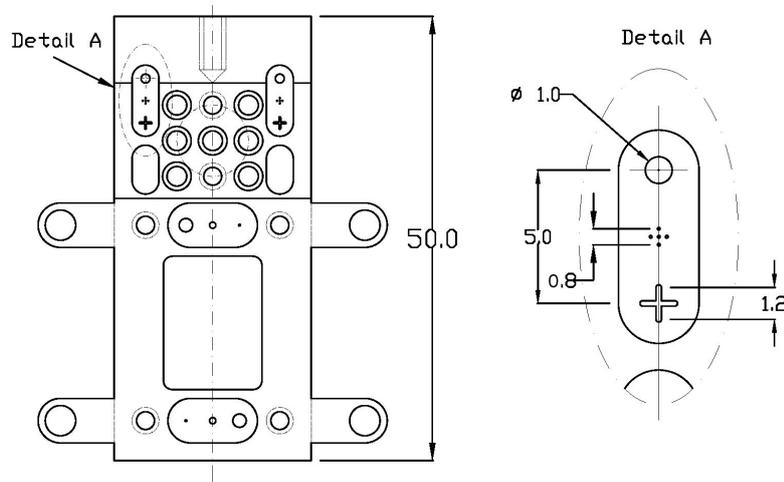


Abbildung 5.1: Konstruktionszeichnung für den neuen Probenhalter, mit verschiedenen Blenden zur Überlagerung der Anrege- und Abfragepulse.

5.2 Stand des neuen Elektronenbeugungsaufbaues

Neben den Messungen an Nickel bestand ein Ziel darin, die neue Elektronenbeugungskammer aufzubauen und in Betrieb zu nehmen. Hier wurde der optische Aufbau für die Anrege und Abfragestrecke fertiggestellt und demonstriert, dass Pump-Probe-Experimente möglich sind indem die Pulse räumlich und zeitlich Überlagert wurden. Eine neue Elektronenquelle der 4ten Generation wurde entwickelt und eingebaut. Erste Test in der Erzeugung kurzer Elektronenpulse wurden mit dieser Quelle durchgeführt. Nun folgen weitere Schritte, um die nötige Spannungsfestigkeit während des Betrieb zu erreichen. Wie diese aussehen wurde in Kapitel (3.4.2) vorgeschlagen. Die kritische Stelle befindet sich höchst wahrscheinlich zwischen der Kathode und der Anode, so das diese Komponenten genau untersucht werden sollten.

Mit der Elektronenquelle der 3ten Generation wurde bereits gezeigt, dass die Stabilität der Elektronenpulse auf kurzer und langer Zeitskala um mindestens einen Faktor zwei im Vergleich zur alten Kammer verbessert wurde. Weitere Vorteile liegen im leichterem Zugang zur Probenhalterung, sowie besseren Möglichkeiten die Probe in der Kammer zu Positionieren. Zudem bietet sie mehr Möglichkeiten weitere Komponenten und Zubehör in und an der Kammer zu montieren. Auch hier gibt es eine Reihe von Aufgaben die noch zu erledigen sind. Die Vakuumfestigkeit sollte verbessert werden, denn ein Enddruck von $2 \cdot 10^{-6}$ mbar lässt viel Raum nach unten offen. Das Ziel hier sollte ein Enddruck von 10^{-8} mbar sein. Eine geeignete Halterung für den schnellen Austausch

von Proben sollte entworfen werden. Des Weiteren sollte die Probenpositionierung optimiert werden. Hier sind einige Übergangsstücke unnötig lang, was zu unerwünschten Vibrationen der Probe während der Messung führen kann.

Da sich die Spannungsversorgung über eine digitale Schnittstelle ansteuern lässt, kann die neue Elektronenquelle über einen PC gesteuert werden. Bei hohen Spannungen ist es nötig die Spannung langsam in kleinen Schritten bis zum Endwert zu erhöhen. Für diese Prozedur wurde eine vorläufiges Programm geschrieben, das aber noch erweitert werden muss. Es fehlt noch eine automatische Notabschaltung, die selbstständig die Spannungsversorgung abschaltet, falls ein zu großer Strom fließt. Zudem sollten Einbrüche der Spannung registriert und aufgezeichnet werden. Dasselbe gilt für Unregelmäßigkeiten im Stromfluss. Eine weitere wichtige Funktion, die zu implementieren ist, wäre das automatische Schrittweise hochfahren der Spannung. Zur Zeit lässt sich nur der gewünschte Endwert für die Spannung festlegen und der maximale Strom begrenzen. Anschließend wird die Spannung kontinuierlich erhöht, wobei die Geschwindigkeit mit der dies geschieht, von der Strombegrenzung abhängt.

5.3 Experimente an anderen ferromagnetischen Metallen

Die Ergebnisse aus den Messungen in dieser Arbeit habe einige unerwartete Resultate gezeigt. Damit ist im besonderem die Verbindung zwischen der gemessenen Temperaturerhöhung, dem anomalen Verhalten der Wärmekapazität von Nickel und der eingestrahlten Energie gemeine. Die anderen 3d Metalle zeigen das gleiche auffällige Verhalten in ihrer Wärmekapazität in der Nähe der Curie-Temperatur wie Nickel. Aus diesem Grund wäre eine detaillierte Untersuchung des zeitabhängigen Aufheizverhaltens von großem Interesse. Da die Curie-Temperaturen von Eisen ($T_{C,Fe} = 768^\circ C$) und Cobalt ($T_{C,Co} = 1121^\circ C$) größer sind als die von Nickel ($T_{C,Ni} = 357^\circ C$) ([23], S.: 817) wird es hier unvermeidlich die Probe vor zu heizen, da bei hinreichend starker Anregung bei Raumtemperatur durch einen Laser die Probe zerstört werden würde. Es gibt eine weitere Hürde die es zu überwinden gilt, wenn wir Cobalt und Eisen untersuchen wollen. Beide Elemente sind viel reaktionsfreudiger als Nickel, dies gilt besonders für Eisen. Aus diesem Grund wird es nicht ganz einfach werden die Filme von ihrem *NaCl*-Substrat abzulösen. Gerade Eisen oxidiert schnell in einer Salzlösung zu Eisenoxid (Fe_2O_3 oder FeO), die Reaktion von Cobalt läuft langsamer ab.

Obwohl Cobalt eine sehr hohe Curie-Temperatur besitzt, gibt es gerade für zeitaufgelöste Beugungsexperimente eine sehr interessante Eigenschaft. Die hcp Kristallstruktur von α -Cobalt wandelt sich bei einer Temperatur von $417^\circ C$ in eine fcc Struktur um (β -Cobalt) ([23], S.: 817). Diese Umwandlung ist reversible, was sie zugänglich für unsere Messmethode macht. Hier stellt sich die Frage, auf welcher Zeitskala diese Umwandlung abläuft? Ebenso wäre interessant zu klären,

ob ein Teil der eingestrahnten Energie durch den Laser in diesen Phasenübergang deponiert wird und wenn wie viel?

Wir sehen, es gibt noch einige spannende Fragen zu beantworten. Ebenso gibt es noch viele Aufgaben zur Optimierung des bestehenden Experimentes durchzuführen.

6 Danke

Für die Gelegenheit und die Ermöglichung dieser Arbeit danke ich Dr. Ping Zhou und Prof. Dr. Uwe Bovensiepen.

Ebenso danke ich Carla Streubühr für die Unterstützung während den Messungen bis spät in die Nacht hinein, ohne Dich wäre ich nicht so weit gekommen.

Zusätzlich geht mein Dank an Thomas Payer, D. Steeger und F. J. Mayer-zu Heringsdorf für die Herstellung der verwendeten Nickelfilme, und an alle Mitglieder der AG Bovensiepen die mich während meiner Arbeit unterstützt haben.

Ein besonderer Dank gebührt meiner Familie die mich über die gesamte Zeit meines Studiums unterstützt hat.

7 Verzeichnis

7.1 Literaturverzeichnis

- [1] W. Demtröder: Experimentalphysik Band 1-4, (2003)
- [2] H. Vogel: Gerthsen Physik, (1997)
- [3] W. Nolting: Grundkurs Theoretische Physik Band 1-5, (2004)
- [4] Ch. Kittel: Einführung in die Festkörperphysik, (2006)
- [5] H. Ibach, H. Lüth; Festkörperphysik, Einführung in die Grundlagen, (2002)
- [6] <http://www.nanoandmore.com/Tapping-Mode-AFM-Probes.html> (20.07.2011)
- [7] D.B. Williams, C.B. Carter: Transmission Electron Microscopy, (1996)
- [8] B.C. Larson: „Nanosecond resolution time-resolved x-ray study of silicon during pulsed-laser irradiation“, J. Mat. Res. 1 (1986)
- [9] B.J. Siwick: „Femtosecond electron diffraction studies of strongly-driven structural phase transition“, PhD Thesis, University of Toronto (2004)
- [10] <http://www.highspeed-xtra.de/de/highspeedkamera-hochgeschwindigkeitskamera/olympus-i-speed-fs.html> (12.08.2011)
- [11] M. Ligges: „Untersuchung der schnellen Gitteraufheizung in dünnen (Halb-) Metallfilmen mit Hilfe zeitaufgelöster Elektronenbeugung“Dissertation, Universität Duisburg-Essen (2009)
- [12] I. Rajkovic: „Ultrafast Electron Diffraction Studies of Optically Excited Thin Bismuth Films“, PhD Thesis, Universität Duisburg-Essen (2008)
- [13] C. Streubühr: „Anisotropieeffekte bei der zeitaufgelösten Elektronenbeugung an Wismutfilmen“Diplomarbeit, Universität Duisburg-Essen (2010)
- [14] <http://www.kern.de> (15.08.2011)
- [15] T. Payer: „Ultrathin epitaxially grown bismuth (111) membranes“, Appl. Phys. Lett. 93 (2008)
- [16] J.K. Steele: „Self-ion sputtering yielddetermination of (100) nickel thin films“, Surface and Coatings Technology, 51 (1992)

- [17] R. Wiesendanger: Scanning Probe Microscopy and Spectroscopy: Methods and Applications, Cambridge University 1994
- [18] X. Wang: "Temperature dependence of electron-phonon thermalization and its correlation to ultrafast magnetism", Phys Rev B 81, (2010)
- [19] E.D. Palik: "Handbook of optical constants", Academic Press (1998)
- [20] J.B. Bigot: "Ultrafast Spindynamics in Ferromagnetic Nickel" Phys Rev Letters, V76, N22 (1996)
- [21] P. J. Meschter, et al: "Physikal contributions to the heat capacity of nickel" J. Phys. Chem. Solids Vol. 42 N.9 (1981)
- [22] M. Ligges: "Transient (000)-order attenuation effects in ultrafast transmission electron diffraction" JAP 109 (2011)
- [23] E. Riedel: Anorganische Chemie, 5te Aufl. 2002
- [24] S. Williamson: "Time-resolved laser-induced phase transformation in Aluminum" Phys. Rev. Lett. 52 (1984)
- [25] B.J. Siwick, et al: „An atomic-level view of melting using femtosecond electron diffraction“, Science 302 (2003)
- [26] P. Baum, et al: „4D electron imaging: Principles and perspectives“, Science 318 (2007)
- [27] U. Bovensiepen, et al: „The Curie temperature in ultrathin Ni/Cu(001) films determined by ac susceptibility and MOKE“, Surface Science 402-404 (1998)
- [28] B. Wilthan: "Bestimmung der spezifischen Wärmekapazität von Stoffen mittels dynamischer Differenzkalorimetrie" Diplomarbeit, Technische Universität Graz (2002)
- [29] R. Zhang and R. Willis: "Thickness-Dependent Curie Temperatures of Ultrathin Magnetic Film: Effect of the Range of Spin-Spin Interaction" Phys Rev Letters (2000)
- [30]

7.2 Bildquellen

- [a1]: <http://www.uni-due.de/cenide/fib.shtml> (13.07.2011): (1.1)
- [a2]: Demtröder Experimentalphysik Band 1-3: (1.2), (1.9), (2.1), (2.2), (2.3), (2.4), (2.5), (2.9), (2.8)

- [a3]: <http://www.mpe.mpg.de/heg/www/he-d.html> (17.07.2011):
(1.3)
- [a4]: <http://www.nanomat.de/datenblaetter/42000.htm> (20.07.2011):
(1.4)
- [a5]: <http://www.chemieonline.de/forum/showthread.php?t=137459> (20.07.2011):
(1.5)
- [a6]: <http://de.wikipedia.org/wiki/Datei:Rastertunnelmikroskop-schema.svg> (20.07.2011):
(1.6)
- [a8]: <http://www.uni-ulm.de/elektronenmikroskopie/TEM2001.html> (21.07.2011):
(1.7)
- [a9]: <https://lp.uni-goettingen.de/get/text/1526> (22.07.2011):
(1.8)
- [a10]: H. Ibach, H. Lüth: Festkörperphysik: Einführung in die Grundlagen 2002:
(2.6)
- [a11]: M. Ligges: Untersuchung der schnellen Gitteraufheizung in dünnen
(Halb-)Metallfilmen mit Hilfe zeitaufgelöster Elektronenbeugung (2009):
(2.7): (2.11), (2.12), (3.2), (3.5), (3.13)
- [a12]: G. Dolling: In Inelastic Scattering of Neutrons in Solids and Liquids, Vol
II 1963, p. 37:
(2.10)
- [a13]